(19)国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 118647575 A
(43)申请公布日 2024.09.13

(21)申请号 202380020380.2
(22)申请日 2023.01.31
(30)优先权数据
2022-025349 2022.02.22 JP
(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2024.08.05
(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/JP2023/003085 2023.01.31
(87)PCT国际申请的公布数据
WO2023/162598 JA 2023.08.31
(71)申请人 电化株式会社
地址 日本
(72)发明人 竹田豪
(74)专利代理机构 北京市金杜律师事务所 11256
专利代理师 田川婷
(51)Int.Cl.
C01B 21/064(2006.01)
H01L 23/29(2006.01)
H01L 23/373(2006.01)
C08L 101/00(2006.01)
C08K 3/38(2006.01)

权利要求书1页 说明书13页

(54)发明名称

氮化硼粉末的制造方法、氮化硼粉末及树脂密封材料

(57)摘要

本发明涉及氮化硼粉末的制造方法,其包括脱碳结晶化工序,该脱碳结晶化工序中,通过对包含碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的原料混合物进行烧成来生成氮化硼的一次粒子,得到包含由一次粒子聚集而构成的聚集粒子的粉末,在脱碳结晶化工序中,以原料混合物的总质量为基准,硼源的使用量为55质量%以上,以原料混合物的总质量为基准,碳酸盐的使用量为4质量%以上。

CN 118647575 A

1.氮化硼粉末的制造方法,其包括脱碳结晶化工序,所述脱碳结晶化工序中,通过对包含碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的原料混合物进行烧成来生成氮化硼的一次粒子,得到包含由所述一次粒子聚集而构成的聚集粒子的粉末,

在所述脱碳结晶化工序中,以所述原料混合物的总质量为基准,所述硼源的使用量为55质量%以上,以所述原料混合物的总质量为基准,所述碳酸盐的使用量为4质量%以上。

2.如权利要求1所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,所述脱碳结晶化工序中的烧成温度为1800℃以上,烧成时间为8小时以上。

3.如权利要求1所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,所述脱碳结晶化工序中的烧成温度为2000℃以上,烧成时间为4小时以上。

4.如权利要求1~3中任一项所述的氮化硼粉末的制造方法,其还包括准备所述碳氮化硼粉末的准备工序,

所述准备工序包括:使包含氢氟酸的酸溶液与碳化硼粉末接触而对所述碳化硼粉末进行酸处理的酸处理工序;以及,在氮加压气氛下对酸处理后的所述碳化硼粉末进行烧成的加压氮化工序。

5.如权利要求4所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,

所述酸溶液是包含所述氢氟酸的混酸,

氢氟酸在所述混酸中的全部酸成分中所占的比例为10质量%以上。

6.如权利要求4所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,

所述酸处理工序中的处理温度为60℃以上,

所述酸处理工序中的处理时间为3小时以上,

所述酸溶液的酸浓度为20质量%以上。

7.氮化硼粉末,其包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,

所述氮化硼粉末的取向性指数为15以下,

铀含量为20质量ppb以下。

8.如权利要求7所述的氮化硼粉末,其纯度为98.5质量%以上,平均粒径为10~90μm,

所述聚集粒子的压碎强度为5MPa以上。

9.半导体存储器元件用的树脂密封材料,其包含权利要求7或8所述的氮化硼粉末。

氮化硼粉末的制造方法、氮化硼粉末及树脂密封材料

技术领域

[0001] 本公开文本涉及氮化硼粉末的制造方法、氮化硼粉末及树脂密封材料。

背景技术

[0002] 作为氮化硼粒子的集合体的氮化硼粉末具有润滑性、高导热性、绝缘性等,广泛用于固体润滑材料、导热性填料、绝缘性填料等用途。

[0003] 由于氮化硼粒子(特别是六方晶氮化硼粒子)的导热率的各向异性大,因此研究了通过使氮化硼的一次粒子聚集而制成氮化硼聚集粒子,从而抑制由一次粒子的取向导致的导热率的各向异性(例如,专利文献1等)。

[0004] 现有技术文献

[0005] 专利文献

[0006] 专利文献1:日本特开2016-135731号公报

发明内容

[0007] 发明所要解决的课题

[0008] 作为需要提高导热率的材料之一,可举出半导体存储器元件用的树脂密封材料。在半导体存储器元件用的树脂密封材料中,为了不引起半导体存储器元件的软错误,需要使用不易释放α射线的材料。作为这样的材料,特别希望使用铀含量少的材料。

[0009] 另一方面,如上述专利文献1中公开的聚集粒子,通常含有微量的铀。另外,在其结构上,难以除去进入到聚集粒子内部的铀。因此,在形成聚集粒子后难以降低该粒子中的铀含量。

[0010] 因此,本公开文本的一个方面的目的在于提供铀含量降低的氮化硼粉末的制造方法,该氮化硼粉末包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子。另外,本公开文本的另一个方面的目的在于提供氮化硼粉末,其包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,并且铀含量充分低。另外,本公开文本的另一个方面的目的在于,提供半导体存储器元件用的树脂密封材料,其含有上述方面的氮化硼粉末。

[0011] 用于解决课题的手段

[0012] 本公开文本至少提供下述[1]~[9]。

[0013] [1]氮化硼粉末的制造方法,其包括脱碳结晶化工序,前述脱碳结晶化工序中,通过对包含碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的原料混合物进行烧成来生成氮化硼的一次粒子,得到包含由前述一次粒子聚集而构成的聚集粒子的粉末,在前述脱碳结晶化工序中,以前述原料混合物的总质量为基准,前述硼源的使用量为55质量%以上,以前述原料混合物的总质量为基准,前述碳酸盐的使用量为4质量%以上。

[0014] [2]如[1]所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,前述脱碳结晶化工序中的烧成温度为1800℃以上,烧成时间为8小时以上。

[0015] [3]如[1]所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,前述脱碳结晶化工序中的烧成温

度为2000℃以上,烧成时间为4小时以上。

[0016] [4]如[1]～[3]中任一项所述的氮化硼粉末的制造方法,其还包括准备前述碳氮化硼粉末的准备工序,前述准备工序包括:使包含氢氟酸的酸溶液与碳化硼粉末接触而对前述碳化硼粉末进行酸处理的酸处理工序;以及,在氮加压气氛下对酸处理后的前述碳化硼粉末进行烧成的加压氮化工序。

[0017] [5]如[4]所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,前述酸溶液是包含前述氢氟酸的混酸,氢氟酸在前述混酸中的全部酸成分中所占的比例为10质量%以上。

[0018] [6]如[4]或[5]所述的氮化硼粉末的制造方法,其中,前述酸处理工序中的处理温度为60℃以上,前述酸处理工序中的处理时间为3小时以上,前述酸溶液的酸浓度为20质量%以上。

[0019] [7]氮化硼粉末,其包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,前述氮化硼粉末的取向性指数为15以下,铀含量为20质量ppb以下。

[0020] [8]如[7]所述的氮化硼粉末,其纯度为98.5质量%以上,平均粒径为10～90μm,前述聚集粒子的压碎强度为5MPa以上。

[0021] [9]半导体存储器元件用的树脂密封材料,其包含[7]或[8]所述的氮化硼粉末。

[0022] 发明效果

[0023] 根据本公开文本的一个方面,能够提供铀含量降低的氮化硼粉末的制造方法,该氮化硼粉末包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子。另外,根据本公开文本的另一个方面,能够提供氮化硼粉末,其包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,并且铀含量充分低。另外,根据本公开文本的另一个方面,能够提供半导体存储器元件用的树脂密封材料,其含有上述方面的氮化硼粉末。

具体实施方式

[0024] 本说明书中示例的材料只要没有特别说明,能够单独使用1种或组合使用2种以上。对于组合物中的各成分的含量而言,在属于组合物中的各成分的物质存在多种的情况下,只要没有特别说明,是指组合物中存在的该多种物质的总量。本说明书中,使用“～”示出的数值范围表示包含“～”前后所记载的数值分别作为最小值及最大值的范围。另外,只要没有特别明示,“～”前后所记载的数值的单位相同。在本说明书记载的数值范围中,该数值范围的上限值或下限值也可以替换为实施例中示出的值。另外,分开记载的上限值及下限值可以任意组合。

[0025] 以下,对本公开文本的实施方式进行说明。但是,以下的实施方式为用于说明本公开文本的示例,其主旨并不在于将本公开文本限定于以下的内容。

[0026] ＜氮化硼粉末的制造方法＞

[0027] 一个实施方式涉及的氮化硼粉末的制造方法包括脱碳结晶化工序,前述脱碳结晶化工序中,通过对包含碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的原料混合物进行烧成来生成氮化硼的一次粒子,得到包含由该一次粒子聚集而构成的聚集粒子的粉末。

[0028] 本申请的发明人的研究结果表明,在上述脱碳结晶化工序中,通过使用硼源及碳酸盐并且使它们的使用量为规定量以上,能够降低最终得到的氮化硼粉末中的铀含量。具体而言,若以原料混合物的总质量为基准,硼源的使用量为55质量%以上,以原料混合物的

总质量为基准,上述结晶化工序中的碳酸盐的使用量为4质量%以上,则铀含量降低。

[0029] 一个实施方式涉及的氮化硼粉末的制造方法可以还包括准备上述脱碳结晶化工序中使用的碳氮化硼粉末的准备工序。准备工序例如包括在氮加压气氛下对碳化硼粉末进行烧成的加压氮化工序。准备工序也可以还包括使包含氢氟酸的酸溶液与碳化硼粉末接触而对碳化硼粉末进行酸处理的酸处理工序(第1酸处理工序)。在准备工序包括第1酸处理工序的情况下,在加压氮化工序中,使用经过酸处理工序得到的酸处理后的碳化硼粉末。准备工序也可以还包括使包含氢氟酸的酸溶液与碳氮化硼粉末接触而对碳氮化硼粉末进行酸处理的酸处理工序(第2酸处理工序)。第2酸处理工序中使用的碳氮化硼粉末可以是经过加压氮化工序得到的粉末。在准备工序包括第2酸处理工序的情况下,在脱碳结晶化工序中,使用经过酸处理工序得到的酸处理后的碳氮化硼粉末。通过实施第1酸处理工序及/或第2酸处理工序,能够降低最终得到的氮化硼粉末中的铀含量。因此,在使上述脱碳结晶化工序中的硼源及碳酸盐的使用量分别为上述规定范围的基础上,通过实施第1酸处理工序及/或第2酸处理工序,能够进一步降低最终得到的氮化硼粉末中的铀含量。

[0030] 以下,对氮化硼粉末的制造方法中的各工序详细地进行说明。其中,第2酸处理工序除了使用碳氮化硼粉末来代替碳化硼粉末这一点以外,与第1酸处理工序相同,因此省略第2酸处理工序的说明。

[0031] (准备工序)

[0032] [第1酸处理工序]

[0033] 在第1酸处理工序中,通过使包含氢氟酸的酸溶液与碳化硼粉末(B_4C粉末)接触,能够使碳化硼粒子中的与酸溶液接触的部分溶解。由此,存在于碳化硼粉末中的铀的至少一部分(特别是存在于碳化硼粒子的表面附近的铀)被除去。

[0034] 碳化硼粉末是碳化硼粒子的集合体。碳化硼粉末的纯度(碳化硼的含量)例如优选为97质量%以上。作为碳化硼粉末,可以使用市售的碳化硼粉末,也可以使用另行制备的碳化硼粉末。碳化硼粉末例如能够通过包括下述工序的方法得到:将硼酸和乙炔黑混合后,在非活性气体气氛中于1800~2400℃加热1~10小时,得到碳化硼块的工序;以及,将得到的碳化硼块粉碎后适当进行筛分、清洗、杂质除去、干燥等,制备碳化硼粉末的工序。作为碳化硼粉末,从提高酸处理时的铀的除去效率的观点考虑,优选使用平均粒径10μm以上(例如,10~50μm)的碳化硼粉末。从相同的观点考虑,优选使用比表面积1m^2/g以下(例如,0.05~1m^2/g)的碳化硼粉末。

[0035] 酸溶液是包含氢氟酸作为酸成分的水溶液。虽然有时将氟化氢的水溶液称为氢氟酸,但在本说明书中,将水溶液(酸溶液)中包含的酸成分之中的由HF表示的化合物称为氢氟酸。另外,酸成分被定义为溶解于水并释放氢离子的物质。

[0036] 从提高铀的除去效率的观点考虑,酸溶液中的氢氟酸的浓度可以为0.1质量%以上,也可以为1质量%以上、2质量%以上、3质量%以上或10质量%以上。从制造成本及安全性的观点考虑,酸溶液中的氢氟酸的浓度可以为50质量%以下,也可以为45质量%以下、40质量%以下或30质量%以下。从这些观点考虑,酸溶液中的氢氟酸的浓度例如可以为0.1~50质量%、1~50质量%、2~45质量%、3~40质量%或10~30质量%。需要说明的是,上述氢氟酸的浓度是指以酸溶液的总质量为基准的氢氟酸(HF)的含量。

[0037] 酸溶液也可以是还包括氢氟酸以外的酸成分的混酸。在此情况下,从提高铀的除

去效率的观点考虑,氢氟酸在酸溶液中的全部酸成分中所占的比例可以为4质量%以上,也可以为10质量%以上、20质量%以上、30质量%以上或40质量%以上。从制造成本及安全性的观点考虑,氢氟酸在全部酸成分中所占的比例可以为80质量%以下,也可以为70质量%以下或60质量%以下。从这些观点考虑,氢氟酸在全部酸成分中所占的比例例如可以为4~80质量%、10~70质量%、20~60质量%、30~60质量%或40~60质量%。

[0038] 作为酸溶液中可包含的氢氟酸以外的酸成分,例如可举出盐酸(HCl)、硝酸(HNO_3)、硫酸(HSO_4)等。其中,从提高铀的除去效率的观点考虑,优选使用盐酸。

[0039] 从高效地推进除去的观点考虑,酸溶液中的盐酸的浓度可以为2质量%以上,也可以为3质量%以上、5质量%以上、7质量%以上、10质量%以上、20质量%以上、30质量%以上或40质量%以上。从制造成本及安全性的观点考虑,酸溶液中的盐酸的浓度可以为60质量%以下,也可以为50质量%以下、35质量%以下、30质量%以下或25质量%以下。从这些观点考虑,酸溶液中的盐酸的浓度例如可以为2~60质量%、3~60质量%、5~60质量%、7~60质量%、10~60质量%、20~60质量%、30~60质量%或40~60质量%,也可以为5~35质量%、7~30质量%或10~25质量%。需要说明的是,上述盐酸的浓度是指以酸溶液的总质量为基准的盐酸(HCl)的含量。

[0040] 从提高铀的除去效率的观点考虑,酸溶液的酸浓度可以为2质量%以上,也可以为3质量%以上、5质量%以上、10质量%以上、20质量%以上、30质量%以上或40质量%以上。从制造成本及安全性的观点考虑,酸溶液的酸浓度可以为50质量%以下,也可以为45质量%以下或40质量%以下。从这些观点考虑,酸溶液的酸浓度例如可以为2~50质量%、3~45质量%、5~40质量%、10~50质量%、20~50质量%、30~50质量%或40~50质量%。需要说明的是,上述酸浓度是指以酸溶液的总质量为基准的全部酸成分的含量。

[0041] 使酸溶液与碳化硼粉末接触的方法没有特别限定,例如可举出通过将碳化硼粉末投入酸溶液中等而将碳化硼粉末与酸溶液混合的方法、向碳化硼粉末连续注入酸溶液的方法等。在将碳化硼粉末与酸溶液混合的方法中,从提高铀的除去效率的观点考虑,可以对包含碳化硼粉末和酸溶液的混合液进行搅拌。搅拌例如能够使用搅拌机、电磁搅拌器、分散器等进行。在通过将碳化硼粉末与酸溶液混合的方法进行碳化硼粉末的酸处理的情况下,也可以反复进行多次碳化硼粉末的酸处理。例如,也可以反复进行以下一系列的操作:将碳化硼粉末与酸溶液混合,在经过一定时间后,从酸溶液分离出碳化硼粉末,将分离出的碳化硼粉末再次与新的酸溶液混合。相对于碳化硼粉末100质量份而言,酸溶液的使用量例如可以为80质量份以上,可以为500质量份以下,可以为80~500质量份。

[0042] 从提高铀的除去效率的观点考虑,酸处理工序中的处理温度可以为40℃以上,也可以为60℃以上或75℃以上。从抑制由于氟化氢的挥发导致的处理效率降低的观点及安全性的观点考虑,酸处理工序中的处理温度可以为95℃以下,也可以为92℃以下或90℃以下。从这些观点考虑,酸处理工序中的处理温度例如可以为40~95℃、60~92℃或75~90℃。需要说明的是,上述处理温度表示酸处理时与碳化硼粉末接触的酸溶液的温度。在通过将碳化硼粉末与酸溶液混合的方法进行碳化硼粉末的酸处理的情况下,上述处理温度也可以称为包含碳化硼粉末和酸溶液的混合液的温度。

[0043] 从增加铀的除去量的观点考虑,酸处理工序中的处理时间可以为1小时以上,也可以为2小时以上、3小时以上或5小时以上。从制造成本及安全性的观点考虑,酸处理工序中

的处理时间可以为15小时以下,也可以为12小时以下或10小时以下。从这些观点考虑,酸处理工序中的处理时间例如可以为1～15小时、2～12小时、3～10小时或5～10小时。需要说明的是,上述处理时间表示碳化硼粉末与酸溶液的接触时间。

[0044] 从进一步增加铀的除去量的观点考虑,优选:将酸处理工序中的处理温度设为60℃以上、将酸处理工序中的处理时间设为3小时以上,更优选:将酸处理工序中的处理温度设为60℃以上、将酸处理工序中的处理时间设为3小时以上、将酸溶液的酸浓度设为20质量%以上。

[0045] [加压氮化工序]

[0046] 在加压氮化工序中,通过在氮加压气氛下对碳化硼粉末进行烧成,从而使碳化硼氮化,得到包含碳氮化硼的烧成物。得到的烧成物有以高纯度含有六方晶碳氮化硼的倾向。作为碳化硼粉末,可举出与作为在上述第1酸处理工序中使用的碳化硼粉末示例出的相同的碳化硼粉末。在实施第1酸处理工序的情况下,使用经过第1酸处理工序得到的酸处理后的碳化硼粉末。

[0047] 加压氮化工序中的烧成温度优选比脱碳结晶化工序中的烧成温度高。加压氮化工序中的烧成温度例如可以为1900～2200℃、2000～2200℃或2100～2200℃。通过使烧成温度在上述范围内,能够提高碳氮化硼的结晶性,提高六方晶碳氮化硼的比例。加压氮化工序中的烧成时间在氮化充分进行的范围即可,没有特别限定,例如可以为6～30小时、8～25小时或10～20小时。

[0048] 加压氮化工序中的压力(气氛压力)例如可以为0.6～1MPa、0.7～1MPa或0.8～1MPa。通过使压力在上述范围内,能够抑制制造成本,并且使碳化硼的氮化高效且充分地进行。需要说明的是,上述压力表示表压。

[0049] 加压氮化工序中的氮加压气氛的氮气浓度例如可以为95体积%以上、98体积%以上或99.9体积%以上。氮气浓度的上限值为100体积%。通过使氮气浓度在上述范围内,能够在更温和的条件下进行碳化硼的氮化。需要说明的是,上述氮气浓度是基于标准状态下的体积的浓度。

[0050] 在加压氮化工序中得到的烧成物可以直接用于脱碳结晶化工序,也可以在适当进行粉碎处理、分级处理、清洗处理、加热处理(例如,在含氧气氛下的氧化处理)等后用于脱碳结晶化工序。粉碎处理能够使用球磨机、振动磨机、喷射磨机等一般的粉碎机或破碎机进行。需要说明的是,本说明书中的“粉碎”中也包括“破碎”。

[0051] (脱碳结晶化工序)

[0052] 在脱碳结晶化工序中,通过将碳氮化硼粉末(B_4CN_4粉末)与硼源及碳酸盐一起烧成,能够使碳氮化硼脱碳化,并且提高氮化硼的结晶度。其结果,能够得到包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子的氮化硼粉末(BN粉末)。利用该方法得到的氮化硼粉末中的氮化硼通常为六方晶氮化硼,包含由鳞片状的六方晶氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子。

[0053] 碳氮化硼粉末是碳氮化硼粒子的集合体。碳氮化硼粉末的纯度(碳氮化硼的含量)例如优选为98质量%以上。作为碳氮化硼粉末,可以使用市售的碳氮化硼粉末,也可以使用上述准备工序中准备的碳氮化硼粉末。从提高得到的氮化硼粉末中的六方晶氮化硼的比例的观点考虑,优选使用六方晶碳氮化硼的比例高的碳氮化硼粉末,更优选使用经过上述加

压氮化工序得到的碳氮化硼粉末。

[0054] 作为硼源,例如可举出硼酸、氧化硼等。它们能够单独使用1种或组合使用2种以上。从容易得到一次粒子的生长促进效果的观点及容易降低铀的含量的观点考虑,作为硼源,优选使用硼酸。

[0055] 作为碳酸盐,例如可举出碳酸钠、碳酸钙、碳酸锶等。它们能够单独使用1种或组合使用2种以上。从容易得到一次粒子的生长促进效果的观点及容易降低铀的含量的观点考虑,作为碳酸盐,优选使用碳酸钠。

[0056] 从降低铀含量的观点考虑,硼源的使用量可以为55质量%以上,也可以为57质量%以上或59质量%以上。从提高聚集粒子的压碎强度的观点考虑,硼源的使用量可以为70质量%以下、65质量%以下或60质量%以下。硼源的使用量也可以小于55质量%。但是,若硼源的使用量为50质量%以上,则容易促进氮化硼的一次粒子的生长,容易得到平均粒径为10~90μm、压碎强度为5MPa以上的氮化硼粉末。从上述观点考虑,硼源的使用量可以为50~70质量%、55~70质量%、57~70质量%、59~70质量%、55~65质量%、57~65质量%、59~65质量%、55~60质量%、57~60质量%或59~60质量%。需要说明的是,上述使用量是以原料混合物的总质量为基准的使用量,但以碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的总量为基准的使用量也可以为上述范围。

[0057] 从降低铀含量的观点考虑,碳酸盐的使用量可以为4质量%以上,也可以为5质量%以上或6质量%以上。从提高聚集粒子的压碎强度的观点考虑,碳酸盐的使用量可以为10质量%以下、8质量%以下或6质量%以下。碳酸盐的使用量也可以小于4质量%。其中,若碳酸盐的使用量为1质量%以上,则容易促进氮化硼的一次粒子的生长,容易得到平均粒径为10~90μm、压碎强度为5MPa以上的氮化硼粉末。从上述观点考虑,碳酸盐的使用量可以为1~10质量%、4~10质量%、5~10质量%、6~10质量%、4~8质量%、5~8质量%、6~8质量%、4~6质量%或5~6质量%。需要说明的是,上述使用量是以原料混合物的总质量为基准的使用量,但以碳氮化硼粉末、硼源和碳酸盐的总量为基准的使用量也可以为上述范围。

[0058] 在脱碳结晶化工序中,也可以使用碳氮化硼粉末、硼源及碳酸盐以外的材料,也可以仅使用碳氮化硼粉末、硼源及碳酸盐。

[0059] 脱碳结晶化工序中的烧成温度优选为1800℃以上,也可以为1900℃以上或2000℃以上。通过使烧成温度为1800℃以上,能够使一次粒子的生长更充分地进行。脱碳结晶化工序中的烧成温度优选为2400℃以下,也可以为2200℃以下或2100℃以下。通过使烧成温度为2400℃以下,能够抑制氮化硼粉末的黄变。从上述观点考虑,脱碳结晶化工序中的烧成温度例如可以为1800~2400℃、1900~2200℃或2000~2100℃。需要说明的是,上述烧成温度是指加热(烧成)中的保持温度。加热开始温度没有特别限定,可以是室温(例如,25℃)。在从比保持温度低的温度开始加热的情况下,升温至1000℃之前的升温速度例如可以为1~10℃/分钟,在1000℃以上的升温速度例如可以为0.1~5℃/分钟。

[0060] 脱碳结晶化工序中的烧成时间优选为4小时以上,也可以为6小时以上或8小时以上。通过使烧成时间为4小时以上,能够使一次粒子的生长更充分地进行。脱碳结晶化工序中的烧成时间优选为40小时以下,也可以为30小时以下或20小时以下。通过使烧成时间为40小时以下,能够抑制制造成本的上升。从上述观点考虑,脱碳结晶化工序中的烧成时间例如可以为4~40小时、6~30小时或8~20小时。需要说明的是,上述烧成时间是指在上述烧

成温度(保持温度)下的保持时间。

[0061] 根据本申请的发明人的研究,即使变更脱碳结晶化工序中的烧成条件,也能够降低铀含量。从进一步降低铀含量的观点考虑,优选:烧成温度为1800℃以上、烧成时间为8小时以上,或者烧成温度为2000℃以上、烧成时间为4小时以上,更优选:烧成温度为2000℃以上、烧成时间为8小时以上。

[0062] 脱碳结晶化工序的烧成气氛例如可以是大气或真空,也可以是氮气、氩气体等非活性气体气氛。脱碳结晶化工序的烧成也可以在常压(大气压)下进行,也可以在大气压以上的压力下进行。脱碳结晶化工序中的压力(气氛压力)例如可以为10kPa以上、15kPa以上或20kPa以上。通过使上述压力为10kPa以上,能够抑制硼源、碳酸盐等助剂被除去至体系外,使氮化硼粒子的反应场更均匀。脱碳结晶化工序中的压力(气氛压力)例如可以为80kPa以下、60kPa以下或40kPa以下。通过使上述压力为80kPa以下,能够在脱碳结晶化工序中进一步抑制聚集粒子崩解。从上述观点考虑,脱碳结晶化工序中的压力(气氛压力)可以为10～80kPa、10～60kPa或20～40kPa。需要说明的是,上述压力表示表压。

[0063] 可以对脱碳结晶化工序后的氮化硼粉末适当进行粉碎处理、分级处理、清洗处理等。粉碎处理能够使用球磨机、振动磨机、喷射磨机等一般的粉碎机或破碎机进行。

[0064] 在以上说明的氮化硼粉末的制造方法中,能够得到包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子并且取向性指数为15以下的氮化硼粉末。另外,在以上说明的氮化硼粉末的制造方法中,通过使脱碳结晶化工序中的硼源及碳酸盐的使用量分别为55质量%以上及4质量%以上,以及利用包含氢氟酸的酸溶液对碳化硼粉末进行酸处理等,能够形成由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,并且降低铀含量。这些降低铀含量的手段可以不必全部实施,但通过组合多种手段,能够提供进一步降低铀含量的氮化硼粉末。需要说明的是,在本说明书中,氮化硼粉末的取向性指数是指按照以下的方法测定的值。

[0065] 通过进行针对氮化硼粉末的X射线衍射测定,取得氮化硼粉末的X射线衍射谱图,根据该X射线衍射谱图,取得与(002)面及(100)面对应的峰强度I(002)及I(100)。使用得到的峰强度,算出氮化硼粉末的取向性指数[I(002)/I(100)]。作为X射线衍射装置,例如使用株式会社Rigaku制的“ULTIMA-IV”(制品名)等。

[0066] <氮化硼粉末>

[0067] 一个实施方式涉及的氮化硼粉末包含由氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子,前述氮化硼粉末的取向性指数为15以下,铀含量为20质量ppb以下。氮化硼粉末在聚集粒子之外还可以包含一次粒子。氮化硼的一次粒子例如可以是鳞片状的六方晶氮化硼粒子。

[0068] 上述氮化硼粉末的铀含量为20质量ppb以下,因此可以认为是不易释放α射线的材料。另外,上述氮化硼粉末具有15以下的取向性指数,因此根据上述氮化硼粉末,即使在与树脂混炼时聚集粒子的至少一部分崩解而取向性上升的情况下,也能够抑制在树脂密封材料的散热性等方面产生大的各向异性。因此,上述氮化硼粉末适合用于要求散热性的半导体存储器元件用的树脂密封材料。

[0069] 上述氮化硼粉末例如能够通过在上述实施方式涉及的制造方法中使脱碳结晶化工序中的硼源及碳酸盐的使用量分别为55质量%以上及4质量%以上而得到。

[0070] 氮化硼粉末的铀含量例如也可以为18质量ppb以下、16质量ppb以下、14质量ppb以

下、12质量ppb以下、10质量ppb以下、7质量ppb以下或5质量ppb以下。在使脱碳结晶化工序中的硼源及碳酸盐的使用量分别为55质量％以上及4质量％以上之外，具有这样的铀含量的氮化硼粉末例如能够通过对酸处理工序(第1酸处理工序及/或第2酸处理工序)的实施、酸处理工序中的酸处理条件的变更、脱碳结晶化工序中的烧成条件的变更等进行组合而得到。铀含量的下限值例如可以为5质量ppb。铀含量例如可以为5～20质量ppb、5～18质量ppb、5～16质量ppb、5～14质量ppb、5～12质量ppb、5～10质量ppb或5～7质量ppb。需要说明的是，上述含量是以氮化硼粉末的总质量为基准的含量。

[0071] 本说明书中的氮化硼粉末的铀含量是指按照以下的方法测定的值。

[0072] 根据JCRS108的氮化硼粉末化学分析方法，在硝酸、硫酸及氢氟酸的混合液中，在180℃、18小时的条件下对试样(氮化硼粉末)0.5g进行加压酸分解。然后，使通过加压酸分解得到的溶液在加热板上干燥而使其固化，将得到的固态成分与硝酸混合而制成混合液。接下来，通过将得到的混合液在加热板上加热而使固态成分溶解，得到硝酸溶液，然后使用ICP-MS(电感耦合等离子体质谱仪)测定该硝酸溶液中的铀量。ICP-MS的测定条件如下。

[0073] (ICP-MS测定条件)

[0074] 等离子体模式:低基质模式，调谐模式:He，谱图模式(Spectrummode)峰图案(Peak pattern):1点，重复:3，扫描次数:100，积分时间:1秒

[0075] 从进一步降低由于上述聚集粒子的崩解而产生的影响的观点考虑，取向性指数也可以为12以下或10以下。取向性指数可以为3以上、4以上或6以上，可以为3～15、4～12或6～10。需要说明的是，氮化硼粉末的取向性指数例如能够通过对制造氮化硼粉末时的一次粒子的生长进行调控等来调整。

[0076] 氮化硼粉末的纯度优选为98.5质量％以上，也可以为99质量％以上或99.5质量％以上。氮化硼粉末的纯度的上限值没有特别限制，可以为100质量％，也可以为99.5质量％。

[0077] 本说明书中的氮化硼粉末的纯度是指通过后述的滴定而确定的值。首先，利用氢氧化钠使氮化硼粉末的样品进行碱分解，利用水蒸气蒸馏法从分解液中蒸馏出氨，捕集至硼酸水溶液中。以该捕集液为对象，利用硫酸标准液进行滴定。根据滴定的结果，算出样品中的氮原子(N)的含量。根据得到的氮原子的含量，基于式(I)，能够确定样品中的氮化硼的含量，算出氮化硼粉末的纯度。需要说明的是，氮化硼的式量使用24.818g/mol，氮原子的原子量使用14.006g/mol。

[0078] 样品中的氮化硼的含量[质量％]＝氮原子(N)的含量[质量％]×1.772…(I)

[0079] 从与树脂混炼时不易崩解的观点考虑，氮化硼粉末中包含的聚集粒子优选具有5MPa以上的压碎强度。聚集粒子的压碎强度也可以为8MPa以上或10MPa以上。聚集粒子的压碎强度可以为20MPa以下、15MPa以下或12Mpa以下。通过使聚集粒子的压碎强度为20Mpa以下，从而在与树脂的混炼时聚集粒子的至少一部分适度崩解，容易抑制孔隙的产生。其结果，得到的树脂密封材料具有更高的绝缘性。从上述观点考虑，聚集粒子的压碎强度例如可以为5～20MPa、8～15MPa或10～12MPa。需要说明的是，聚集粒子的压碎强度例如能够通过变更烧成条件等来调整。

[0080] 本说明书中的压碎强度是指按照JIS R 1639-5:2007“精细陶瓷-颗粒特性的测定方法-第5部分:单一颗粒压碎强度”的记载测定的值。1个聚集粒子的压碎强度σ(单位:MPa)是由根据聚集粒子内的位置而变化的无量纲数数α(α＝2.48)、压碎试验力P(单位:N)及粒

径d(单位:μm)的值、使用式σ=α×P/(π×d^2)算出的。对20个以上的聚集粒子进行测定,算出累积破坏率63.2%时的值。对于测定,能够使用微小压缩试验机。作为微小压缩试验机,例如能够使用株式会社岛津制作所制的“MCT-W500”(制品名)等。

[0081] 氮化硼粉末的平均粒径例如可以为90μm以下、80μm以下或70μm以下。通过使平均粒径为90μm以下,能够使由树脂密封材料形成的密封部更薄。氮化硼粉末的平均粒径例如可以为10μm以上、20μm以上或30μm以上。通过使平均粒径为10μm以上,能够进一步提高树脂密封材料的导热率。从这些观点考虑,氮化硼粉末的平均粒径例如可以为10~90μm、20~80μm或30~70μm。

[0082] 本说明书中的平均粒径是指体积基准的累积粒度分布中的50%累积粒径(中值粒径)。更具体而言,是指利用针对粉末的激光衍射散射法得到的体积基准的累积粒度分布中的累积值成为50%时的粒径(D50)。激光衍射散射法是按照ISO 13320:2009中记载的方法进行测定的。对于测定,能够使用激光衍射散射法粒度分布测定装置等。激光衍射散射法粒度分布测定装置例如能够使用BECKMAN COULTER公司制的“LS-13 320”(制品名)等。测定时,不进行利用均化器的处理,而是在存在聚集粒子的状况下进行测定。

[0083] 从树脂密封材料的绝缘性的观点考虑,氮化硼粉末优选纯度为98.5质量%以上、平均粒径为10~90μm、聚集粒子的压碎强度为5MPa以上。

[0084] <树脂密封材料>

[0085] 一个实施方式涉及的树脂密封材料是半导体存储器用的树脂密封材料,其含有上述实施方式涉及的氮化硼粉末。

[0086] 作为树脂密封材料中包含的树脂,能够使用用于树脂密封材料的已知的树脂。作为该树脂,例如可举出液晶聚合物、氟树脂、有机硅树脂、有机硅橡胶、丙烯酸树脂、聚烯烃(聚乙烯等)、环氧树脂、酚醛树脂、三聚氰胺树脂、脲树脂、不饱和聚酯、聚酰亚胺、聚酰胺酰亚胺、聚醚酰亚胺、聚对苯二甲酸丁二醇酯、聚对苯二甲酸乙二醇酯、聚苯醚、聚苯硫醚、全芳香族聚酯、聚砜、聚醚砜、聚碳酸酯、马来酰亚胺改性树脂、ABS(丙烯腈-丁二烯-苯乙烯)树脂、AAS(丙烯腈-丙烯酸橡胶·苯乙烯)树脂、及AES(丙烯腈·乙烯·丙烯·二烯橡胶-苯乙烯)树脂。

[0087] 以树脂密封材料的总体积为基准,树脂的含量例如可以为15体积%以上、20体积%以上或30体积%以上。以树脂密封材料的总体积为基准,树脂的含量例如可以为60体积%以下、50体积%以下或40体积%以下。以树脂密封材料的总体积为基准,树脂的含量例如可以为15~60体积%、20~50体积%或30~40体积%。

[0088] 以树脂密封材料的总体积为基准,氮化硼粉末的含量例如可以为30体积%以上、40体积%以上、50体积%以上或60体积%以上。以树脂密封材料的总体积为基准,氮化硼粉末的含量例如可以为85体积%以下、80体积%以下或70体积%以下。以树脂密封材料的总体积为基准,氮化硼粉末的含量例如可以为30~85体积%、40~85体积%、40~80体积%、50~80体积%、50~70体积%或60~70体积%。

[0089] 树脂密封材料在树脂及氮化硼粉末之外可以还含有使上述树脂固化的固化剂。固化剂能够根据树脂的种类而适当选择。在树脂为环氧树脂的情况下,作为固化剂,例如,可举出苯酚Novolac化合物、酸酐、氨基化合物及咪唑化合物等。相对于树脂100质量份而言,固化剂的含量例如可以为0.5质量份以上或1质量份以上,可以为15质量份以下或10质量份

以下,可以为0.5～15质量份或1～10质量份。

[0090] 实施例

[0091] 参照实施例及比较例更详细地说明本公开文本的内容,但本公开文本不限定于下述实施例。

[0092] ＜实施例1＞

[0093] [碳化硼粉末的准备]

[0094] 使用亨舍尔混合机,将新日本电工株式会社制的原硼酸100质量份与Denka株式会社制的乙炔黑(商品名:HS100L)35质量份混合。将得到的混合物填充于石墨制的坩埚中,利用电弧炉在氩气氛下于2200℃加热6小时,得到块状的碳化硼(B_4C)。利用颚式破碎机将得到的块状物粗粉碎,得到粗粉。利用具有碳化硅制的球(直径:10mm)的球磨机将得到的粗粉进一步粉碎,得到粉碎粉。就利用球磨机的粉碎而言,以转速25rpm进行60分钟。然后,使用网眼为63μm的振动筛对粉碎粉进行分级,制作平均粒径为20μm的碳化硼粉末(B_4C粉末)。碳化硼粉末的比表面积为0.4m^2/g,纯度为98质量%。

[0095] 碳化硼粉末的平均粒径是按照ISO 13320:2009的记载、使用BECKMAN COULTER公司制的激光衍射散射法粒度分布测定装置(装置名:LS-13 320)进行测定的。需要说明的是,不对碳化硼粉末进行均化器处理。在测定粒度分布时,对于使碳化硼粉末分散的溶剂,使用水,对于分散剂,使用六偏磷酸。此时,作为水的折射率,使用数值1.33,作为碳化硼粉末的折射率,使用数值2.6。

[0096] 碳化硼粉末的比表面积是按照JIS Z 8830:2013“基于气体吸附的粉体(固体)的比表面积测定方法”的记载、应用使用了氮气的BET单点法算出的。作为比表面积测定装置,使用Yuasa Ionics株式会社制的比表面积测定装置(装置名:Quantasorb)。需要说明的是,测定是将碳化硼粉末于300℃历经15分钟进行干燥脱气后进行的。

[0097] 碳化硼粉末的纯度由碳量与硼量之和算出。碳量由燃烧红外线吸收法算出,硼量由ICP发射光谱分析算出。

[0098] [加压氮化工序]

[0099] 将制备的碳化硼粉末在碳式电阻加热炉内进行12小时烧成。此时,烧成气氛设为氮气气氛,烧成温度设为2050℃,气氛压力设为0.90MPa。由此,得到碳氮化硼粉末。利用粉末X射线衍射(XRD)法分析碳氮化硼粉末,确认到碳化硼的消失和六方晶碳氮化硼的生成。

[0100] [脱碳结晶化工序]

[0101] 利用亨舍尔混合机,将上述加压氮化工序中得到的烧成物(碳氮化硼粉末)、硼酸和碳酸钠混合,得到原料混合物。以原料混合物的总质量为基准,硼酸的使用量为60质量%,以原料混合物的总质量为基准,碳酸钠的使用量为5质量%。接下来,将得到的原料混合物填充于氮化硼制的坩埚,在电阻加热炉内,在氮气气氛下在1950℃的烧成温度且大气压的压力条件下进行5小时烧成。具体而言,以10℃/分钟的升温速度从室温升温至1000℃后,以2℃/分钟的升温速度从1000℃升温至1950℃,于1950℃保持5小时,由此进行烧成。接下来,利用亨舍尔混合机对得到的粉末进行20分钟破碎后,将得到的粉碎物通过网眼75μm的筛来进行分级,得到包含由六方晶氮化硼的一次粒子聚集而构成的聚集粒子的实施例1的氮化硼粉末。得到的氮化硼粉末的铀含量为19质量ppb,取向性指数为7,纯度为99质量%,平均粒径为40μm,氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度为12Mpa。

[0102] 氮化硼粉末的铀含量通过以下的方法确定。

[0103] 根据JCRS108的氮化硼粉末化学分析方法,在硝酸、硫酸及氢氟酸的混合液中,在180℃、18小时的条件下对试样(氮化硼粉末)0.5g进行加压酸分解。然后,使通过加压酸分解得到的溶液在加热板上干燥而使其固化,将得到的固态成分与硝酸混合而制成混合液。接下来,通过将得到的混合液在加热板上加热而使固态成分溶解,得到硝酸溶液,然后使用ICP-MS(电感耦合等离子体质谱仪)测定该硝酸溶液中的铀量。ICP-MS的测定条件如下。

[0104] (ICP-MS测定条件)

[0105] 等离子体模式:低基质模式,调谐模式:He,谱图模式峰图案:1点,重复:3,扫描次数:100,积分时间:1秒

[0106] 氮化硼粉末的取向性指数是根据基于粉末X射线衍射法的测定结果确定的。首先,向X射线衍射装置(株式会社Rigaku制,商品名:ULTIMA-IV)中附带的具有深度0.2mm的凹部的玻璃样品池的凹部填充氮化硼粉末,使用粉末试样成型机(株式会社Amenatech制,商品名:PX700)在设定压力M下压制,由此调整测定样品。在利用上述成型机压制的填充物的表面不平滑的情况下,手动使其平滑后进行测定。对测定样品照射X射线,进行基线校正后,算出氮化硼的(002)面与(100)面的峰强度比,基于该数值确定取向性指数[I(002)/I(100)]。

[0107] 氮化硼粉末的纯度是通过以下的方法确定的。首先,利用氢氧化钠使氮化硼粉末进行碱分解,利用水蒸气蒸馏法从分解液中蒸馏出氨,捕集至硼酸水溶液中。以该捕集液为对象,利用硫酸标准液进行滴定。根据滴定的结果,算出氮化硼粉末中的氮原子(N)的含量。根据得到的氮原子的含量,基于式(1),确定氮化硼粉末中的氮化硼的含量,算出氮化硼粉末的纯度。需要说明的是,氮化硼的式量使用24.818g/mol,氮原子的原子量使用14.006g/mol。

[0108] 氮化硼粉末中的氮化硼(BN)的含量[质量%]=氮原子(N)的含量[质量%]×1.772…(1)

[0109] 氮化硼粉末的平均粒径是按照ISO 13320:2009的记载,使用BECKMAN COULTER公司制的激光衍射散射法粒度分布测定装置(装置名:LS-13 320)测定的。需要说明的是,不对氮化硼粉末进行均化器处理。在粒度分布的测定时,对于使氮化硼粉末分散的溶剂,使用水,对于分散剂,使用六偏磷酸。此时,作为水的折射率,使用数值1.33,作为氮化硼粉末的折射率,使用数值1.80。

[0110] 聚集粒子的压碎强度是按照JIS R 1639-5:2007“精细陶瓷-颗粒特性的测定方法-第5部分:单一颗粒压碎强度”的记载测定的。对于测定,使用微小压缩试验机(株式会社岛津制作所制,制品名“MCT-W500”)。需要说明的是,对20个以上的聚集粒子进行测定,算出累积破坏率63.2%时的值。

[0111] <实施例2~4>

[0112] 将脱碳结晶化工序中的烧成温度及/或烧成时间如表1所示进行变更,除此以外,与实施例1同样地分别得到实施例2~4的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表1。

[0113] <实施例5>

[0114] 以转速100rpm进行100分钟[碳化硼粉末的准备]中的利用球磨机的粉碎,使用网

眼34μm的振动筛进行后续的分级,以及使用网眼45μm的筛进行[脱碳结晶化工序]中的破碎后的分级,除此以外,与实施例1同样地得到实施例5的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表1。

[0115] ＜比较例1～2＞

[0116] 将脱碳结晶化工序中的硼酸及碳酸钠的使用量(原料混合物的总质量基准)变更为表1所示的值,除此以外,与实施例1同样地分别得到比较例1～2的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表1。

[0117] [表1]

[0118]

		实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	实施例5	比较例1	比较例2
脱碳结晶化	硼酸(质量%)	60	60	60	60	60	35	65
	碳酸钠(质量%)	5	5	5	5	5	5	0.5
	烧成温度(℃)	1950	2025	1950	2025	1950	1950	1950
	烧成时间(h)	5	5	10	10	5	5	5
BN粉末	铀含量(质量ppb)	19	15	14	10	15	45	25
	取向性指数	7	7	7	7	14	7	7
	纯度(质量%)	99	99	99	99	99	98	99
	平均粒径(μm)	40	40	40	40	13	40	40
	压碎强度(Mpa)	12	12	12	12	10	12	12

[0119] ＜实施例6＞

[0120] [酸处理工序]

[0121] 对与实施例1同样地准备的碳化硼粉末进行酸处理。具体而言,首先,置备与实施例1同样地准备好的碳化硼粉末。接下来,准备将氢氟酸溶液与盐酸溶液混合而成的酸溶液。酸溶液的酸浓度为40质量%,酸溶液中的氢氟酸与盐酸的质量比(HF与HCl的质量比)为1:1(即,酸溶液中的氢氟酸浓度及盐酸浓度均为20质量%)。接下来,将酸溶液加热保持在80℃,向其中投入碳化硼粉末,于80℃搅拌5小时。由此,使碳化硼粉末与酸溶液接触,进行碳化硼粉末的酸处理。将搅拌后进行倾析、追加新的酸溶液来进行酸处理的操作重复15次。然后,通过对浆料进行干燥,得到酸处理后的碳化硼粉末。通过实施例1中记载的方法对得到的碳化硼粉末的平均粒径及纯度进行测定,结果平均粒径为20μm,纯度为99质量%。

[0122] 接下来,使用上述酸处理后的碳化硼粉末作为碳化硼粉末,除此以外,与实施例1同样地进行加压氮化工序及脱碳结晶化工序,得到实施例6的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表2。

[0123] ＜实施例7＞

[0124] 将脱碳结晶化工序中的烧成温度及烧成时间如表2所示进行变更,除此以外,与实施例6同样地得到实施例7的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、

取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表2。

[0125] ＜实施例8＞

[0126] 将酸处理工序中的酸溶液的浓度、处理温度(碳化硼粉末与酸溶液的混合液的温度)及处理时间(搅拌时间)变更为表2所示的值,除此以外,与实施例7同样地得到实施例8的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表2。需要说明的是,与铀同样地进行分析,结果钍量为4质量ppb。

[0127] ＜实施例9＞

[0128] 将酸处理工序中的酸溶液的浓度、酸溶液的配合、处理温度(碳化硼粉末与酸溶液的混合液的温度)及处理时间(搅拌时间)变更为表2所示的值,除此以外,与实施例6同样地得到实施例9的氮化硼粉末。另外,与实施例1同样地对氮化硼粉末的铀含量、取向性指数、纯度及平均粒径、以及氮化硼粉末中的聚集粒子的压碎强度进行测定。将结果示于表2。

[0129] [表2]

[0130]

		实施例6	实施例7	实施例8	实施例9
酸处理	酸溶液的浓度(质量%)	40	40	48	10
	酸溶液的配合(质量比)	HF:HCl 1:1	HF:HCl 1:1	HF:HCl 1:1	HF:HCl 0.05:1
	处理温度(℃)	80	80	85	50
	处理时间(h)	5	5	8	2
脱碳结晶化	硼酸(质量%)	60	60	60	60
	碳酸钠(质量%)	5	5	5	5
	烧成温度(℃)	1950	2025	2025	1950
	烧成时间(h)	5	10	10	5
BN粉末	铀含量(质量ppb)	10	5	1	13
	取向性指数	7	7	7	7
	纯度(质量%)	99.5	99.5	99.5	99
	平均粒径(μm)	40	40	40	40
	压碎强度(Mpa)	12	12	12	12