



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 202500503 A

(43) 公開日：中華民國 114 (2025) 年 01 月 01 日

(21) 申請案號：113106164

(22) 申請日：中華民國 113 (2024) 年 02 月 21 日

(51) Int. Cl. : C01B21/068 (2006.01)

C08K3/34 (2006.01)

(30) 優先權：2023/03/31 日本

2023-058723

(71) 申請人：日商住友化學股份有限公司 (日本) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED
(JP)

日本

日商燃燒合成股份有限公司 (日本) COMBUSTION SYNTHESIS CO., LTD. (JP)

日本

(72) 發明人：關口泰広 SEKIGUCHI, YASUHIRO (JP) ; 江川貴将 EGAWA, TAKAMASA (JP) ;
原田和人 HARADA, KAZUTO (JP) ; 鏡好晴 KAGAMI, YOSHIHARU (JP)

(74) 代理人：卓俊傑；鮑亞嵐；卓孟儀

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：6 項 圖式數：0 共 25 頁

(54) 名稱

氮化矽粉末及使用其的樹脂組成物

(57) 摘要

一種氮化矽粉末，包含多個氮化矽粒子，安息角超過 40°。

Provided are silicon nitride powder comprising silicon nitride particles and having an angle of repose of more than 40°.

【發明摘要】

【中文發明名稱】氮化矽粉末及使用其的樹脂組成物

【英文發明名稱】 SILICON NITRIDE POWDER, AND RESIN

COMPOSITION USING SAME

【中文】

一種氮化矽粉末，包含多個氮化矽粒子，安息角超過 40°。

【英文】

Provided are silicon nitride powder comprising silicon nitride particles and having an angle of repose of more than 40°.

【指定代表圖】無。

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】氮化矽粉末及使用其的樹脂組成物

【英文發明名稱】 SILICON NITRIDE POWDER, AND RESIN
COMPOSITION USING SAME

【技術領域】

【0001】 本揭示是有關於一種氮化矽粉末及使用其的樹脂組成物。

【先前技術】

【0002】 藉由對電子零件通電而產生的熱經由散熱器而散熱。出於提高散熱效率的目的，已知於電子零件與散熱器之間利用散熱材料進行填充的技術。

作為散熱材料之一，已知有包含樹脂與無機粒子的樹脂組成物，作為無機粒子，可利用氮化矽粉末（例如專利文獻 1）。

【0003】 專利文獻 1 揭示了作為電子封裝材料的填料使用的低鉛類球形 β 氮化矽粉體。氮化矽粉體的特徵在於，球形度為 0.5~0.99，Al 雜質含量小於 500 ppm，粒度範圍為 0.5 μm ~50 μm 。

【0004】 專利文獻 2 揭示了適於製造氮化矽質燒結體的氮化矽粉末的製造方法及藉由該方法獲得的氮化矽粉末。氮化矽粉末的平均粒度為 1 μm ~50 μm ，金屬氧化物的含量為 0 wt%~10 wt%，雜質的含量低於 1 wt%，較佳為所述氮化矽粉末中的金屬氧化物的含量小於 1 wt%，燒結後的燒結體的熱傳導率為 90 W/mK 以上，彎曲強度為 700 MPa 以上，較佳為所述燒結體的燒結條件設為，

將所述氮化矽粉末與 MgO 、 Y_2O_3 混合，進行研磨，對坯體進行乾式壓製成形，在 1900°C 、 1 MPa 的氮氣壓力的條件下對所述坯體進行 8h 氣壓燒結。

【0005】 專利文獻 3 揭示了適於製造高熱傳導型氮化矽質燒結體的氮化矽質粉末。氮化矽質粉末的特徵在於包含如下柱狀粒子： β 分率為 $30\% \sim 100\%$ ，氧量小於 $0.5\text{ wt}\%$ ，平均粒子徑為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$ ，縱橫比為 10 以下，在粒子的長軸方向上形成有槽部。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0006】 [專利文獻 1]日本專利特表 2022-522814 號公報

[專利文獻 2]日本專利特表 2022-541208 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開 2004-262756 號公報

【發明內容】

【0007】 [發明所欲解決之課題]

可知：在如上所述利用氮化矽粉末的過程中，欲進一步提高其生產性時，存在氮化矽粉末容易附著於其他構件等問題。

【0008】 鑒於此種狀況，本發明的一實施形態的目的在於提供一種作為樹脂組成物用填料而使用的氮化矽粉末，且為可抑制向其他構件的附著的氮化矽粉末。進而，本發明的另一實施形態的目的在於提供一種使用氮化矽粉末的樹脂組成物。

[解決課題之手段]

【0009】 本發明的態樣 1 為一種氮化矽粉末，

包含多個氮化矽粒子，安息角超過 40° 。

【0010】 本發明的態樣 2 是如態樣 1 所述的氮化矽粉末，其中，
壓縮度小於 34.4%。

【0011】 本發明的態樣 3 是如態樣 1 或 2 所述的氮化矽粉末，其中，

自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 90% 的粒徑 D90
與自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 10% 的粒徑 D10 之
差為 $150.0\ \mu\text{m}$ 以下。

【0012】 本發明的態樣 4 是如態樣 1 至 3 中任一項所述的氮化矽
粉末，其中，

所述氮化矽粒子的短徑相對於長徑的平均縱橫比超過 0.50。

【0013】 本發明的態樣 5 是如態樣 1 至 4 中任一項所述的氮化矽
粉末，其中，

內部的邊界線的合計長度 L2 相對於外緣的長度 L1 之比
(L2/L1) 為 1% 以下的所述氮化矽粒子的最大粒徑為 $6.8\ \mu\text{m}$ 以上。

【0014】 本發明的態樣 6 為一種樹脂組成物，

包含：樹脂、以及如態樣 1 至 5 中任一項所述的氮化矽粉末。

[發明的效果]

【0015】 藉由本發明的一實施形態，能夠提供一種可抑制向其他
構件的附著的氮化矽粉末。

【實施方式】

【0016】 [氮化矽粉末]

本發明者等人為了實現可抑制向其他構件的附著的氮化矽粉末，就各種觀點進行了研究，著眼於安息角。作為抑制向其他構件的附著的對策，一般而言考慮降低安息角以提高流動性。與此相對，本發明者等人發現，藉由將安息角反而提高至規定值以上，氮化矽粉末容易集中等，藉此，結果不易附著於其他構件（例如聚苯乙烯構件等）。以下，表示本發明的實施形態規定的各必要條件的詳細情況。

【0017】（安息角）

本發明的實施形態的氮化矽粉末包含多個氮化矽粒子，安息角超過 40° 。藉此，不易附著於其他構件（例如聚苯乙烯構件等）。另外，藉由使安息角在所述範圍內，在包含該氮化矽粉末的樹脂組成物中，氮化矽粉末在某種程度上集中而容易形成熱擴散路徑等，藉此可提高樹脂組成物的熱擴散率。安息角較佳為 41° 以上。另一方面，安息角較佳為設為 60° 以下。藉此，可在某種程度上保持氮化矽粉末的流動性，容易使氮化矽粉末分散於樹脂組成物中，可提高樹脂組成物的熱擴散率。安息角更佳為 58° 以下，進而佳為小於 56° ，更進而佳為 50° 以下，進一步佳為 47° 以下，特佳為 45° 以下。

【0018】氮化矽粉末的安息角依據日本工業標準（Japanese Industrial Standards, JIS）R 9301-2-2：1999 的記載而進行測定。作為安息角測定時的周圍環境，設為溫度 23°C 、濕度 40%。

【0019】（壓縮度）

本發明的實施形態的氮化矽粉末的壓縮度較佳為小於 34.4%。

藉此，氮化矽粉末的流動性提高，可使氮化矽粉末進一步分散於樹脂組成物中，可進一步提高樹脂組成物的熱擴散率。壓縮度更佳為 34.0% 以下，進而佳為小於 33.6%，進一步佳為小於 24.1%，特佳為 17.0% 以下。另一方面，壓縮度較佳為設為 3.0% 以上，藉此，氮化矽粉末不易飛散。壓縮度更佳為 5.0% 以上，進而佳為 7.0% 以上，進一步佳為 8.0% 以上。

【0020】 氮化矽粉末的壓縮度依據 JISZ2512：2012「金屬粉-振實密度測定方法」的記載進行振實密度的測定，並在將振實前的體積密度設為 D_0 (g/cm^3)，將振實後的體積密度（即振實密度）設為 D_1 (g/cm^3) 時，藉由 $(D_1 - D_0) / D_1$ 算出。

【0021】 所述振實後的體積密度（即振實密度） D_1 (g/cm^3) 高意味著可密集地填充氮化矽粉末。另外，若使用振實密度高的氮化矽粉末形成樹脂組成物，則可混練更多的氮化矽粉末，期待可提高樹脂組成物的熱擴散率。因此， D_1 較佳為超過 $0.54 \text{ g}/\text{cm}^3$ ，更佳為 $1.00 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上，進而佳為 $1.17 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上。另一方面，藉由在某種程度上降低振實密度，粒子彼此不易被壓實，可提高分散性。因此， D_1 較佳為 $2.00 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以下，更佳為 $1.90 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以下，進而佳為小於 $1.80 \text{ g}/\text{cm}^3$ 。

所述振實前的體積密度 D_0 (g/cm^3) 並無特別限制，例如可為 $0.35 \text{ g}/\text{cm}^3 \sim 1.60 \text{ g}/\text{cm}^3$ 。

【0022】 （自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 90% 的粒徑 D_{90} 與自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 10% 的粒徑

D10 之差)

粒度分佈尖銳的氮化矽粉末容易作為樹脂組成物用填料而使用，與其他粉末（粒子）混合時的選擇性以及自由度增加，因此較佳。例如，較佳為自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 90% 的粒徑 D90（以下有時簡稱為「D90」）與自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 10% 的粒徑 D10（以下有時簡稱為「D10」）之差為 150.0 μm 以下。更佳為 130.0 μm 以下。

與所述同樣地，D90 與自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 50% 的粒徑 D50（以下有時簡稱為「D50」）之差較佳為 100.0 μm 以下，更佳為 80.0 μm 以下。

【0023】 另一方面，在氮化矽粉末的粒度分佈在某種程度上較寬的情況下，小粒子進入至大粒子間の間隙等從而填充性提高，可使氮化矽粉末更多地混練於樹脂，而可有助於提高樹脂組成物的熱擴散率。因此，D90 與 D10 之差較佳為 3.0 μm 以上，更佳為超過 3.3 μm ，進而佳為超過 6.6 μm ，更進而佳為 20.0 μm 以上，特佳為 40.0 μm 以上。

與所述同樣地，D90 與 D50 之差較佳為 1.5 μm 以上，更佳為超過 2.0 μm ，進而佳為 5.0 μm 以上，更進而佳為超過 5.5 μm ，進一步佳為 20.0 μm 以上，特佳為 25.0 μm 以上。

【0024】 氮化矽粉末的 D90、D50 以及 D10 藉由雷射繞射法進行測定。具體而言，對分散於水中的粉末照射雷射光線，測定其繞射，求出各粒度。測定裝置可使用西萊斯（CILAS）製造的 1090L 型

等。

【0025】（氮化矽粒子的平均縱橫比）

氮化矽粉末中所包含的氮化矽粒子的短徑相對於長徑的平均縱橫比較佳為超過 0.50，更佳為超過 0.60，進而佳為 0.65 以上。另一方面，氮化矽粒子的平均縱橫比較佳為小於 0.87，更佳為 0.86 以下，進而佳為 0.85 以下。

若氮化矽粒子的平均縱橫比處於適當的範圍內，則可進一步提高向樹脂組成物的填充率，可獲得具有更高的熱擴散率的樹脂組成物。

【0026】 氮化矽粒子的平均縱橫比以如下方式測定。

藉由圖像處理軟體（例如，圖像 J（Image J）（美國國立衛生研究所（National Institute of Health）製造））對氮化矽粉末中所包含的氮化矽粒子的 SEM 圖像進行解析。確定氮化矽粒子的最大粒徑（將其設為「長徑」），將與長徑正交的方向上的粒徑設為「短徑」。對於任意的 20 個氮化矽粒子，測定長徑與短徑，對於各粒子，求出短徑相對於長徑之比（短徑/長徑）。將該些比的算術平均值設為氮化矽粒子的平均縱橫比。

【0027】（內部的邊界線的合計長度 L2 相對於外緣的長度 L1 之比（L2/L1）為 1% 以下的氮化矽粒子的最大粒徑為 6.8 μm 以上）

氮化矽粒子內部的粒界及空洞越少，越可有助於提高氮化矽粒子的熱擴散率。因此，作為氮化矽粒子內部的粒界的含量的指標，導入邊界線的合計長度 L2 相對於外緣的長度 L1 之比（L2/L1）。

L1 及 L2 是根據氮化矽粒子的剖面觀察求出。再者，此處所謂「粒界」及「邊界線」，是指電子背散射繞射（Electron Back Scatter Diffraction, EBSD）解析的結果為結晶方位差（斜角）超過 15°的邊界（亦稱為大角粒界）。

【0028】 在將一個氮化矽粒子的外緣的長度設為 L1、將該氮化矽粒子所具有的邊界線的合計長度設為 L2 時，L2/L1 的值小的氮化矽粒子可謂是邊界線的含量少的氮化矽粒子。在本實施形態中，L2/L1 為 1% 以下的氮化矽粒子視為包含單晶的氮化矽粒子（將其稱為「單晶粒子」）。由於單晶粒子的熱擴散率高，因此在作為樹脂組成物用填料使用時容易提高熱擴散率。

【0029】 在本實施形態中，L2/L1 為 1% 以下（即，單晶的）的氮化矽粒子的最大粒徑較佳為 6.8 μm 以上，更佳為 10.0 μm 以上，進而佳為 15.0 μm 以上，更進而佳為 30.0 μm 以上，進一步佳為 45.0 μm 以上，特佳為 55.0 μm 以上。此種氮化矽粒子在填充至樹脂中時形成的熱傳導路徑長，因此可提高樹脂組成物的熱擴散率。

【0030】 （ β 化率）

氮化矽粉末的 β 化率較佳為 65% 以上。藉由 β 化率為 65% 以上，可提高氮化矽粉末及樹脂組成物的熱擴散率。

β 化率更佳為 70% 以上，進而佳為 80% 以上，更進一步佳為 85% 以上，特佳為 90% 以上。

【0031】 在本說明書中所謂「 β 化率」，是指相對於氮化矽粉末中所包含的全部氮化矽而言的 β 型氮化矽的含有率（體積%）。

【0032】 在 β 化率的算出中，藉由粉末 X 射線繞射法（X 射線源：CuK α 射線）獲取氮化矽粉末的繞射圖案，藉由加紮拉與梅西耶（Gazzara&Messier）法（G.P.加紮拉與 D.P.梅西耶（G.P.Gazzara and D.P.Messier）），「藉由 X 射線繞射分析測定 Si₃N₄ 的相含量（Determination of Phase Content of Si₃N₄ by X-ray Diffraction Analysis）」，美國陶瓷學會公報（Am.Ceram.Soc.Bull.），56[9]777-80（1977）對所述繞射圖案進行分析而算出 β 化率。

【0033】 [氮化矽粉末的製造方法]

本發明的實施形態的氮化矽粉末可藉由包含如下步驟、即

（1）使用包含 Si 的原料，在氮氣環境下藉由燃燒合成法合成氮化矽合成體結晶的步驟、

（2）將氮化矽合成體結晶碎解，而獲得氮化矽的粗粉碎粉的步驟、及

（3）將氮化矽的粗粉碎粉微粉碎，而獲得氮化矽的微粉碎粉的步驟

的製造方法進行製造。

進而，亦可任意地包含

（4）對氮化矽的微粉碎粉進行熱處理的步驟。

以下對各步驟進行詳述。

【0034】 · 步驟（1）：合成氮化矽合成體結晶的步驟

作為包含 Si 的原料，例如使用 Si 粉末。

原料的平均粒子徑 D50 例如為 2 μm ~ 10 μm 的範圍內。藉

此，可抑制氧雜質量並且可使燃燒速度上升而提高合成溫度，可獲得良好的結晶生長。雖為一例，但 Si 的平均粒子徑 D50 為 5 μm 。

【0035】 稀釋劑用於對原料中所佔的 Si 量進行調整。作為稀釋劑，使用另外準備的氮化矽粉末。該稀釋劑可為 α 型氮化矽粉末、 β 型氮化矽粉末中的任一者，該些亦可混合存在。稀釋劑的平均粒子徑 D50 較佳為 0.5 μm ~2.0 μm 的範圍。雖為一例，但稀釋劑的平均粒子徑 D50 為 1.0 μm 。相對於原料整體（包含稀釋劑），稀釋劑的添加量設為小於 10 質量%。作為一例，稀釋劑相對於原料整體而添加 5 質量%~8 質量%。藉由稀釋劑的添加量處於所述範圍內，容易獲得具有規定的安息角、壓縮度等的氮化矽粉末。

【0036】 在本實施形態中，在原料中混合稀釋劑，並填充至絕熱性耐熱容器中。該絕熱性耐熱容器的熱傳導率為 1 W/mK 以下，材質亦能夠為氧化鋁或氧化鋯，但考慮到雜質的混入，較佳為碳。另外，在原料填充後，藉由與絕熱性耐熱容器同樣的材質的物體蓋上蓋子。進而，為了提高燃燒時的合成體內部的溫度，混合原料的厚度設為超過 100 mm、較佳為超過 100 mm 且為 150 mm 以下。在 0.5 MPa~1 MPa（例如 0.9 MPa）的範圍的氮氣環境下進行燃燒合成。藉由將壓力範圍調整至所述範圍內，可在有效率的合成的同時抑制設備成本的上升。

【0037】 在將混合原料填充至坩堝中時，將層厚 1 mm 以上且 80 mm 以下的敷粉（氮化矽）鋪在坩堝底面與側面後，填充混合原料，進而，利用層厚 1 mm 以上且 80 mm 以下的敷粉覆蓋上表面。敷

粉的厚度為 100 mm 以下，較佳為 1 mm 以上且 80 mm 以下。藉由利用敷粉覆蓋，可對混合原料進行保溫，容易獲得具有規定的安息角、壓縮度等的氮化矽粉末。

【0038】 為了更有效果地促進結晶生長，亦可使用觸媒，例如添加 0.01 質量%~0.1 質量%左右的 Y_2O_3 、 Fe_2O_3 、 CaO 、 Ni 、 Co 、 C 等。另外，進行 $500^{\circ}C \sim 1700^{\circ}C$ 範圍（例如 $1500^{\circ}C$ ）的外部輔助加熱，即便藉由基於自引燃的燃燒合成法燃燒溫度亦變高。

【0039】 ·步驟（2）：獲得氮化矽的粗粉碎粉的步驟

氮化矽合成體結晶是多個氮化矽粒子凝聚而成的形態。在步驟（2）中，藉由將氮化矽合成體結晶碎解，獲得氮化矽的粗粉碎粉。例如，藉由錘磨機、盤磨機等一般的粗粉碎裝置將合成體碎解至通過規定的孔徑的篩子（例如，孔徑處於 $400 \mu m \sim 500 \mu m$ 的範圍內的篩子）為止。

【0040】 ·步驟（3）：獲得氮化矽的微粉碎粉的步驟

將氮化矽的粗粉碎粉進而微粉碎而獲得氮化矽的微粉碎粉。微粉碎例如藉由噴射磨機、球磨機等微粉碎裝置進行。亦可視需要對所獲得的微粉碎粉進行分級。分級可藉由篩選、濕式分級等進行。

【0041】 ·步驟（4）：對氮化矽的微粉碎粉進行熱處理的步驟

亦可任意地對氮化矽的微粉碎粉進行熱處理。藉由進行熱處理而在氮化矽粒子的表面形成氧化膜，因此具有使氮化矽粒子化學穩定化的效果。熱處理例如在大氣下在 $500^{\circ}C$ 以上且 $1200^{\circ}C$ 以

下進行。熱處理時間可根據熱處理溫度適宜調節。熱處理時間例如為 5 小時。

【0042】 在氮化矽粉末的製造方法中，利用燃燒合成法的生成熱合成氮化矽合成體結晶，並對其進行碎解、分級及微粉碎，藉此可製造本實施形態的氮化矽粉末。

【0043】 [樹脂組成物]

本發明的實施形態的樹脂組成物包含樹脂及本發明的實施形態的氮化矽粉末。本發明的實施形態的樹脂組成物的樹脂/氮化矽粉末的調配比率可根據目的及/或用途適宜決定。作為一例，相對於樹脂組成物（複合物），可為樹脂 5 體積%～75 體積%、氮化矽粉末 95 體積%～25 體積%的比例。

再者，所謂氮化矽粉末向樹脂組成物的填充率，是指將樹脂組成物（包含氮化矽粉末）的體積設為 100 體積%時的氮化矽粉末的含量（體積%）。

【0044】 對樹脂組成物的製造方法進行說明。

使用一般使用的公知的方法，將氮化矽粉末與樹脂混合，藉此可獲得樹脂組成物。例如，在樹脂為液狀的情況下（例如液狀環氧樹脂等），在將液狀樹脂、氮化矽粉末以及硬化劑混合後，利用熱或紫外線等使其硬化，藉此可獲得樹脂組成物。硬化劑、混合方法、及硬化方法可使用公知的硬化劑及方法。另一方面，在樹脂為固體狀的情況下，在將氮化矽粉末與樹脂混合後，利用熔融混練等公知的方法進行混練，藉此可獲得目標樹脂組成物。

【0045】 作為樹脂組成物中使用的樹脂，可使用如環氧樹脂等般的公知的樹脂。作為樹脂的種類，亦可自熱塑性樹脂、熱塑性彈性體、熱硬化性樹脂中選擇。再者，樹脂可單獨使用一種，亦可併用兩種以上。

【0046】 進而，視需要亦可於不損及發明的效果的範圍內，於該些樹脂組成物中將塑化劑、硬化促進劑、偶合劑、填充劑、顏料、阻燃劑、抗氧化劑、界面活性劑、相容劑、耐候劑、抗黏連劑、抗靜電劑、調平劑、脫模劑等公知的添加劑單獨或適宜調配兩種以上。

【0047】 實施形態的氮化矽粉末及包含該氮化矽粉末的樹脂組成物特別適合於散熱材料用途。因此，在本揭示的一態樣中，可提供一種散熱性氮化矽粉末及散熱性樹脂組成物。

[實施例]

【0048】 以下，藉由為了明確本發明的實施形態的效果而實施的實施例，對本發明的實施形態進行詳細說明。再者，本發明的實施形態並不受以下實施例的任何限定。

【0049】 <氮化矽粉末的製成>

藉由轉動球磨機將 Si 粉末（粒子徑=5 μm ）與作為稀釋劑的另外準備的氮化矽粉末（粒子徑=1 μm ）混合。相對於原料整體（包含稀釋劑），稀釋劑的添加量設為 5 質量%~8 質量%。在底面及側面鋪有層厚 1 mm 以上且 80 mm 以下的敷粉的碳質的絕熱性耐熱容器中，以原料層厚超過 100 mm 且為 150 mm 以下的方式填充混合粉末，進而在原料層上利用層厚 1 mm 以上且 80 mm 以下的敷

粉覆蓋。其後，蓋上包含碳質的絕熱性耐熱材料的蓋子，在 0.9 MPa 的氮氣環境下進行合成。合成後，在研鉢中進行粗粉碎（碎解）直至通過規定的孔徑的篩子。將各試樣中的篩子的孔徑示於表 1 中。

【0050】（試樣 No.1～試樣 No.3）

將所獲得的粗粉碎粉進而利用奈米噴射器（Nanojetmizer）（安心奈米技術（Aishin nanotech）股份有限公司製造）進行微粉碎。對於微粉碎，使用表 1 中記載的型號的奈米噴射器。所獲得的微粉碎粉藉由表 1 中記載的方法進行分級。再者，一部分微粉碎粉（設為試樣 No.2）不進行分級。

其後，將所獲得的分級粉（試樣 No.1、試樣 No.3）、微粉碎粉（試樣 No.2）放入至氧化鋁製的坩堝中，使用粉小型程式電爐（亞速旺（Azone）製造的 MMF 系列），在表 1 中記載的條件（熱處理溫度、熱處理時間）下，在大氣環境下進行熱處理，獲得氮化矽粉末（試樣 No.1～試樣 No.3）。

【0051】（試樣 No.5～試樣 No.10）

與所述「試樣 No.1～試樣 No.3」同樣地，製成粗粉碎粉。再者，粗粉碎（碎解）時使用的篩子的孔徑設為 500 μm 。

對於所獲得的粗粉碎粉，藉由球磨機進行微粉碎。對於所獲得的微粉碎粉，使用振動篩按照以下程序進行篩分級後，進而進行濕式分級，獲得具有所期望的 D50 的氮化矽粉末（試樣 No.5～試樣 No.10）。

· 在使用孔徑 150 μm 的篩子進行篩分時殘留於篩上的粉末

(試樣 No.5，D50 為 192.0 μm)

·針對在使用孔徑 150 μm 的篩子進行篩分時殘留於篩下的粉末，進而使用 106 μm 的篩子進行篩分，殘留於篩上的粉末 (試樣 No.6，D50 為 118.0 μm)

·針對在使用孔徑 106 μm 的篩子進行篩分時殘留於篩下的粉末，進而使用 75 μm 的篩子進行篩分，殘留於篩上的粉末 (試樣 No.7，D50 為 83.0 μm)

·針對在使用孔徑 75 μm 的篩子進行篩分時殘留於篩下的粉末，進而使用 63 μm 的篩子進行篩分，殘留於篩上的粉末 (試樣 No.8，D50 為 58.0 μm)

·在使用孔徑 63 μm 的篩子進行篩分時殘留於篩下的粉末 (試樣 No.9，D50 為 22.0 μm)

·在進而使用孔徑 10 μm 的篩子對試樣 No.9 的粉末進行篩分時殘留於篩下的粉末 (試樣 No.10，D50 為 3.5 μm)

【0052】 [表 1]

試樣 No.	粗粉碎時的篩子的孔徑	奈米噴射器的型號	微粉碎粉的分級	熱處理	
1	500 μm	NJ-80A 型	篩分級 (振動篩) + 濕式分級	900°C、5 hr	實施例
2	425 μm	NJ-50B 型	無	600°C、1 hr	實施例
3	425 μm	NJ-80A 型	篩分級 (精密分級機)	900°C、5 hr	實施例

【0053】 對所獲得的試樣 No.1~試樣 No.3 及試樣 No.5~試樣 No.10 (實施例) 與作為比較例的市售的氮化矽粉末 (奧德里奇

(Aldrich)公司製造，氮化矽(主要為 β -相(predominantly β -phase))， ≤ 10 微米一次粒徑 (10micron primary particle size)，製品代碼 248622)：以下表述為「試樣 No.4」) 進行各種測定。

【0054】 (1) 安息角

依據 JIS R 9301-2-2：1999 的記載，對試樣(氮化矽粉末)的安息角進行了測定。安息角測定時的試樣量為 20 ml，作為周圍環境，設為溫度 23℃，濕度 40%。

【0055】 (2) 壓縮度

關於試樣(氮化矽粉末)的壓縮度，依據 JISZ2512：2012「金屬粉-振實密度測定方法」的記載進行振實密度的測定，並將振實前的體積密度設為 D_0 ，將振實後的體積密度(即振實密度)設為 D_1 ，藉由 $(D_1 - D_0) / D_1$ 算出。

【0056】 (3) (D90-D10) 以及 (D90-D50)

測定試樣(氮化矽粉末)的粒度分佈，求出 D90、D50 以及 D10，使用該些算出 (D90-D10) 及 (D90-D50)。

氮化矽粉末的粒度分佈是藉由雷射繞射法進行測定。對分散於水中的試樣照射雷射光線，測定其繞射，求出粒度。測定裝置使用西萊斯(CILAS)製造的 1090L 型。粒子徑設為圓相當粒子徑。所謂圓相當粒子徑是與投影粒子圖像相同的面積的正圓的粒子徑。另外，將粒子徑的基準設為體積。

【0057】 (4) 氮化矽粒子的平均縱橫比

拍攝試樣(氮化矽粉末)的 SEM 圖像。拍攝時使用以下裝置。

·使用機器

掃描電子顯微鏡：JSM-IT200(日本電子股份有限公司製造)

拍攝條件設為如以下般。

加速電壓：5.0 kV

訊號：SED

照射電流：Std.-PC55

拍攝倍率：1000 倍

【0058】 對於 SEM 圖像，藉由圖像處理軟體圖像 J (Image J) (美國國立衛生研究所 (National Institute of Health) 製造)，以 SEM 圖像中的任意 20 個氮化矽粒子為評價對象，求出縱橫比。將氮化矽粒子的最大直徑設為長徑，將與長徑正交的方向上的粒徑設為短徑。對於任意的 20 個氮化矽粒子，測定長徑與短徑，對於各粒子，求出短徑相對於長徑之比 (短徑/長徑)。將該些比的算術平均值設為氮化矽粒子的平均縱橫比 (在表 2 中表述為「縱橫比」)。

【0059】 (5) L2/L1 為 1% 以下的氮化矽粒子的最大粒徑 (單晶粒子的最大粒徑)

使用試樣 (氮化矽粒子) 製作剖面觀察用試樣。於剖面觀察用試樣的製作中，於對氮化矽粒子進行樹脂包埋後，利用金剛石切割機將樹脂與氮化矽粒子切斷。其後，在剖面上蒸鍍 Pt 作為保護膜，利用 Ar 離子研磨進行剖面製備，利用 Cu 雙面膠帶固定於 SEM 試樣台，在無蒸鍍的情況下進行 SEM-EBSD 測定。決定觀察位置，以使兩個以上的氮化矽粒子完全進入觀察區域內 (即，以使兩個以

上的氮化矽粒子不與觀察區域的框接觸)。測定是利用 β 型氮化矽粒子進行。

【0060】 在樣品的預處理及 EBSD 測定中，使用以下機器。

·使用機器

離子研磨裝置：E-3500（日立高新技術股份有限公司製造）

離子濺鍍裝置：E-1030（日立製作所股份有限公司製造）

肖特基（Schottky）掃描電子顯微鏡：SU5000（日立高新技術股份有限公司製造）

背散射電子繞射裝置：維樂希蒂（Velocity）（美泰科（METEK）股份有限公司製造）

【0061】 EBSD 測定的條件設為如以下般。

·測定區域：500.0 μm × 400.0 μm

·加速電壓：15.0 kV

·倍率：×500

·真空度：30 Pa

【0062】 在所獲得的 EBSD 像中，選擇兩個以上的不與觀察區域的框接觸的氮化矽粒子，對於各氮化矽粒子的外緣的長度 L1，算出圖像處理軟體圖像 J（Image J）（美國國立衛生研究所（National Institute of Health）製造）的平均值。另外，亦算出邊界線的合計長度 L2。「邊界線的合計長度 L2」是氮化矽粒子的內部所包含的邊界線的總和，設為不包含氮化矽粒子的外緣。邊界線的合計長度 L2 是將氮化矽粒子內部的粒界的合計長度與（在氮化矽粒子的內

部具有空洞的情況下) 該空洞的內壁的合計長度相加而求出。再者，此處所謂「粒界」及「邊界線」，是指 EBSD 解析的結果為結晶方位差(斜角)超過 15° 的邊界(亦稱為大角粒界)。

【0063】 利用任意 20 個氮化矽粒子各進行一次此種測定，將 L2/L1 為 1% 以下的氮化矽粒子視為單晶粒子，測定其長徑的長度，設為「單晶粒子的最大粒徑」。在所測定的 20 個氮化矽粒子中包含多個單晶粒子的情況下，求出該些的最大粒徑的算術平均值。

(6) β 化率

藉由粉末 X 射線繞射裝置(理學電機製造)獲取試樣(氮化矽粉末)的繞射圖案。測定條件設為如以下般。

- X 射線源：CuK α 射線
- X 射線輸出：45 kV、200 mA
- 石墨單色器
- 繞射角 (2θ)：以 0.02° 為單位對 $2^\circ \sim 90^\circ$ 的範圍進行步進掃描
- 掃描速度：21.7 deg/分鐘

【0064】 在試樣包含氮化矽以外的成分的情況下，藉由將該些成分的波峰與該些成分的標準試樣的對應的波峰進行對比，求出該些成分的比例。在試樣 No.1~試樣 No.4 中，根據所獲得的粉末 X 射線繞射圖案，確認到試樣僅包含 α 型氮化矽與 β 型氮化矽。在此基礎上，藉由加紮拉與梅西耶(Gazzara&Messier)的方法算出試樣中的 β 型氮化矽的比例(β 化率)。

【0065】 (7) 向其他構件的附著性

對藉由聚苯乙烯製的藥匙（藥匙表面的面積： 236 mm^2 ）舀取 1 杯（1 g）的試樣（氮化矽粉末）並分取至其他容器後的向藥匙表面的粉末的附著性以如下方式進行評價。

○：粉末的附著面積小於 5 mm^2

×：粉末的附著面積為 5 mm^2 以上

【0066】 (8) 樹脂組成物（複合物）的熱擴散率

將環氧樹脂（主劑：常溫硬化型埋入樹脂 53 型（三啟公司製造）010-8140、硬化劑：常溫硬化型埋入樹脂 53 型（三啟公司製造）010-8143）與試樣（氮化矽粉末）以 50：50 的調配比（體積比）混合，使用去泡攪拌太郎（新基（Thinky）股份有限公司製造）進行攪拌混合，而獲得環氧樹脂-填料（氮化矽粉末）的複合物。樹脂組成物的填充率為 50 體積%。

【0067】 作為模框，製作在厚度 1 mm 的鋁板上開有 1 cm×10 cm 的矩形孔的模框。以覆蓋模框的矩形孔的方式，將塗有脫模劑的聚對苯二甲酸乙二酯（polyethylene terephthalate，PET）膜（背面側膜）以脫模劑的塗佈面與模框相接的朝向貼附於模框的背面。將攪拌後的複物流入至模框的矩形孔之後，自其上以脫模劑的塗佈面與模框及樹脂組成物相接的朝向貼附塗有脫模劑的 PET 膜（表面側膜）。進而，自表面側膜上，藉由金屬製的輥輕輕加壓，使複合物混合於模框的矩形孔。在表面側膜上載置另一鋁板，在 100°C 下加熱 1 小時，使複合物硬化。硬化完成後放置冷卻，鋁板的溫度

下降至室溫左右後，取下鋁板，進而自硬化後的複合物的兩面分別剝離表面側及背面側 PET 膜，獲得熱擴散率測定用的片狀試樣。

【0068】 對所獲得的片狀試樣測定熱擴散率。

關於熱擴散率，自所述樹脂組成物的片狀試樣，製作縱 10 mm×橫 10 mm×厚度 1 mm 的測定用試樣片，藉由溫度波熱分析法（TWA 法）於室溫下進行測定。作為測定裝置，使用了艾菲思（ai-Phase）公司製造的艾菲思移動裝置（ai-Phase mobile）。

關於熱擴散率，對於一個測定用試樣片，於任意的 3 點進行測定，根據所述 3 點的測定結果，算出平均值。

【0069】 將測定結果彙總於表 2 及表 3 中。

【0070】 [表 2]

試樣 No.	安息角 (°)	振實前體積密度D ₀ (g/cm ³)	振實後體積密度D ₁ (g/cm ³)	壓縮度 (%)	D90-D10 (μm)	D90-D50 (μm)	縱橫比 (短徑/長徑)	單晶粒子的最大粒徑 (μm)	β化率 (%)	
1	48	1.10	1.34	17.9	15.2	8.7	0.76	23.4	100	實施例
2	48	0.82	1.22	32.8	9.3	7.4	0.75	53.8	65	實施例
3	56	1.02	1.50	32.0	15.2	9.5	0.77	45.3	100	實施例
4	40	1.05	1.60	34.4	18.3	15.1	0.87	6.7	100	比較例
5	41	1.37	1.51	9.3	125.2	70.2	0.84	103.3	100	實施例
6	42	1.45	1.59	8.8	83.4	46.8	0.82	103.3	100	實施例
7	41	1.30	1.53	15.0	64.5	41.2	0.68	78.5	100	實施例
8	44	1.39	1.65	15.8	43.6	26.7	0.76	51.9	100	實施例
9	43	1.24	1.72	27.9	37.6	23.2	0.86	30.6	100	實施例
10	46	0.81	1.18	31.3	7.7	5.2	0.56	7.2	100	實施例

【0071】 [表 3]

試樣No.	氮化矽粉末	樹脂組成物	
	附著性	熱擴散率 (m ² /s) (填充率：50體積%)	
1	○	1.10e-6	實施例
2	○	1.08e-6	實施例
3	○	1.09e-6	實施例
4	×	9.51e-7	比較例
5	○	1.92e-6	實施例
6	○	1.61e-6	實施例
7	○	2.09e-6	實施例
8	○	1.48e-6	實施例
9	○	1.12e-6	實施例
10	○	1.29e-6	實施例

【0072】 以下對測定結果進行研究。

滿足本實施形態的必要條件的試樣 No.1～試樣 No.3 及試樣 No.5～試樣 No.10 的氮化矽粉末向其他構件的附著得到抑制。另一方面，不滿足本實施形態的必要條件的試樣 No.4 的氮化矽粉末

向其他構件的附著量多。

另外，包含試樣 No.1～試樣 No.3 及試樣 No.5～試樣 No.10 的樹脂組成物與包含試樣 No.4 的樹脂組成物相比，熱擴散率優異。

【0073】 本申請案伴隨以申請日為 2023 年 3 月 31 日的日本專利申請案、日本專利特願第 2023-058723 號為基礎申請案的優先權主張。日本專利特願第 2023-058723 號藉由參照而併入至本說明書中。

【符號說明】

【0074】

無

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種氮化矽粉末，包含多個氮化矽粒子，且安息角超過 40° 。

【請求項2】 如請求項 1 所述的氮化矽粉末，其中，壓縮度小於 34.4%。

【請求項3】 如請求項 1 所述的氮化矽粉末，其中，自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 90%的粒徑 D90 與自體積基準的累積粒度分佈的微粒側起累積 10%的粒徑 D10 之差為 $150.0\ \mu\text{m}$ 以下。

【請求項4】 如請求項 1 所述的氮化矽粉末，其中，所述氮化矽粒子的短徑相對於長徑的平均縱橫比超過 0.50。

【請求項5】 如請求項 1 所述的氮化矽粉末，其中，內部的邊界線的合計長度 L2 相對於外緣的長度 L1 之比 ($L2/L1$) 為 1%以下的所述氮化矽粒子的最大粒徑為 $6.8\ \mu\text{m}$ 以上。

【請求項6】 一種樹脂組成物，包含：樹脂、以及如請求項 1 至 5 中任一項所述的氮化矽粉末。