202440464

(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 202440464 A

(43)公開日： 中華民國 113 (2024) 年 10 月 16 日

(21)申請案號：112150789 (22)申請日： 中華民國 112 (2023) 年 12 月 26 日

(51)Int. Cl.： *C01F7/02 (2022.01)* *C01F7/023 (2022.01)*

C08K3/22 (2006.01)

(30)優先權：2022/12/28 日本 2022-211968

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

(72)發明人：中山篤 NAKAYAMA, ATSUSHI (JP) ；李松起 LEE, SONGKI (KR) ；榊祥太 SAKAKI, SHOTA (JP) ；松尾祥史 MATSUO, YOJI (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：5 項 圖式數：2 共 23 頁

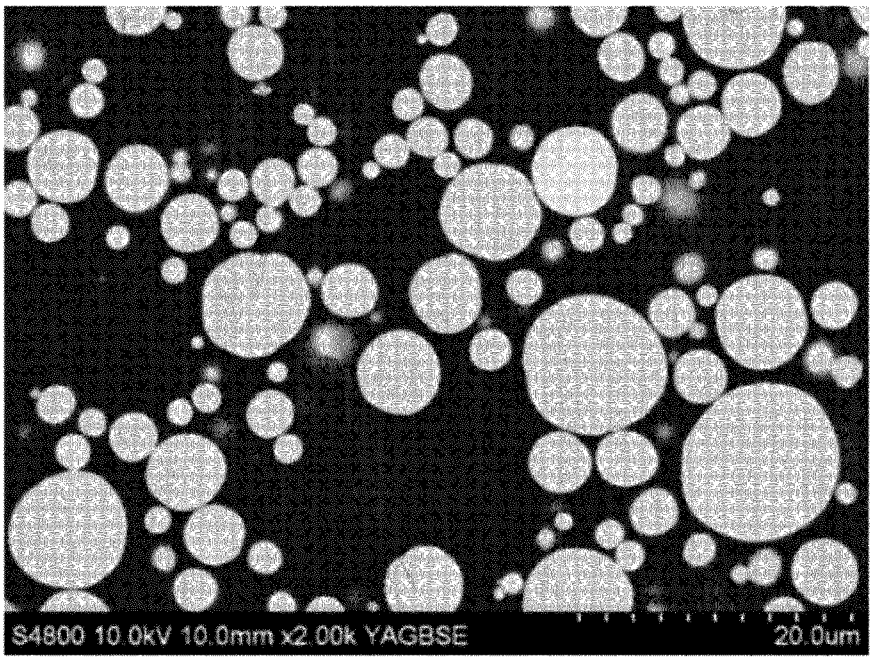
(54)名稱

氧化鋁粉末及樹脂組合物

(57)摘要

本發明之氧化鋁粉末之相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率為 30 質量%以下，且α型結晶相之比率為 50 質量%以下，自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積 50%之圓度 C50 為 0.90 以上，進而，自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積 90%之粒徑 D90 未達 20 μm。

指定代表圖：



【圖1】

202440464

【發明摘要】

【中文發明名稱】

氧化鋁粉末及樹脂組合物

【中文】

本發明之氧化鋁粉末之相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率為30質量%以下，且α型結晶相之比率為50質量%以下，自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50為0.90以上，進而，自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90未達20 μm。

【指定代表圖】

圖1

【代表圖之符號簡單說明】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

氧化鋁粉末及樹脂組合物

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種氧化鋁粉末及使用其之樹脂組合物。

【先前技術】

【0002】 藉由對電子零件通電而產生之熱容易對電子零件之性能產生不良影響，故期望快速散熱。因此，例如期望構成包圍IC晶片之半導體密封材之材料表現出高導熱性以便散熱。用於散熱之導熱性構件通常使用包含導熱性粉末及樹脂之複合材料作為材料，並使用表現出導熱性之氧化鋁粉末作為導熱性填料。

【0003】 例如，專利文獻1中揭示有一種球狀之α氧化鋁粉末，其特徵在於平均球形度為0.93以上，且晶體形態之α率為95%以上。藉由將該球狀之α氧化鋁粉末調配於樹脂或橡膠等中，能夠高密度地調配，並且α晶體形態之比率較大，所得之組合物表現出優異之導熱性。作為上述α氧化鋁粉末之製造方法，專利文獻1中揭示有：於用火焰對金屬鋁粉末或氧化鋁粉末進行熱處理，使其熔融軟化後一面冷卻一面導入捕獲系統來回收氧化鋁粉末之方法中，使上述火焰中之熱處理物於冷卻前通過溫度800～500℃之區域一次，使其固化後，通過更高溫之950～1500℃之區域，藉此提高α率。

【0004】 又，作為即便於高度填充於樹脂中之情形時流動特性亦較高，適於填充劑之球狀氧化鋁粉末，專利文獻2中揭示有：一種球狀氧化鋁粉末，其藉由X射線繞射於2θ＝45.6°檢測到之δ相峰強度與於2θ＝44.8°

檢測到之θ相峰強度之比(δ相峰強度/θ相峰強度)為1.0以上，平均球形度為0.90以上，平均粒徑為100 μm以下。又，專利文獻2中揭示有：於使氧化鋁原料熔融後，用乾冰進行急冷處理，藉此能夠獲得即便於高度填充於樹脂中之情形時，亦能夠向樹脂組合物賦予較高之流動特性之上述球狀氧化鋁粉末。

先前技術文獻

專利文獻

【0005】 專利文獻1：國際公開第2008/053536號

專利文獻2：日本專利特開2011-102215號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

【0006】 專利文獻1之技術為了提昇球狀之氧化鋁之導熱性，需要進行火焰熔融後之熱處理。又，專利文獻2之技術為了提昇流動性，需要進行火焰熔融後之急冷，任一種技術均需要進行火焰熔融後之進一步處理。又，認為要確保更優異之導熱性、及與樹脂混合時之更優異之流動性，需要進一步研究。

【0007】 本發明係鑒於上述情況而完成者，其目的在於提供一種導熱性較高且與樹脂混合時之流動性優異並且能夠容易地製造之氧化鋁粉末、及含有該氧化鋁粉末之樹脂組合物。

[解決問題之技術手段]

【0008】 本發明之態樣1係一種氧化鋁粉末，

其相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率為30質量%以下，且α型結晶相之比率為50質量%以下，

自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50為0.90以上，

進而，自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90未達20 μm。

【0009】 本發明之態樣2係如態樣1所記載之氧化鋁粉末，

其自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積5%之圓度C5為0.83以上。

【0010】 本發明之態樣3係如態樣1或2所記載之氧化鋁粉末，

其自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積50%之粒徑D50未達10 μm。

【0011】 本發明之態樣4係如態樣1至3中任一項所記載之氧化鋁粉末，

其鈾含量與釷含量分別未達10質量ppb。

【0012】 本發明之態樣5係一種樹脂組合物，

其含有如態樣1至4中任一項所記載之氧化鋁粉末。

[發明之效果]

【0013】 根據本發明，可提供一種導熱性較高且與樹脂混合時之流動性優異並且能夠容易地製造之氧化鋁粉末、及含有該氧化鋁粉末之樹脂組合物。

【圖式簡單說明】

【0014】 圖1係實施例中所使用之氧化鋁原料粉末1之SEM照片之一例。

圖2係實施例中所使用之氧化鋁原料粉末2之SEM照片之一例。

【實施方式】

【0015】 本發明人等為了獲得導熱性較高且與樹脂混合時之流動性優異並且能夠容易地製造之氧化鋁粉末而反覆進行銳意研究。結果發現，只要控制氧化鋁粉末之相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率與α型結晶相之比率，尤其是將δ型結晶相之比率抑制為一定以下，進而將自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50、及自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90設於特定範圍內即可。以下，對本實施方式之氧化鋁粉末進行詳細描述。

【0016】 [氧化鋁粉末]

[相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率與α型結晶相之比率]

電子零件中所產生之熱近年來因高積體化而增加，對用於散熱之構件所使用之樹脂組合物要求表現出更高之導熱性。先前，認為要提高氧化鋁粉末之導熱性，較佳為於晶體結構中提高α型結晶相之比率。然而，本發明人等為了獲得更高導熱性之氧化鋁粉末，對氧化鋁粉末之晶體結構與導熱性之關係進行了銳意研究，結果首先發現，於晶體結構中，相較於α型結晶相，δ型結晶相會對氧化鋁粉末之導熱性產生更大影響，要進一步提高氧化鋁粉末之導熱性，有效的是抑制δ型結晶相之比率。並且發現，要達成所需之導熱率，需要將相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率設為30質量%以下。δ型結晶相之比率較佳為25質量%以下，更佳為20質量%以下，進而較佳為15質量%以下。就提高導熱率之觀點而言，δ型結晶相之比率越小越佳，可為1質量%以上。

【0017】 本實施方式之氧化鋁粉末如上所述，要提高導熱性，只要相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率為30質量%以下即可，α型結晶相之

比率與先前之高α率氧化鋁粉末不同，為50質量%以下即可。α型結晶相之比率進而可為40質量%以下，進而可為30質量%以下，更進而可為20質量%以下。

【0018】 只要上述α型結晶相與δ型結晶相之比率滿足上述範圍即可，除該等α型結晶相及δ型結晶相以外之結晶相，例如θ型結晶相、κ型結晶相之比率任意。再者，就進一步提高導熱性之觀點而言，本實施方式之氧化鋁粉末之(δ型結晶相之比率/θ型結晶相之比率)例如較佳為設為未達0.5。

【0019】 相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率與α型結晶相之比率如後述之實施例所示，係對氧化鋁粉末之粉末X射線繞射圖案進行里特沃爾德(Rietveld)分析而求出。再者，里特沃爾德分析可不按照上述實施例中所進行之方法，而使用由利用各種放射源之各種粉末X射線繞射裝置所得之圖案，並藉由Rietan-FP、Rietan-2000、JADE、JANA等各種粉末X射線分析軟體來計算。

【0020】 [自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50]

本實施方式之氧化鋁粉末之自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50為0.90以上。本實施方式之氧化鋁粉末由於如上所述圓度較高，故而與樹脂混合時之流動性較高，與樹脂之混練性良好，且亦能夠提高混練後之樹脂組合物(複合材料)之流動性。因此，例如為了製造半導體密封材，於將混練後之熔融之樹脂組合物(複合材料)注入內部設置有設定有IC晶片之基板之模具時填充至較細之間隙中，能夠抑制產生孔隙等缺陷。

【0021】[自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積5%之圓度C5]

本實施方式之氧化鋁粉末之自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積5%之圓度C5較佳為0.83以上。本實施方式之氧化鋁粉末抑制低圓度之粒子之比率，較佳為上述圓度C5為0.83以上，藉此能夠進一步提高與上述樹脂混合時之流動性。上述圓度C5可未達0.90。

【0022】上述圓度C50與上述圓度C5可藉由後述之實施例中記載之方法而求出。

【0023】[自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90]

本實施方式之氧化鋁粉末之自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90未達20 μm。近年來，因半導體之小型化、佈線間距之狹小化，對散熱構件中所包含之散熱填料要求粒徑較小。本實施方式之氧化鋁粉末最適合作為上述粒徑較小之散熱填料。D90較佳為15 μm以下。

【0024】[自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積50%之粒徑D50]

本實施方式之氧化鋁粉末之自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積50%之粒徑D50較佳為未達10 μm。本實施方式之氧化鋁粉末之粒徑D90如上所述較小，並且表示氧化鋁粉末之平均粒徑之D50亦滿足較佳為未達10 μm，藉此能夠提供更適於上述粒徑較小之散熱填料之氧化鋁粉末。D50更佳為8 μm以下。D50之下限值例如可例舉0.5 μm以上。

【0025】上述D90與D50可藉由後述之實施例中記載之方法而求

出。

【0026】[鈾含量及釷含量]

本實施方式之氧化鋁粉末較佳為鈾含量及釷含量分別未達10質量ppb。本實施方式之氧化鋁粉末藉由如上所述抑制鈾含量及釷含量，能夠降低α射線量，並能夠於半導體用途中，消除由該α射線所導致之作動錯誤。鈾含量及釷含量分別較佳為5質量ppb以下。上述鈾含量及釷含量可藉由後述之實施例中記載之方法來測定。

【0027】本實施方式之氧化鋁粉末例如能夠良好地用作半導體密封材所包含之散熱填料。如上所述，近年來，半導體之小型化、佈線間距之狹小化正在發展，本實施方式之氧化鋁粉末例如適合用作小型半導體密封材所包含之粒徑較小之散熱填料。又，即便於提高作為樹脂組合物中所包含之散熱填料的氧化鋁粉末之比率之情形時，由於氧化鋁粉末之圓度較高，且含有氧化鋁粉末之樹脂組合物之流動性較高，故而能夠將樹脂組合物填充至較細之間隙中，例如能夠良好地製造小型半導體密封材。即，藉由將本實施方式之氧化鋁粉末用作主要填料，能夠兼顧半導體密封材之導熱性提昇、及製造半導體密封材時所需之高流動性。進而，由於較佳為抑制氧化鋁粉末之鈾含量及釷含量，故而α射線量較少，能夠防止含有該氧化鋁粉末例如作為散熱填料之半導體密封材之軟錯誤。

【0028】[氧化鋁粉末之製造方法]

製造本實施方式之氧化鋁粉末之方法只要能夠獲得具有上述結晶相、圓度分佈及粒度分佈之氧化鋁粉末即可，並無特別限定。作為製造本實施方式之氧化鋁粉末之方法之一例，可例舉藉由如下所示之方法來製造。首先，對構成氧化鋁粉末之氧化鋁原料粉末之製造方法進行說明。詳

細而言，對使原料氧化鋁火焰熔融來製造氧化鋁原料粉末之方法進行說明。氧化鋁粉末可僅由用下述方法製造之氧化鋁原料粉末構成，亦可將用下述方法製造之氧化鋁原料粉末與用其他方法製造之氧化鋁原料粉末以滿足規定之結晶相、圓度分佈及粒度分佈之方式混合而得。

【0029】(供於火焰熔融之原料氧化鋁)

供於火焰熔融之原料氧化鋁藉由公知之方法來製造。例如可例舉拜耳法、銨礬法、氫氧化物法(AACH(Ammonium Aluminum Carbonate Hydroxide：碳酸氫鋁銨)法)、溶劑萃取法、有機鋁水解法(鋁烷氧化物法)等。

【0030】於拜耳法之情形時，能夠對由鋁礬土所得之氫氧化鋁進行燒成來製造原料氧化鋁。又，根據銨礬法、AACH法、溶劑萃取法、鋁烷氧化物法，能夠製造鈾含量及釷含量較少之高純度之原料氧化鋁，故較佳。若將用該等方法製造之鈾含量及釷含量分別抑制為未達10質量ppb之原料氧化鋁用於製造氧化鋁粉末，則能夠獲得鈾含量及釷含量被抑制之氧化鋁粉末，故較佳。

【0031】(供於火焰熔融之原料氧化鋁之粉碎)

對供於火焰熔融之原料氧化鋁進行粉碎以便進行火焰熔融而容易地獲得所需之尺寸之氧化鋁原料粉末。原料氧化鋁之粉碎例如可藉由振磨機、珠磨機、球磨機、噴射磨機等公知之方法來進行，可於乾式狀態、濕式狀態之任一狀態下進行粉碎。

【0032】上述粉碎中，使用表面保護劑。表面保護劑不僅會保護粉碎後之氧化鋁粉末之表面，亦能夠具有使氧化鋁粉末之表面去活化之功能。藉由使表面去活化之功能，能夠減少氧化鋁粉末彼此之凝集，適於使

用易凝集之BET比表面積較高之原料氧化鋁，於火焰熔融後獲得目標粒徑之氧化鋁原料粉末。作為適宜之表面保護劑，例如可例舉：甲醇、乙醇、1-丙醇、2-丙醇等一元醇類；乙二醇、聚乙二醇、丙二醇、聚丙二醇等二醇類；三乙醇胺等胺類；棕櫚酸、硬脂酸、油酸等高級脂肪酸類等。該等表面保護劑中，可單獨使用1種，或組合2種以上使用。該等中，較佳為二醇類，尤其適宜為乙二醇、聚乙二醇、丙二醇、聚丙二醇中之1種以上。

【0033】 關於良好地用作表面保護劑之例如聚乙二醇及聚丙二醇，其分子量並無特別限制，但就添加之容易性而言，較佳為平均分子量為200～600左右之液體者。

【0034】 於將原料氧化鋁設為100質量份時，為了充分發揮表面保護劑之效果，表面保護劑之添加量較佳為設為0.01質量份以上，又，若表面保護劑之添加量過多，表面保護劑之效果亦會飽和，故而較佳為設為10質量份以下。表面保護劑之添加量更佳為0.05～8質量份，進而較佳為0.1～5質量份。

【0035】 供於火焰熔融之原料氧化鋁較佳為氧化鋁一次粒子之凝集體，氧化鋁一次粒子之粒徑例如較佳為1～100 nm。上述氧化鋁一次粒子之粒徑可作為電子顯微鏡照片中之圓當量直徑之算術平均值求出。又，亦可根據BET比表面積來算出上述粒徑。供於火焰熔融之原料氧化鋁較佳為BET比表面積較高。藉由將BET比表面積較高之原料氧化鋁供於火焰熔融，能夠獲得火焰熔融時之熔解殘留較少，且圓度較高之氧化鋁原料粉末。供於火焰熔融之原料氧化鋁之利用氮吸附法所得之BET比表面積較佳為40～500 m^2/g，更佳為100～450 m^2/g。

【0036】 (火焰熔融)

火焰熔融法係指將原料氧化鋁噴霧於火焰中，使其液滴化後進行冷卻固化之方法。根據火焰熔融法，能夠大致維持原料氧化鋁之粒徑而獲得氧化鋁原料粉末。根據本實施方式，使用如上所述高BET比表面積且微細之原料氧化鋁，故而能夠獲得不會產生熔解殘留、微細且圓度較高之氧化鋁原料粉末。

【0037】 上述火焰熔融後，可利用旋風分離器或過濾袋來捕獲粉末並進行分級而獲得所需之粒度分佈之氧化鋁原料粉末。

【0038】 本實施方式之氧化鋁粉末除了僅由用上述方法製造之氧化鋁原料粉末形成以外，亦可將用上述方法製造之氧化鋁原料粉末與用其他方法製造之氧化鋁原料粉末以滿足本實施方式之氧化鋁粉末中所規定之結晶相、圓度分佈及粒度分佈之方式混合而得。根據本實施方式，即便未如先前般進行火焰熔融後之熱處理或火焰熔融後之冷卻控制，亦能夠容易地製造規定之氧化鋁粉末。

【0039】 [樹脂組合物]

藉由將本實施方式之氧化鋁粉末例如用作樹脂組合物用填料，能夠獲得導熱性較高之樹脂組合物(複合材料)。樹脂組合物含有樹脂及本實施方式之氧化鋁粉末。

【0040】 為了確保樹脂組合物之導熱性，樹脂組合物中所含之本實施方式之氧化鋁粉末之比率(調配比率)較佳為60質量%以上。另一方面，就確保樹脂特有之彈性之觀點而言，上述氧化鋁粉末之比率較佳為97質量%以下，更佳為92質量%以下。

【0041】 作為樹脂組合物中使用之樹脂，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1種，亦可併用2種

以上。

【0042】 作為熱塑性樹脂，可例舉：聚乙烯、聚丙烯、乙烯-丙烯共聚物等聚烯烴系樹脂、聚甲基戊烯、聚氯乙烯、聚偏二氯乙烯、聚乙酸乙烯酯、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物、聚乙烯醇、聚乙烯醇縮醛、聚偏二氟乙烯及聚四氟乙烯等氟系聚合物、聚對苯二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯、聚萘二甲酸乙二酯、聚苯乙烯、聚丙烯腈、苯乙烯-丙烯腈共聚物、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物(ABS，Acrylonitrile Butadiene Styrene)樹脂、聚苯-醚共聚物(PPE，Polypheylene ether)樹脂、改性PPE樹脂、脂肪族聚醯胺類、芳香族聚醯胺類、聚醯亞胺、聚醯胺醯亞胺、聚甲基丙烯酸、聚甲基丙烯酸甲酯等聚甲基丙烯酸酯類、聚丙烯酸類、聚碳酸酯、聚苯硫醚、聚碸、聚醚碸、聚醚腈、聚醚酮、聚酮、液晶聚合物、矽酮樹脂、離子聚合物等。

【0043】 作為熱塑性彈性體，可例舉：苯乙烯-丁二烯嵌段共聚物或其氫化物、苯乙烯-異戊二烯嵌段共聚物或其氫化物、苯乙烯系熱塑性彈性體、烯烴系熱塑性彈性體、氯乙烯系熱塑性彈性體、聚酯系熱塑性彈性體、聚胺基甲酸酯系熱塑性彈性體、聚醯胺系熱塑性彈性體等。

【0044】 作為熱硬化性樹脂，可例舉：交聯橡膠、環氧樹脂、酚樹脂、聚醯亞胺樹脂、不飽和聚酯樹脂、鄰苯二甲酸二烯丙酯樹脂等。作為交聯橡膠之具體例，可例舉：天然橡膠、丙烯酸系橡膠、丁二烯橡膠、異戊二烯橡膠、苯乙烯-丁二烯共聚橡膠、腈橡膠、氫化腈橡膠、氯丁二烯橡膠、乙烯-丙烯共聚橡膠、氯化聚乙烯橡膠、氯磺化聚乙烯橡膠、丁基橡膠、鹵化丁基橡膠、氟橡膠、胺基甲酸酯橡膠、及矽酮橡膠。

【0045】 就獲得加工性等特性之觀點而言，較佳為使用聚烯烴系樹

脂、丙烯酸系樹脂、聚醯亞胺系樹脂、聚醯胺系樹脂、聚醯胺醯亞胺系樹脂、環氧系樹脂、酚系樹脂、矽酮樹脂。

【0046】 進而，於該等樹脂組合物中，可視需要於不損害發明之效果之範圍內適當調配塑化劑、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、離型劑等公知之添加劑之一種或兩種以上。

【0047】 對樹脂組合物之製造方法進行說明。可藉由使用通常使用之公知之方法將本實施方式之氧化鋁粉末與樹脂混合來獲得樹脂組合物。例如，於樹脂為液態之情形(例如液態環氧樹脂等)時，可藉由於將液態樹脂、氧化鋁粉末及硬化劑混合後，利用熱或紫外線等使其硬化來獲得樹脂組合物。作為硬化劑、混合方法及硬化方法，可採用公知者及公知之方法。另一方面，於樹脂為固態之情形(例如聚烯烴樹脂或丙烯酸樹脂等)時，可於將氧化鋁粉末與樹脂混合後，利用熔融混練等公知之方法進行混練來獲得目標樹脂組合物。

【0048】 於本實施方式之樹脂組合物之態樣中，可包含：調配含有氧化鋁粉末及樹脂之原料而成之調配物、混合含有氧化鋁粉末及樹脂之原料而成之混合物、使該混合物成形而成之成形物、對混合物或成形物進行硬化處理而成之硬化物。

【0049】 本實施方式之樹脂組合物可良好地用作散熱構件，例如半導體密封材。如上所述，近年來，由半導體之高積體化所致之IC放熱增加，但本實施方式之氧化鋁粉末及含有該氧化鋁粉末之樹脂組合物之導熱性較高，故而即便於將該等用於高積體半導體之情形時，亦能夠良好地釋放所產生之熱。又，由於較佳為抑制氧化鋁粉末之鈾含量及釷含量，故而

α射線量較少，從而能夠抑制含有該氧化鋁粉末例如作為散熱填料之半導體密封材之軟錯誤。

實施例

【0050】 以下，舉出實施例來進一步具體地說明本發明。本發明並不受以下實施例限定，亦能夠於符合前述及後述之主旨之範圍內施加適當變更來實施，其等均包含於本發明之技術範圍內。

【0051】 [氧化鋁原料粉末之製作]

準備下述中記載之氧化鋁原料粉末1及氧化鋁原料粉末2作為氧化鋁原料粉末。

【0052】 (氧化鋁原料粉末1)

使用藉由銨礬法而獲得之γ氧化鋁(根據下述BET比表面積之值所算出之一次粒子之平均粒徑為13 nm)作為原料氧化鋁。該γ氧化鋁之利用氮吸附法所得之BET比表面積為120 m^2/g。向原料氧化鋁中添加作為表面保護劑之4質量%之丙二醇並混合，從而獲得粉碎用粉末。

【0053】 繼而，使用噴射磨機粉碎機(Nippon Pneumatic Mfg股份有限公司製造 水平型噴射磨機粉碎機 PJM-280SP)，於粉碎用粉末之供給速度：30 kg/h、粉碎時之供氣口之表壓力：0.5 MPa之條件下進行處理，從而獲得二次粒子之平均粒徑為2 μm左右之火焰熔融用粉末(供於火焰熔融之原料氧化鋁)。

【0054】 將所得之火焰熔融用粉末投入火焰熔融爐中使其熔融，以獲得球化之氧化鋁粗粉末。火焰熔融爐內之氣體氛圍溫度設定為1250℃。藉由旋風分離器回收所得之氧化鋁粗粉末，並利用旋風分離器分級進行分級處理，獲得氧化鋁原料粉末1(粒徑D50為5.5 μm)。將氧化鋁

原料粉末1之SEM照片之一例示於圖1。再者，氧化鋁原料粉末1之物性與表1所示之由氧化鋁原料粉末1所構成之實施例1之氧化鋁粒子之物性相同。

【0055】 (氧化鋁原料粉末2)

使用東國R&S公司製造之球狀氧化鋁DSP-AN05(粒徑D50為5.2 μm)。將氧化鋁原料粉末2之SEM照片之一例示於圖2。再者，氧化鋁原料粉末2之物性與表1所示之由氧化鋁原料粉末2所構成之比較例1之氧化鋁粒子之物性相同。

【0056】 [氧化鋁粉末之製作]

獲得上述氧化鋁原料粉末1與氧化鋁原料粉末2之調配比率如表1所示之實施例1、實施例2、及比較例1～3之各種氧化鋁粉末。

【0057】 以如下方式求出所得之氧化鋁粉末之各結晶相含有率、累積圓度、粒度等。

【0058】 [氧化鋁粉末之各結晶相含有率]

以如下方式求出氧化鋁粉末之α相、θ相、δ相之存在比率。首先，對氧化鋁粉末進行粉末X射線繞射測定，獲得粉末X射線繞射圖案。粉末X射線繞射測定係以如下方式進行。粉末X射線繞射圖案係使用CuKα放射源之BraggBrentano集中光學系統中設定之Bruker公司製造之XRD裝置D8 Advance，於繞射角2θ為5°以上80°以下之範圍內獲得。

【0059】 對於所獲得之粉末X射線繞射圖案，藉由進行里特沃爾德(Rietveld)分析來算出氧化鋁粉末之α相、θ相、δ相之存在比率(質量比率)。里特沃爾德分析係指將實測之粉末X射線繞射圖案與來自晶體結構模型之模擬圖案進行比較，以兩者之差成為最小之方式對晶體結構模型進行

最佳化之方法。於里特沃爾德分析中，將所得之粉末X射線繞射圖案假設為基於α相、θ相、δ相之3相之混合物者，使用Bruker公司製造之粉末X射線分析軟體TOPAS，對α相、θ相、δ相之各結晶相之存在比率進行最佳化。再者，於本實施方式中，於預先進行之預測定中確認了上述所得之氧化鋁粉末之結晶相大致由α相、θ相、δ相佔據，故而如上所述，以α相、θ相、δ相之3相為對象算出存在比率。

【0060】 [氧化鋁粉末之累積圓度]

按以下步序算出表1所示之各實施例及比較例之氧化鋁粉末之累積圓度並進行評估。

【0061】 首先，使用各氧化鋁粉末來製作剖面觀察用試樣。詳細而言，用環氧樹脂包埋各氧化鋁粉末，使環氧樹脂硬化後，藉由Ar離子研磨製作剖面觀察用試樣。

【0062】 將所得之剖面觀察用試樣固定於SEM試樣台上，獲得SEM圖像。SEM圖像係使用掃描式電子顯微鏡(日立高新技術股份有限公司製造之掃描式電子顯微鏡「S-4800」)，於加速電壓5.0 kV下使用反射電子圖像之檢測器進行拍攝而得。

【0063】 使用圖像處理軟體(例如，自由軟體之ImageJ(https://fiji.sc/))對所獲得之SEM圖像進行二值化處理，並使用下述式(1)，分別算出輪廓所包圍之粒子之面積(式(1)中之「面積」)、及粒子之周長(式(1)中之「周長」)。並且，藉由下式(1)算出1個粒子之圓度。

1個粒子之圓度＝4×π×面積/(周長^2)･･･(1)

【0064】 根據上述測定及計算結果製作個數基準之累積圓度分佈，分別算出按圓度由小到大之順序即自低圓度側起累積5%之圓度C5、累積

50%之圓度C50。

【0065】[氧化鋁粉末之粒度]

氧化鋁粉末之D90(體積基準之累積百分率90%當量粒徑)及D50(體積基準之累積百分率50%當量粒徑)係使用MicrotracBEL(股)製造之「Microtrac MT3300EXII」作為雷射粒度分佈測定裝置，藉由雷射繞射法測定氧化鋁粉末之粒度分佈而求出。使用如下粉末分散液作為測定用之試樣，該粉末分散液係於0.2質量%之六偏磷酸鈉水溶液中，以雷射散射強度變得適當之方式添加作為測定對象之粉末，並於裝置內置超音波40W下進行5分鐘分散處理而成。氧化鋁之折射率設為1.76。

【0066】[氧化鋁粉末之BET比表面積]

使用島津製作所公司製造之「FlowsorbIII 2310」作為比表面積測定裝置，並按照JIS-Z8830(2013)中所規定之方法，藉由氮吸附法一點法求出氮吸附BET比表面積。各測定條件設為如下。

載氣：氦氣/氮氣混合氣體

填充試樣量：0.1 g

試樣之預處理條件：於200℃下處理20分鐘

氮吸附溫度：液態氮溫度(-196℃以下)

氮脫附溫度：室溫(約20℃)

【0067】使用實施例1之氧化鋁粉末，以如下方式求出鈾及釷之各含量、以及α射線量。

【0068】[氧化鋁粉末之鈾及釷之含量]

以如下方式測定實施例1之氧化鋁粉末之鈾及釷之含量。首先，將氧化鋁粉末投入硫酸與磷酸之混合水溶液中，加熱使氧化鋁粉末溶解，從而

製備水溶液。其後，使該水溶液與常用作鈾之萃取劑之磷酸三丁酯之環己烷溶液接觸，萃取該水溶液中所含之鈾。其後，對利用與純水接觸之反萃取而再次轉移至水相之鈾使用ICP-MS藉由U238 amu、Th232 amu之強度進行測定。再者，於校準曲線之製作中，使用SPEX公司製造之標準溶液。上述測定之結果為，由來自銨礬法之氧化鋁原料粉末1所構成之實施例1之氧化鋁粉末之鈾含量為2質量ppb，釷含量未達1質量ppb。

【0069】 [氧化鋁粉末之α射線量]

使用測定裝置model 1950(Alpha sciens公司製造)測定實施例1之氧化鋁粉末之α射線量。試樣之測定面積設為1000cm^2，測定時間設為99小時。其結果為，由來自銨礬法之氧化鋁原料粉末1所構成之實施例1之氧化鋁粉末之α射線量為0.001 counts/(cm^2·h)。

【0070】 [表1]

			實施例1	實施例2	比較例1	比較例2	比較例3
各氧化鋁原料粉末占氧化鋁粉末之比率(體積比率)		氧化鋁原料粉末1	100	80	0	50	20
		氧化鋁原料粉末2	0	20	100	50	80
氧化鋁粉末之物性	粒度	粒度D50(μm)	5.5	5.6	5.2	5.4	5.3
		粒度D90(μm)	9.7	9.3	8.1	8.9	8.4
	BET比表面積(m^2/g)		0.56	0.55	0.58	0.51	0.53
	各結晶相之比率(質量%)	α相	17	16	11	14	13
		θ相	73	59	11	41	25
		δ相	10	25	78	45	62
	圓度	累積5%圓度C5	0.85	0.84	0.71	0.81	0.73
		累積50%圓度C50	0.91	0.91	0.9	0.91	0.91

【0071】 [樹脂組合物之黏度之測定]

(黏度測定用樹脂組合物之製作)

首先，以如下方式製作黏度測定用之樹脂組合物。將表1所示之氧化鋁粉末與Admatechs公司製造之球狀氧化鋁AO-502(粒徑D50為0.52 μm)以成為8：2之比率(質量比率)之方式進行調整。再者，上述球狀氧化鋁

AO-502係除本實施方式之氧化鋁粉末以外之填充用氧化鋁粉末，係用於假定實際使用來實現高填充之氧化鋁小粒子。準備樹脂1(三啟股份有限公司製造之53型環氧主劑)作為樹脂。並且，將表1所示之氧化鋁粉末、球狀氧化鋁AO-502及樹脂1以成為表2所示之調配率(質量比率)之方式進行調配，使用Thinky股份有限公司製造之自轉/公轉攪拌器(ARV-310)進行混合及混練，從而獲得黏度測定用樹脂組合物。

【0072】 (黏度測定用樹脂組合物之黏度之測定)

使用動態黏彈性測定裝置(UBM公司製造之「Rheosol-G3000」)測定所得之黏度測定用樹脂組合物之黏度。使用直徑40 mm之平行板，於間距1 mm、剪切速度1 s^{-1}、100℃下進行測定。將其結果示於表2中。本實施例中，將上述黏度測定用樹脂組合物之黏度未達6.0 Pa·s者評估為流動性良好(○)，將6.0 Pa·s以上者評估為流動性不良(×)。

【0073】 [表2]

		實施例1	實施例2	比較例1	比較例2	比較例3
黏度測定用樹脂組合物(質量%)	氧化鋁粉末	70.4	70.4	70.4	70.4	70.4
	AO-502	17.6	17.6	17.6	17.6	17.6
	樹脂1	12	12	12	12	12
黏度(Pa·s)		4.0	4.7	8.1	6.4	7.7

【0074】 [樹脂組合物之導熱率之測定]

(導熱率測定用樹脂組合物之製作)

將表1所示之氧化鋁粉末與Admatechs公司製造之球狀氧化鋁AO-502(粒徑D50為0.52 μm)以成為8：2之比率(質量比率)之方式進行調整。再者，上述球狀氧化鋁AO-502係除本實施方式之氧化鋁粉末以外之填充用氧化鋁粉末，係用於假定實際使用來實現高填充之氧化鋁小粒子。準備樹脂1(三啟股份有限公司製造之53型環氧主劑)及樹脂2(53型環氧硬化劑(三啟股份有限公司製造))作為樹脂。並且，將表1所示之氧化鋁粉末、球

狀氧化鋁AO-502、樹脂1及樹脂2以成為表3所示之比率(質量比率)之方式進行調配，使用Thinky股份有限公司製造之自轉/公轉攪拌器(ARV-310)進行混合及混練，從而獲得導熱率測定用樹脂組合物。

【0075】 (導熱率測定用樹脂組合物之導熱率之測定)

將所得之導熱率測定用樹脂組合物2 g放入直徑20 mm之模具內，施加30 MPa之壓力使其成型，並於室溫下放置24小時使樹脂硬化。繼而，將硬化體加工為10 mm見方×厚度2 mm之尺寸，進行表面研磨獲得試驗片。使用氙燈閃光導熱分析儀(NETZSCH公司製造，LFA467)，藉由雷射閃光法測定該試驗片之厚度方向之導熱率。測定係於大氣環境下、25℃之條件下進行。將其結果示於表3中。本實施例中，將導熱率為2.3 W/mK以上者評估為導熱性較高，將導熱率未達2.3 W/mK者評估為導熱性較低。

【0076】 [表3]

		實施例1	實施例2	比較例1	比較例2	比較例3
導熱率測定用成型體(質量%)	混合氧化鋁粉末	72	72	72	72	72
	AO-502	18	18	18	18	18
	樹脂1	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7
	樹脂2	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3
導熱率(W/mK)		2.7	2.4	1.9	2.2	2.1

【0077】 根據表1～3可知，本實施方式之氧化鋁粉末即實施例1及實施例2之氧化鋁粉末之結晶相之比率、累積圓度分佈及累積粒度分佈處於特定範圍內，故而於與樹脂混合時流動性較高，且與樹脂混合而得之樹脂組合物之導熱性較高。

【0078】 與之相對，比較例1～3均δ型結晶相之比率較高，與樹脂混合而得之樹脂組合物之導熱率較低。

【0079】 根據本實施方式之氧化鋁粉末，鈾含量及釷含量亦較小，α射線量被充分抑制。因此，若將本實施方式之氧化鋁粉末例如用作導熱

性填料，則能夠實現散熱良好，且能夠防止由α射線所致之作動錯誤之半導體密封材。

【0080】本申請案主張以日本專利申請特願2022-211968號為基礎申請之優先權。特願2022-211968號係藉由參照而併入本說明書中。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】

一種氧化鋁粉末，其相對於全部結晶相之δ型結晶相之比率為30質量%以下，且α型結晶相之比率為50質量%以下，

自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積50%之圓度C50為0.90以上，

進而，自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積90%之粒徑D90未達20 μm。

【請求項2】

如請求項1之氧化鋁粉末，其自個數基準之累積圓度分佈之低圓度側起累積5%之圓度C5為0.83以上。

【請求項3】

如請求項1或2之氧化鋁粉末，其自體積基準之累積粒度分佈之微粒側起累積50%之粒徑D50未達10 μm。

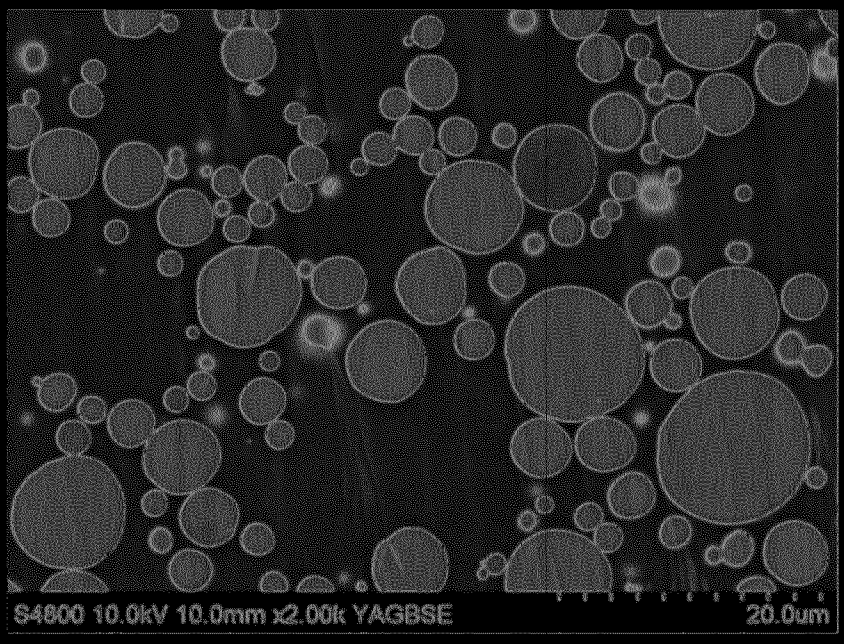
【請求項4】

如請求項1或2之氧化鋁粉末，其鈾含量及釷含量分別未達10質量ppb。

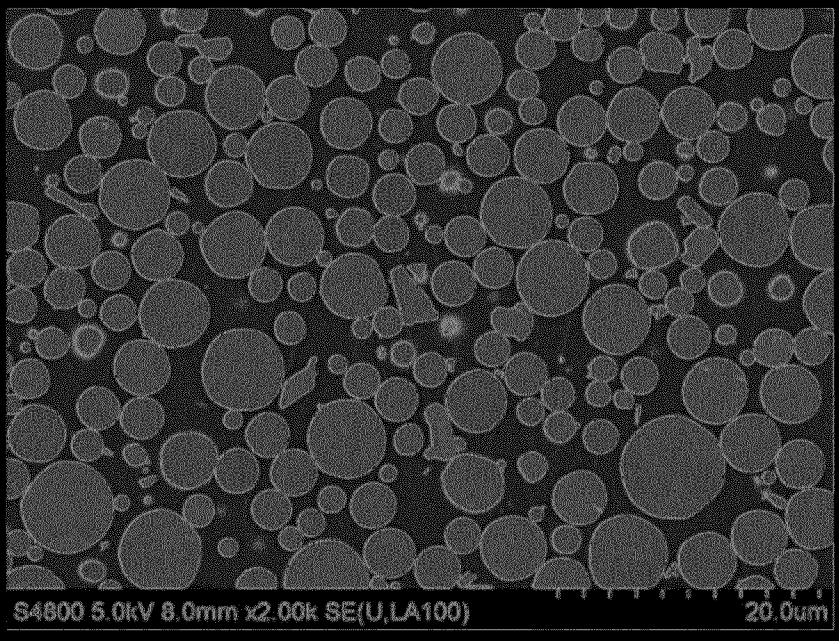
【請求項5】

一種樹脂組合物，其含有如請求項1或2之氧化鋁粉末。

【發明圖式】


S4800 10.0kV 10.0mm x2.00k YAGBSE
20.0um

【圖1】


S4800 5.0kV 8.0mm x2.00k SE(U,LA100)
20.0um

【圖2】