



8812

申請日期	1997, 1, 8
案 號	86100132
類 別	C04B 14/30, 14/32, 38/00

A4
C4

460426

961-3517A

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	高強度氮化矽多孔體及其製法 (88年12月28日修正)
	英 文	HIGH-STRENGTH POROUS SILICON NITRIDE BODY AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME
二、發明 人	姓 名	1. 河合千尋 2. 松浦貴宏 3. 山川晃
	國 籍	1. 日本 2. 日本 3. 日本
	住、居所	1. 兵庫縣伊丹市昆陽北一丁目1番1號 住友電氣工業株式會社伊丹製作所內 2. 同上 3. 同上
三、申請人	姓 名 (名稱)	住友電氣工業股份有限公司 (住友電氣工業株式會社)
	國 籍	日本
	住、居所 (事務所)	大阪府大阪市中央區北浜四丁目5番33號
	代 表 人 姓 名	倉內憲孝

裝

訂

線

460426

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ☒有 ☐無主張優先權
日本

1996年1月9日特願平8-1120

1996年1月9日特願平8-1121

1996年12月3日特願平8-322420(主張優先權)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

有關微生物已寄存於：

，寄存日期：

，寄存號碼：

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明()

1. 發明背景

本發明係有關於一種具有高孔隙率、高強度和優良可切削性之氮化矽多孔體，及其製法。

2. 先前技藝說明

為了妥善應付近年之汽車廢氣及其類似物的環境問題，利用陶瓷多孔體作為各種過濾器、催化劑載體、和高耐熱高強度和高耐熱衝擊之結構材料的用途需求日殷。例如，需要過濾器和催化劑載體來除去汽車廢氣中的 CO_2 、 NO_x 、和黑煙，以及改進輕質量汽車零件以降低能量耗損。

已經有一種氮化矽多孔體(國際專利申請94/27929)被提出可為此種有前景的適當材料。該氮化矽多孔體之孔隙率至少30體積%，且其為高強度、高韌性、高耐熱衝擊性和高耐化學性之高孔隙率多孔體，其中 $\beta-Si_3N_4$ 顆粒係與黏合相互相黏合在一起，且黏合相至少包括一種稀土元素化合物(即Sc、Y或鏷系元素)，造成三維交纏結構。

該多孔體係由 Si_3N_4 粉末與稀土元素氧化物之燒結助劑混合，接著壓實該混合物，再於加壓氣氛下燒結該壓實物而得。該稀土元素氧化物與 Si_3N_4 表面上之 SiO_2 在燒結高溫下透過共熔反應共同形成液相，使 Si_3N_4 粉末部分熔融形成沈澱的柱狀 Si_3N_4 顆粒。在燒結後，在顆粒範圍內的液相係以玻璃相或結晶相存在，而且液相與柱狀 Si_3N_4 顆粒強烈鍵結，致使該 Si_3N_4 多孔

五、發明說明(>)

體有高的強度和高的韌性。此外，該專利還提到 Y_2O_3 是最便宜且被廣泛使用之稀土元素氧化物。

通常 Si_3N_4 陶瓷的燒結會受施加其上，以避免 Si_3N_4 在高溫下昇華之適當氣壓之影響。前述國際專利申請 W094/27929 的方法中，也同樣施有氣壓。例如，溫度越高，為避免昇華發生所施加的壓力也要越高。據此，高至 $1,900^{\circ}C$ 時，最高壓力為 10 大氣壓， $2,000^{\circ}C$ 時，最高壓力為 40 大氣壓， $2,100^{\circ}C$ 時，最高壓力為 100 大氣壓，該等條件可避免昇華發生。前述 W094/27929 中，在燒結期間施加氣壓僅在於避免 Si_3N_4 在高溫發生昇華。

同時，一般結構元件所用的緻密陶瓷(例子包括有氧化鋁、氮化矽和氧化鋯)很難加工，但反觀本發明卻在不須使用特殊工具(如鑽石切割刀)的情況下，就很容易切削，也很容易穿孔成任意形狀。這大大地降低工作成本。另一方面，傳統的多孔體常因孔洞的出現而降低其機械強度，並難以製作成機械構件。在這樣的條件下，希望提供一種具有優良加工性以及足夠強度，以便能製作需要的機械構件。此外，「可切削性」一詞係指基於一般普遍接受的觀念下的此等性質，即多孔體很容易利用普通的碳鋼製成尖銳邊緣鑽子、鋸子等切割工具來切割、分割、穿孔、或鑿溝槽，製作任意形狀，且不會有碎裂、裂痕等，猶如切割木頭一般順利地被加工。

雲母-玻璃陶瓷係由康寧玻璃公司所製造，商標為

五、發明說明(3)

'MACOR'，就切削性而言，其實質僅屬先前技術的材料，被認為切削性不佳。由於該產品包含30至40重量%的 $KHg_3 AlSi_3 O_{10} F_2$ ，但是還是很難用碳鋼切割工具來切割，且在約800°C易於碎裂且軟化變形。因此該陶瓷產品還是有相當多的缺點。

最近已開發出改良強度和可切割性以進一步功能化之玻璃陶瓷材料例子如日本專利公開公報63-134554，日本專利公開公報1-59231，日本專利公開公報62-7649，日本專利公開公報3-88744，和日本專利公開公報5-178641。但是，日本專利公開公報63-134554和日本專利公開公報1-59231 兩篇專利所提出的陶瓷之撓曲強度至多為1,000公斤/公分²，顯然太低，還不能作為結構材料。

另一方面，日本專利公開公報62-7649和，日本專利公開公報3-88744和日本專利公開公報5-178641所揭示之玻璃陶瓷，其強度已經加強至為具最大強度5,000公斤/公分²，且可用鑽子來進行切削之加工。由於該等玻璃陶瓷屬於相對密度很接近於約100%緻密的陶瓷，因此儘管改良了切削性，但還是無法令人滿意。此外，由於製造可結晶玻璃的製程很複雜，此等玻璃陶瓷的成本極高。

此外業已開發出一種玻璃陶瓷，即強度和可加工性均改良的 $Si_3 N_4$ -BN陶瓷多孔體(日本專利公開公報3-141161)。其孔隙率為6至15%，且撓曲強度至多40公斤/毫米²，其可以高速鋼製切割工具來切割。但是，

五、發明說明(4)

88 10 20

因為該陶瓷多孔體的孔隙率還是太低，因此可切削加工性改進地仍不夠完善。

發明總述

鑑於先前技藝，本發明目的在於提供一種具有優良可切削性和可作為輕質結構元件之氮化矽多孔體，而且該多孔體之強度也在保持孔隙率的情況下被進一步地改善，另外本發明還包括製備上述氮化矽多孔體的方法。

根據本發明製備之氮化矽多孔體之方法包括：壓實一壓實體，其組成包括氮化矽粉末、基於氮化矽之含有 2 至 15 重量%之至少一種稀土元素之氧化物、和有機黏合劑，但在壓實時需控制壓實物之氧含量和碳含量；在含氮大氣下，以 1,650 至 2,200℃ 的溫度燒結該壓實物，以得一多孔體，包括柱狀氮化矽微粒和氧化物黏合相且具有由柱狀氮化矽微粒及氧化物黏合相所構成之三維交纏結構，且該多孔體中還含有 0.012 至 0.65 重量比之 SiO_2 /

五、發明說明(5)

(SiO_2 + 稀土元素氧化物)。

在上述製備氮化矽多孔體之方法中，可藉由氣壓至少為50大氣壓、1,650至2,200°C下燒結而進一步地改善強度。特定而言，本發明所得的氮化矽多孔體之氧化物黏合相含有2至15重量% (以氮化矽而言)之至少一種稀土元素之氧化物，該氮化矽多孔體含有0.012至0.65重量比之 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ ，該多孔體之平均孔洞尺寸至多3微米，孔隙率 x (體積%)和三點撓曲強度 y (MPa)滿足下列關係式：

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -8.1x + 610 \text{ (條件為 } 50 \geq x \geq 30 \text{)}.$$

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -6.5x + 530 \text{ (條件為 } 68 \geq x \geq 50 \text{)}.$$

圖式簡述

第1圖顯示滿足本發明氮化矽多孔體之式(1)之孔隙率對三維撓曲強度關係圖的區域。

第2圖顯示滿足本發明氮化矽多孔體之式(2)之孔隙率對三維撓曲強度關係圖的區域。

第3圖係高氣壓下燒結在接觸位所得氮化矽顆粒斷面收縮狀態模型圖，其中：

1 代表柱狀顆粒，而

2 代表接觸位置。

較佳具體實施例之詳細說明

本發明發現控制燒結後所得氮化矽多孔體內所含 SiO_2 和稀土元素氧化物的含量，使得 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 之含量範圍在0.012至0.65重量比之間，是一種既維持孔隙率又有效改進 Si_3N_4 多孔體強度的方法。本發明也發現在燒結時控制氣壓在至少50大氣壓，則在此等高壓下直接經由高氣壓之熱等靜壓(HIP)燒結所得

五、發明說明 (b)

之 Si_3N_4 多孔體，在使用特殊的 HIP 設備下，不會有壓實物之包膠情況發生，因此可進一步改進多孔體的性質。

本發明所加入稀土元素氧化物與存在於 Si_3N_4 粉末表面之 SiO_2 ，在高溫共熔反應中形成液相，熔化部份 Si_3N_4 粉末而如前述沈澱柱狀 Si_3N_4 顆粒。在此關於燒結體中所含之 SiO_2 和稀土元素氧化物之 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 之含量範圍控制在 0.012 至 0.65 重量比之間時，即使在高孔隙率下可以得到一種具高強度之多孔體，其包含呈現良好發展之六角柱型態之 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 結晶。

更特定而言，所得的高強度 Si_3N_4 多孔體，孔隙率 x (體積%) 和三點撓曲強度 y (MPa) 滿足下列關係式：

[數學式 I]

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -4.8x + 360 \text{ (條件為 } 68 \geq x \geq 30 \text{)}.$$

實際上滿足上式 (1) 之區域，示於第 1 圖。

本發明之 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 之重量比例必須控制在 0.012 至 0.65 的範圍間，較佳控制在 0.12 至 0.42 的範圍間。此外，雖然在燒結期間， SiO_2 和稀土元素氧化物與氮氣於 Si_3N_4 於氣體環境下反應會形成例如 Si-N-Y-O 系統的化合物，如 YSiO_2N ， YNSiO_2 ， $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 和 $\text{Y}_2\text{Si}_3\text{N}_4\text{O}_3$ ，其中稀土元素為 Y，而 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 重量比的值係基於所有出現在化合物之 Si 和稀土元素的總量轉換而定。更特定而言，其係使用 SiO_2 含量及稀土元素氧化物含量值來

五、發明說明(7)

計算分別化學分析 SiO_2 和稀土元素的含量，進而轉換得到 Si 重量 % 值和稀土元素重量 %。

當重量比小於 0.012， SiO_2 的含量小，故液相成形溫度高，那麼液相成形溫度會遭遇困難，因此柱狀顆粒難以產生。甚至液相成形，液相黏度太高，而氮化矽難以溶於液相中，因此溶解成分在液相中移動率低，而形成半-噴射多孔體，其中無三維交纏結構生成。因此，所得多孔體雖有高孔隙率卻只有低強度。當重量比超過範圍的另一邊，即超過 0.65，已知稀土元素會促進柱狀顆粒的生長，而當稀土元素的含量太低，雖然已有充分的液相生成，還是難以生成柱狀顆粒，因為其會降低液相形成溫度，而密集度如果小於 30 體積 % 的孔隙率，則孔隙率太低，強度亦太低。

為得到柱狀結晶顆粒為良好整形之六角柱狀，(SiO_2 + 稀土元素氧化物)之重量比較佳範圍為 0.12 至 0.42。在此，可得到進一步加強強度的多孔體。雖然尚未理解其理由，但相信六角柱狀之 Si_3N_4 顆粒的生長會形成整形良好的形態，亦即增加柱狀結晶顆粒的彼此摩擦，而使交纏的情況最佳化。

(SiO_2 + 稀土元素氧化物)重量比的數值，若在稀土元素氧化物的含量固定的情況下，該數值取決於壓實物在燒結前含氧量和含碳量的控制。出現在 Si_3N_4 粉末顆粒表面之氧化膜上的 SiO_2 ，而含碳之有機黏合劑為壓實物的主要成分。據此，必需調整作為氧來源之 SiO_2 和

五、發明說明(8)

作為碳來源之有機黏合劑的含量，以控制上述重量比，且改變燒結前壓實物沈澱條件，如壓實條件，除去黏合的處理條件等。或者， SiO_2 粉末的添加和／藉由加熱可轉變成碳化合物之碳來源（如酚）的添加與混合，也是可行的。

特別描述如下。當壓實物在含氧（常是在空氣中）大氣中燒灼時，會除去黏合劑的處理，碳以一氧化碳或二氧化碳氣體的形式釋出，而藉此降低該壓實物的碳含量，而同時 Si_3N_4 粉末之表面也被氧化而轉變成 SiO_2 。因此，在除去黏合劑處理後， SiO_2 的含量增加。當提高除去黏合劑處理的溫度時，會加長處理時間，當 SiO_2 含量增加時，碳含量降低。在相同的黏合劑除去後，當壓實時有機黏合劑加得越多，碳含量越高。此外，若黏合劑除去溫度超過 $1,000^\circ\text{C}$ ， Si_3N_4 粉末的表面氧化變得容易進行。另一方面，當低於 200°C ，則黏合劑難以從壓實物除去，除非加長處理時間。因此，除去黏合劑處理的溫度範圍希望設在 200 至 $1,000^\circ\text{C}$ 間。

壓實法改變實，也會改變 SiO_2 的含量。例如，利用水為溶劑之擠壓時， Si_3N_4 粉末的表面在擠壓期間會氧化而增加 SiO_2 的含量。另一方面，當利用醇為溶劑之乾燥擠壓時，則 SiO_2 的含量會降低。

在黏合劑除去處理後，在氮氣下加熱燒結時，可適當選擇或組合沈澱壓實物之製備條件（如壓實條件、黏合劑處理條件等）來控制 SiO_2 含量和碳含量，殘餘碳會與

五、發明說明(9)

Si_3N_4 粉末表面上的 SiO_2 反應，而保持壓實物加熱狀態釋出一氧化碳而減少 SiO_2 含量(因碳而降低 SiO_2 的含量)。因此燒結體之 SiO_2 和稀土元素氧化物之(SiO_2 + 稀土元素氧化物)重量比，取決於燒結後之碳含量和氧含量的控制。

本發明所使用的 Si_3N_4 粉末較佳為非晶形或 α -型態，不過 Si_3N_4 粉末也可部分含有 β -型態。若 Si_3N_4 粉末整個都是 β -型態顆粒的話，則無柱狀顆粒形成。同時，若降低 Si_3N_4 粉末顆粒的尺寸的話，則會將低顆粒尺寸並加強強度。當不純元素(例如鋁)混在 Si_3N_4 粉末中的話，或者稀土元素氧化物作為燒結助劑的話，部分 Si_3N_4 有時會轉變成如 $\text{Si}_3\text{Al}_2\text{O}_7\text{N}$ 之化合物，但不致於引起麻煩。

同時，鈮不僅不貴，而且使用容易，而且還可大大改善強度。雖然加入稀土元素的方法，稀土元素或元素常以氧化物粉末的型態加入，但加入稀土元素之烷氧化物也可以，其與 Si_3N_4 粉末混合得更均勻，而且可得到進一步加強強度得多孔體。

適當的燒結溫度為 $1,650$ 至 $2,200^\circ\text{C}$ 。溫度越高，強度改善得越好。但當燒結溫度過高，不僅是經濟效益差，而且顆粒生長會增加孔洞尺寸，而另一方面也很容易降低強度。因此，較佳的燒結溫度必需高至 $2,000^\circ\text{C}$ 。而另一方面，燒結溫度低於 $1,650^\circ\text{C}$ 的話則無柱狀顆粒形成。

五、發明說明(10)

至於燒結期間的氣壓，壓力的施加實質上不會使 Si_3N_4 在燒結時昇華，例如壓力高至約 10 大氣壓時，通常就足夠了。氣壓越高，所得多孔體的強度越高。較佳在至少氣壓為 50 大氣壓的情況下燒結，則可得到高強度以及高孔隙率的多孔體。該效果在至少 100 大氣壓的情況特別明顯。此外，雖然稱為「燒結-HIP」之設備可在至多 100 大氣壓的壓力下燒結，但是 HIP 設備並不限制用途，其壓力可超過 100 大氣壓。壓力上限通常在 2,000 大氣壓，這即 HIP 設備的上限。

目前 HIP 燒結之高氣壓燒結，係用來減少密集陶瓷生產之最後孔洞。更特定來說，第一次燒結（普通壓力下）後，留在陶瓷之孔洞會累積至少 95%，但在 HIP 燒結之高氣壓燒結後，孔隙率會減少。但本發明發現直接在高氣壓燒結前述 Si_3N_4 壓實物且控制 SiO_2 含量，所得到之高強度多孔體，其碳含量和稀土元素氧化物含量均如前文所述。此外，當本發明使用 HIP 燒結時，燒結直接在氣壓下進行且壓實物無包膠形成。

如前述，燒結期間之大氣壓設定為至少 50 大氣壓或更高，那麼可得到更高強度的 Si_3N_4 多孔體，該多孔體之孔隙率 x （體積%）和三點撓曲強度 y (MPa) 滿足下列關係式：

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -8.1x + 610 \text{ (但 } 50 \geq x \geq 30 \text{)}.$$

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -6.5x + 530 \text{ (但 } 68 \geq x \geq 50 \text{)}.$$

實際上滿足上述 (2) 之區域，即為第 2 圖所繪。根據國

五、發明說明 (11)

際專利申請 W0 94/27929 所述方法，第 2 圖黑點為所得之孔隙率和三點撓區強度。

下文用來解釋高壓燒結多孔體之強度增強的原因。相信燒結期間高壓會增加 Si_3N_4 的含量和氮氣溶在液相中的含量，也同時使溶解 Si 和 N 成分之擴散活化，以促進六角柱結晶顆粒斷面相互收縮狀態與其接觸位置，結構中柱狀顆粒 1 之接觸位置為 2，該結構的形成將使得 Si_3N_4 多孔體具有非常高的強度。

根據本發明上述步驟所得 Si_3N_4 多孔體，其中柱狀 Si_3N_4 顆粒與氧化物黏合相為三維交纏，其中氧化物黏合相含有 2 至 15 重量 % (以 Si_3N_4 而言) 之至少一種稀土元素之氧化物。當黏合相之氧化物小於 2 重量 % 的話，柱狀顆粒之整型結構 (即六角形) 的形成不會降低多孔體的強度。另一方面，若顆粒黏合相之成分在強度比較弱的話，則多孔體的強度也會降低。

同時， Si_3N_4 多孔體之平均孔徑尺寸至多 3.5 微米，較佳至少 3 微米，而孔隙率範圍微 30 至 68 體積 %。當平均孔徑尺寸超過 3.5 微米，則強度會降低。平均孔徑尺寸的下限，並不特別限制，因為其取決於 Si_3N_4 粉末起始材料的顆粒尺寸。但是，下限為 0.05 微米時，則可使用商用 Si_3N_4 粉末，但該商用粉末並不用於須特別製備之粉末的例子中。根據本發明，孔隙率低於 30 體積 % 之多孔體，很難製造，因為顆粒生長速率和密集速率之間的關係。當孔隙率超過 68 體積 % 時，則在壓實期間難

五、發明說明(12)

以維持壓實物的形狀，因為孔隙率過高。

雖然前述的 Si_3N_4 多孔體，以結構元件而言具有充分高的強度，但該材料也很容易使用普通碳鋼或合金鋼製之尖銳邊緣之切割工具（如鑽子、鋸子、或切割工具）來切削、切割、穿孔、穿成隧道等形成所需的任意形狀，而不會有碎裂、破裂等情形發生，宛如切割木頭一樣地容易。

此外本發明之 Si_3N_4 多孔體，雖其強度高，但其楊氏模數低，因此具有優良的衝擊吸收度。孔隙率越高，楊氏模數越低。本發明之 Si_3N_4 多孔體的楊氏模數範圍微 15 GPa（孔隙率：68體積%）至 100 GPa（孔隙率：30體積%）。該 Si_3N_4 多孔體，在導熱率方面也很低，所以可作為熱的優良絕緣體。本發明之 Si_3N_4 多孔體特別滿足下列導熱率 z (W/mk) 和孔隙率 x (體積%) 的下列關係：

$$z \geq -0.15x + 9.5$$

此外，當本發明之 Si_3N_4 多孔體的孔隙率變成 40 體積% 或更高的話，則介電常數為 3.6 或更低。在各種陶瓷材料中， Si_3N_4 為低介電常數 (ϵ) 的材料 ($\epsilon = 7.6$)。此外，若孔隙率提高的話，陶瓷的介電常數會降低。鑒於前文，本發明 Si_3N_4 多孔體渴望作為高介電常數的材料體。本發明之 Si_3N_4 多孔體具有非常高的強度，又無傳統的低介電常數，而且介電損耗程度低，所以沒有實用上的問題。

五、發明說明(13)

因此，本發明之多孔體材料，是孔隙率和強度之間達高度平衡的優良材料。據此特徵，該多孔體可用來作為過濾器，所作成的過濾器可以非常薄但又有高滲透率，因為本發明材料有足夠的孔隙率。此外，多孔體可作為質輕之高強度陶瓷，其能作成各種高性能之結構元件，如汽車中所使用的構件。此外，由於多孔體為所謂的可切削陶瓷，因此可自由加工、大大降低工作成本，成本大部分是陶瓷部分之生產成本而已。

由於本發明之 Si_3N_4 多孔體同時兼具低介電常數和高強度的性質，可作為在高頻率範圍(如毫米波)之穿透損失率低的物質材料。此外，其可作為高效能雷達穿透材料。

此外，本發明之 Si_3N_4 多孔體進一步的應用，可作為油潤滑情況下的摩擦材料，其因油會穿透至孔洞中，因此摩擦係數可望降低。此外，可作為吸音材料，如路牆及其類似物，以及作為房屋的牆壁材料及其類似物，其均利用本材料的優點，如質輕、高孔隙率、高強度和低導熱率。

下列實施例用來更詳細說明本發明。除非另有說明，實施例之稀土元素化合物的比例以基於氮化矽之氮化物重量%計。

實施例 1

將平均顆粒尺寸為0.4微米之 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉末和平均顆粒尺寸為0.015微米之 Y_2O_3 粉末或 $\text{Y}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ (其

五、發明說明(14)

為鈮的烷氧化物)粉末混合，混合比例如表1所列，且進一步與15重量%(該含量係以前述粉末重量而言)之甲機纖維素混合，該甲機纖維素係作為有機黏合劑。壓實所得混合粉末，使其相對密度為44%。在500℃之空氣下加熱每個壓實物1小時，以有效進行除去黏合劑的處理，接著在氮氣下以如表1之燒結條件下進行燒製，得到 Si_3N_4 多孔體。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有2.25重量% SiO_2 之氧化物表膜。

表 1

樣品	燒結助劑		燒結條件		
	種類	重量%	溫度 (°C)	時間 (小時)	壓力 (atm)
1*	Y_2O_3	1.9	1800	2	5
3	Y_2O_3	3	1800	2	1000
6	Y_2O_3	4.5	1800	2	51
7	Y_2O_3	4.5	1800	2	120
8	Y_2O_3	4.5	1800	2	1000
9	Y_2O_3	8	1800	2	2000
10	Y_2O_3	15	1800	2	2000
12	$\text{Y}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$	8	2000	5	1000
13	$\text{Y}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$	8	2000	7	1000
14	$\text{Y}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$	8	2000	8	2000

(註)表中標有*的樣品為比較實施例。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明(15)

對每個得到之 Si_3N_4 多孔體樣品進行下列的測試。

- (1) $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 重量比：取 Si_3N_4 多孔體進行化學分析。
- (2) 孔隙率和平均孔隙尺寸：利用汞孔率計來測量。
- (3) 撓曲強度：根據 JIS 1601，利用三點撓曲強度計來測量室溫下的撓曲強度。
- (4) 楊氏模數：此係經由撓曲強度測試所得之應力-應變曲線計算而得。
- (5) 燃料消耗量：將 Si_3N_4 多孔體製成直徑為 30 毫米、厚度為 5 毫米之挺桿片，然後經鏡面拋光使其表面粗糙度 $R_a = 0.01$ 微米，接著用鋼製凸輪軸裝配後，安裝於排氣量為 1,500 cc 之汽車引擎中，再檢查 10 種型態之燃料消耗量。

結果如下表 2。以上述相同方法，但使用緻密 Si_3N_4 (強度：1,500 MPa，比重：3.24) 製得的挺桿片以及鋼製挺桿片後，檢查其燃料消耗量，以便於比較。結果也列在表 2。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

錄

五、發明說明(9)

表 2

樣品	$\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$	孔隙率 (%)	孔洞尺寸 (微米)	楊氏模數 (GPa)	撓曲強度 (MPa)	燃料消耗量 (km/l)
1*	0.54	54	1.4	22	77	-
3	0.43	51	1.3	39	200	-
6	0.33	48	1.4	46	288	-
7	0.33	45	1.4	57	299	-
8	0.33	40	1.2	65	422	-
9	0.22	38	1.1	70	533	18.4
10	0.13	38	1.1	71	399	-
12	0.22	32	0.5	77	630	17.3
13	0.22	31	0.5	78	634	17.1
14	0.22	30	0.4	89	644	17.2
15*	緻密 Si_3N_4 挺桿片					16.4
16*	鋼製挺桿片					15.9

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明(7)

從上述結果可以了解，本發明之 Si_3N_4 多孔體不但維持了高孔隙率，而且在其孔隙率存在下仍有高的三點撓曲強度。也可以了解當本發明之 Si_3N_4 多孔體作為挺桿片時，大大地改進了汽車引擎之燃料消耗效率。

實施例2

實際上重複實施例1相同的步驟，使壓實物之相對密度亦為44%，但該壓實物使用平均顆粒尺寸為3.0微米之 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉末和平均顆粒尺寸為0.05微米之各種稀土元素化合物來代替上述 Y_2O_3 之稀土元素化合物。所得每個壓實物，在450°C之空氣下進行除去黏合劑的處理1.5小時，接著在1,000至2,100大氣壓、1,600至1,990°C下進行燒結2小時，得到如表3所列之 Si_3N_4 多孔體。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有3.25重量% SiO_2 。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

象

五、發明說明(18)

表 3

樣品	燒結助劑		燒結條件		
	種類	重量%	溫度 (°C)	時間 (小時)	壓力 (atm)
17*	CeO ₂	8	1600	2	1000
18	CeO ₂	8	1650	2	1000
19	CeO ₂	8	1750	8	1000
20	CeO ₂	8	1750	6	1000
21	CeO ₂	8	1750	4	1000
22	CeO ₂	8	1750	2.5	1000
23	CeO ₂	8	1990	2	1000
24	Nd ₂ O ₃	8	1990	2	1000
25	Gd ₂ O ₃	8	1990	2	1000
26	Dy ₂ O ₃	8	1990	2	1000
27	Yb ₂ O ₃	8	1990	2	2100
28	Yb ₂ O ₃	8	1990	5	2100

(註)表中標有*的樣品為比較實施例。

根據上述相同的實驗評估每個Si₃N₄多孔體樣品。
結果列於表4。

五、發明說明(19)

表 4

樣品	$\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$	孔隙率 (%)	孔洞尺寸 (微米)	楊氏模數 (GPa)	撓曲強度 (MPa)
17*	0.29	55	2.9	27	44
18	0.29	50	2.7	40	236
19	0.29	44	3.5	48	200
20	0.29	44	3.2	47	200
21	0.29	44	3.0	47	290
22	0.29	44	2.2	48	415
23	0.29	32	1.8	95	607
24	0.29	32	1.8	81	609
25	0.29	31	1.8	88	599
26	0.29	31	1.8	88	588
27	0.29	31	1.8	88	596
28	0.29	31	1.8	99	633

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

實施例 3

實際上重覆實施例 1 相同的步驟，使壓實物之相對密度為 30%、50% 或 75%，惟使用平均顆粒尺寸為 0.05 微米之 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉末和平均顆粒尺寸為 0.005 微米之

五、發明說明(10)

Er_2O_3 來代替上述 Y_2O_3 ，作為稀土元素化合物。所得每個壓實物，在 600°C 之空氣下進行除去黏合劑的處理 1 小時，接著在 5 至 1,100 大氣壓、 $1,850$ 至 $2,200^\circ\text{C}$ 下進行燒結 2 至 2.5 小時，得到如表 5 所列之 Si_3N_4 多孔體。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有 3.25 重量 % SiO_2 。也用上述相同方法製備樣品，基於 Si_3N_4 粉末而言為 0.4 至 0.8 重量 % 之酚中進一步加入除了有機黏合劑外之碳源。

表 5

樣品	Er_2O_3	酚	壓實	燒 結 條 件		
	重量 %	重量 %	密度 %	溫度 ($^\circ\text{C}$)	時間 (小時)	壓力 (atm)
29*	1.7	未加入	30	1850	2	5
31	2	未加入	30	1850	2	1000
32	4	未加入	30	1850	2	5
33	8	未加入	30	1850	2	5
34	8	未加入	30	1850	2	55
35	8	未加入	30	1850	2	1000
36	8	未加入	50	1850	2	1000
37	8	未加入	70	1850	2.5	50
38	8	未加入	70	1850	2.5	1000
43	15	0.6	30	2200	2	56
44	15	0.6	30	2200	2	1000
45*	15.5	0.8	30	2200	2	1000
46*	16.5	0.8	30	2200	2	5

(註)表中標有*的樣品為比較實施例。

五、發明說明()

根據上述相同的實驗評估每個 Si_3N_4 多孔體樣品。
結果列於表 6。

表 6

樣品	$\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$	孔隙率 (%)	孔洞尺寸 (微米)	撓曲強度 (MPa)
29*	0.625	69	0.02	66
31	0.62	68	0.06	310
32	0.45	59	0.07	111
33	0.29	58	0.07	122
34	0.29	58	0.07	199
35	0.29	58	0.07	400
36	0.29	50	0.06	550
37	0.29	32	0.05	400
38	0.29	30	0.07	850
43	0.012	67	0.07	88
44	0.012	67	0.07	94
45*	0.010	67	0.07	53
46*	0.009	69	0.07	47

(註) 表中有 * 的樣品，是為比較例。

五、發明說明()

關於上表 5 之樣品 32 至 35，測量每個 Si_3N_4 多孔體的純水滲透效率。測量時先將多孔體形成直徑 25 毫米和 0.1 毫米厚的平板，再於 5 大氣壓（穿透側的大氣壓）的進料壓力下，進行過濾，以便進行測量。結果，在 5 大氣壓下所製得的樣品 32 和 33，於燒結時破裂，故於過濾期間有破裂情形發生，而至少在 50 大氣壓下製得之樣品 34 和 35 則在燒結期間不會破裂，能夠進行過濾而不破裂。樣品 34 之過濾期間的滲透流率為 6.8 毫升 / 分鐘 / 公分² / 大氣壓，而樣品 35 之過濾期間的滲透流率為 7.0 毫升 / 分鐘 / 公分² / 大氣壓。

實施例 4

將平均顆粒尺寸為 0.13 微米之 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 粉末和平均顆粒尺寸為 0.3 微米之 Y_2O_3 粉末混合，混合比例如表 7 所列，且進一步與 12 重量 %（該含量係以整個陶瓷粉末重量而言）之聚乙二醇黏合劑作為有機黏合劑，接著壓實成壓實密度為 50 % 的壓實物。在 320°C 之空氣下，加熱每個壓實物 1 小時，以有效除去黏合劑的處理，接著在氮氣下及如表 7 所列壓力和 1,800°C 之燒結條件下進行燒烤 2 小時，得到 Si_3N_4 多孔體。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有 3.3 重量 % SiO_2 。

根據上述相同實驗以及下述實驗，評估所得每個 Si_3N_4 多孔體樣品。結果列於表 7 至表 9。

(6) 平均縱橫比：任選 50 個顆粒，測量從掃描電子顯微鏡得來之顯微照片的主軸和次軸，以計算各別平均

五、發明說明(ㄣ)

值以及平均縱橫比(平均主軸/平均次軸)。

(7) 測量導熱率：根據雷射閃光法，測量10毫米直徑和1毫米厚度的測試片之導熱率。

(8) 可切削性：在車床上架設高速鋼製切割工具，從每個樣品切下直徑為100毫米的樣品，其採旋轉速率為800轉/分之單進料動作，切削深度為100毫米。根據下列三種級數來評估可切削性：即，○表示兩端外徑差異至多0.01毫米，而■表示兩端的外徑差異在0.01至0.02毫米之間，而×表示兩端的外徑差異超過0.02毫米。

表 7

樣品	Y ₂ O ₃ (重量%)	燒結 壓力 (大氣壓)	SiO ₂ (SiO ₂ Y ₂ O ₃)	孔隙率 (%)	孔洞 尺寸 (微米)	平均結晶顆粒尺寸		
						主軸 (微米)	次軸 (微米)	縱橫 比
47*	0.5	3	0.77	45	0.8	1	0.5	2
48*	1	3	0.71	39	1.5	3	0.8	3.75
49*	2	3	0.66	48	1.8	4.2	0.9	4.67
51	8	60	0.22	58	3.5	20	1.5	13.3
52	12	63	0.19	57	3.0	20	1.6	12.5
54*	17	3	0.14	49	3.2	15	1.9	7.89
55*	20	3	0.04	50	3.0	25	2.0	12.5

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

五、發明說明(沖)

表 8

樣品	撓曲強度 (MPa)	導熱率 λ (W/mK)	可切削性
47*	40	5.0	×
48*	88	4.4	×
49*	99	3.2	×
51	188	1.6	○
52	195	1.7	○
54*	95	1.6	○
55*	55	0.3	■

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

此外，平均顆粒尺寸為10微米之 Si_3N_4 起始材料粉末、平均顆粒尺寸為10微米之BN起始材料粉末、和平均顆粒尺寸為1微米之SiC起始材料粉末、與平均顆粒尺寸為4微米之 Y_2O_3 粉末及2微米之 Al_2O_3 粉末之助劑相混合，混合比例係基於 Si_3N_4 、BN和SiC粉末而言，該等比例如表9所列，還進一步混合有基於上述全體粉末之12重量%的聚乙二醇黏合劑，其係作為有機黏合劑。壓實所得混合物，然後在160公斤/公分²壓力、1,800°C下之氣氛環境燒結1小時。因此，可得到五種

五、發明說明(5)

Si_3N_4 -BN複合材料。用上述同樣方法來評估這些比較例的材料，結果列於表9。

表 9

樣品	Si_3N_4 (重量%)	BN (重量%)	SiC (重量%)	燒結助劑 (重量%)		孔隙 率 (%)	撓曲 強度 (MPa)	可切 削性
				Y_2O_3	Al_2O_3			
56*	70	20	10	9	1	6	400	×
57*	25	40	35	2	1	10	200	×
58*	45	50	5	6	2	10	230	×
59*	20	60	20	0.5	0.5	12	150	×
60*	26	70	4	3	3	15	100	×

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

實施例5

將平均顆粒尺寸為0.6微米之 α - Si_3N_4 粉末，和3重量%之平均顆粒尺寸為0.4微米之各種稀土元素氧化物粉末混合，後者作為燒結助劑，種類如表10所列。所得混合粉末還進一步摻有2重量% (該含量係以整個陶瓷粉末重量而言) 之甲基纖維素作為有機黏合劑，接著壓實成壓實密度為50%的壓實物。在800℃之空氣下，加熱每個壓實物1小時，以有效除去黏合劑的處理，接著在500大氣壓

五、發明說明 (> b)

和如表 10 所列溫度之氣氛下進行燒結 2 小時，得到 Si_3N_4 多孔體。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有 1.7 重量 % SiO_2 。

根據上述相同實驗，對每個所得 Si_3N_4 多孔體樣品進行評估，此外，用下列穿孔可切削性做進一步的測試。

(9) 穿孔可切削性：利用切割工具來進行穿孔可切削性的測試，亦即以轉速為 50 / 分鐘之鋼製鑽孔機來穿孔，評估級數為：○ 為樣品之穿孔良好，■ 為樣品破裂，× 為樣品破裂。結果列於表 10 和表 11。於實施例 4 之比較實施例中的 Si_3N_4 -BN 複合材料，以及根據日本公開專利 5-178641 之表 1 的玻璃陶瓷，也在穿孔可切削性之測試之列，但這些比較例樣品在穿孔機中全數破裂。

表 10

樣品	助劑	燒結溫度 (°C)	$\text{SiO}_2 / \text{SiO}_2$ 稀土元素氧化物	孔隙率 (%)	孔洞尺寸 (微米)	平均結晶顆粒尺寸		
						主軸 (微米)	次軸 (微米)	縱橫比
61*	La_2O_3	1600	0.36	48	0.3	0.9	0.2	4.5
62	La_2O_3	1700	0.35	48	0.3	3.8	0.2	19
63	La_2O_3	1900	0.35	39	0.1	5.0	0.15	33
65	Ce_2O_3	1700	0.37	48	0.2	3.9	0.3	13
66	Nd_2O_3	1700	0.40	48	0.2	4.2	0.25	16.8
67	Gd_2O_3	1700	0.35	48	0.2	3.6	0.3	12
68	Dy_2O_3	1700	0.35	49	0.3	3.8	0.2	19
69	Yb_2O_3	1700	0.37	49	0.2	3.9	0.3	13

(註) 表中有 * 的樣品，是為比較例。

五、發明說明(一)

表 11

樣品	撓曲強度 (MPa)	導熱率 λ (W/mK)	可切削性
61*	90	2.7	■
62	266	3.5	○
63	177	2.2	○
65	255	2.8	○
66	239	2.7	○
67	241	3.3	○
68	277	3.2	○
69	299	2.9	○

(註) 表中有*的樣品，是為比較例。

實施例 6

將平均顆粒尺寸為 0.25 微米之 α - Si_3N_4 粉末和平均顆粒尺寸為 0.02 微米之 Y_2O_3 粉末混合，然後取 12 重量% (基於所有陶瓷粉末) 甲基纖維素作為有機黏合劑。壓實所得混合粉末。所得每個壓實物，在 500°C 之空氣下加熱 1 小時，以有效除去黏合劑的處理，接著在下表 12 的條件下進行燒結 2 小時，得到 Si_3N_4 多孔體。在比較實施例中，進行上述同樣步驟，但在上述相同之 Si_3N_4 粉末中加入平均顆粒尺寸為 0.03 微米、含量為 2 重量% 之

五、發明說明 (28)

Al_2O_3 粉末，和平均顆粒尺寸為 0.02 微米、含量為 5 重量 % 之 Y_2O_3 粉末，並在表 12 的條件下進行燒結。此外，所使用的 Si_3N_4 粉末含有 20 重量 % SiO_2 。

表 12

樣品	燒結助劑	壓實	燒結條件	
	種類	密度	溫度 (°C)	壓力 (atm)
	重量 %	(克 / 公分 ³)		
70*	Y_2O_3 (8)	1.38	1830	4
72	Y_2O_3 (8)	1.4	1830	50
73	Y_2O_3 (8)	1.45	1830	52
74	Y_2O_3 (8)	1.5	1830	60
76	Y_2O_3 (8)	1.6	1830	66
77	Y_2O_3 (8)	1.7	1830	50
78	Y_2O_3 (8)	1.75	1830	120
79	Y_2O_3 (8)	1.8	1830	150
80*	Y_2O_3 (5) + Al_2O_3 (2)	1.6	1400	4
81*	Y_2O_3 (5) + Al_2O_3 (2)	1.6	1500	4
82*	Y_2O_3 (5) + Al_2O_3 (2)	1.6	1600	4

(註) 表中標有 * 的樣品為比較實施例。

五、發明說明(29)

利用上述相同測試，對每個所得 Si_3N_4 多孔體樣品進行評估，且進一步利用共振器測量頻率為 1 GHz 時之介電常數和介電損耗，該介電性質可由共振頻率計算而得。結果列於表 13。

表 13

樣品	$\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2$ + 稀土元素 氧化物)	孔隙 率 (%)	孔洞 尺寸 (微米)	縱橫 比	撓曲 強度 (MPa)	介電 常數 ϵ	介電 損耗 ($\times 10^{-3}$)
70*	0.20	70	0.5	19	48	2.44	1.00
72	0.21	65	0.38	20	120	2.53	0.98
73	0.22	60	0.33	21	165	2.69	0.96
74	0.20	55	0.3	18	200	2.87	0.99
76	0.22	50	0.2	20	250	3.07	0.94
77	0.22	45	0.15	17	300	3.30	0.88
78	0.22	40	0.11	16	459	3.57	0.93
79	0.20	38	0.1	19	488	3.63	0.88
80*	-	50	0.2	1	45	3.65	1.22
81*	-	45	0.2	1	80	3.91	1.33
82*	-	35	0.15	1	150	4.56	1.06

(註) 表中標有 * 的樣品為比較實施例。

五、發明說明(30)

根據本發明，係提供一種有易切削性之氮化矽多孔體，其除了具有高孔隙率和輕質量外，還具有高強度。此外，該多孔體具有低的楊氏模數，故有優良之衝擊吸收性，且導熱率優良，有優良的熱絕緣性。據此，本發明之多孔體不只在分離液體或氣體之過濾上非常有用，而且也是熱絕緣物質，所以在聲音吸收材料和各種汽車零件及其類似物之結構材料上也十分有用。此外，若使用本發明還可降低工作成本。

由於本發明之氮化矽多孔體也具有低介電常數的特質，故在作為雷達穿透材料是十分有效的，且可作為電子零件基質材料，例如在高頻(像毫米波)之穿透率低的基質材料。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

四、中文發明摘要(發明之名稱： 高強度氮化矽多孔體及其製法)

本發明揭示一種高孔隙率和高強度之氮化矽多孔體，其包括柱狀氮化矽微粒和氧化物黏合相，該多孔體含有2至15重量% (基於氮化矽而言) 之至少含有一種稀土元素的氧化體，該多孔體中還含有0.012至0.65重量比之 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ ，且多孔體之平均孔洞尺寸至多3.5微米。上述氮化矽多孔體係經由壓實下列組成而製得：組成包括氮化矽粉末、基於氮化矽之含有2至15重量%之氧化物、至少一種稀土元素、和有機黏合劑，但在壓實時需控制壓實物之氧含量和碳含量；在含氮大氣下，以1,650至2,200°C燒結該壓實物，製得多孔體，所得多孔體係由柱狀氮化矽微粒和氧化物黏合相之三維交纏結構所構成，且該多孔體中還含有0.012至0.65重量比之 $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 。

英文發明摘要(發明之名稱：HIGH-STRENGTH POROUS SILICON NITRIDE BODY AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME)

A high-porosity and high-strength porous silicon nitride body comprises columnar silicon nitride grains and an oxide bond phase containing 2 to 15 wt.%, in terms of oxide based on silicon nitride, of at least one rare earth element, and has an $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{rare earth element oxide})$ weight ratio of 0.012 to 0.65 and an average pore size of at most 3.5 μm . The porous silicon nitride body is produced by compacting comprising a silicon nitride powder, 2 to 15 wt.%, in terms of oxide based on silicon nitride, of at least one rare earth element, and an organic binder while controlling the oxygen content and carbon content of said compact; and sintering said compact in an atmosphere comprising nitrogen at 1,650 to 2,200°C to obtain a porous body having a three-dimensionally entangled structure made up of columnar silicon nitride grains and an oxide bond phase; and having an $\text{SiO}_2 / (\text{SiO}_2 + \text{rare earth element oxide})$ weight ratio of 0.012 to 0.65.

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

評

六、申請專利範圍

第 86100132 號「高強度氮化矽多孔體及其製法」專利案
 (88 年 12 月 28 日修正)

六 申請專利範圍：

1. 一種高強度之氮化矽多孔體，其包括柱狀氮化矽顆粒氧化物黏合相，該多孔體係由柱狀氮化矽顆粒和氧化物黏合相之三維交纏結構所形成，其中氧化物黏合相含有 2 至 15 重量 % (以氮化矽而言) 之至少一種稀土元素之氧化物，該氮化矽多孔體含有 0.012 至 0.65 重量比之 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ ，該多孔體之平均孔洞尺寸至多 3 微米，孔隙率 x (體積 %) 和三點撓曲強度 y (MPa) 滿足下列關係式：

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -8.1x + 610 \text{ (條件爲 } 50 \geq x \geq 30 \text{)}$$

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -6.5x + 530 \text{ (條件爲 } 68 \geq x \geq 50 \text{)}。$$

2. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 之重量比為 0.12 至 0.42。

3. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中導熱率 z (W/mK) 和孔隙率 x (體積 %) 滿足下列關係式：

$$z \geq -0.15x + 9.5。$$

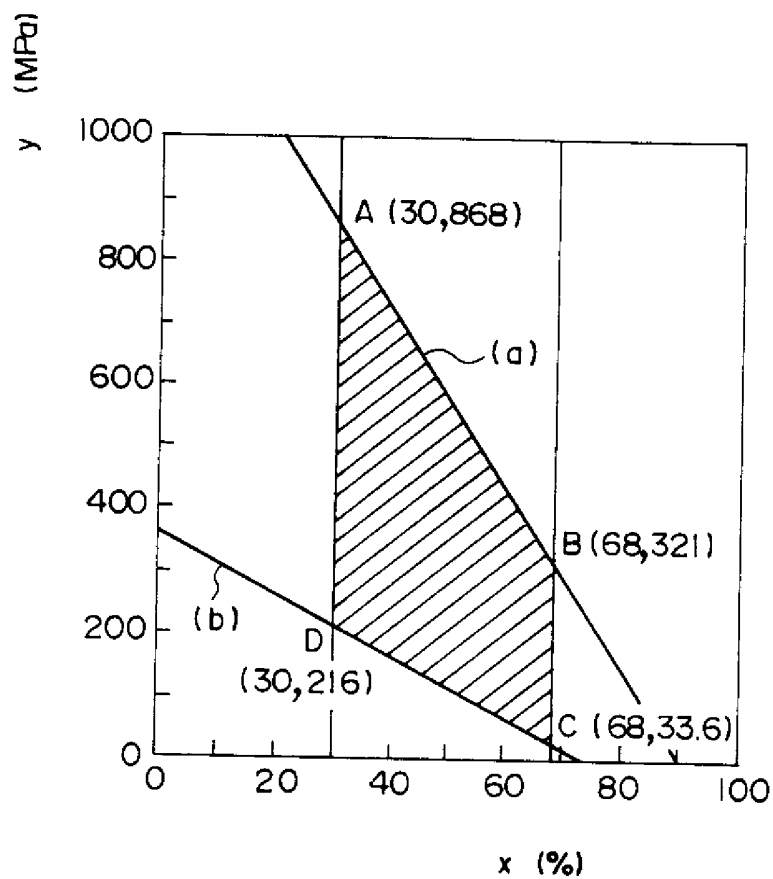
4. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中楊氏模數為 15 至 100 GPa。

5. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中孔隙率為 40 至 68 體積 %，且介電常數至多 3.6。

六、申請專利範圍

- 6.如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中氮化矽多孔體可被合金鋼或碳鋼製的切割工具來切割。
- 7.如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中稀土元素為釔。
- 8.一種如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體的製法，其包括壓實下列組成：包括氮化矽粉末、2 至 15 重量 % 之至少一種稀土元素之氧化物(基於氮化矽)、和有機黏合劑，但壓實時需控制壓實物之氧含量和碳含量；在含氮大氣中，於 1,650 至 2,200℃ 及至少 50 大氣壓之壓力下燒結該壓實物，製得多孔體，所製得之多孔體係由柱狀氮化矽顆粒和氧化物黏合相之三維交纏結構所構成，且多孔體中含有 0.012 至 0.65 重量比之 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 。
- 9.如申請專利範圍第 8 項之高強度氮化矽多孔體的製法，其中壓實物含有作為氧來源之 SiO_2 粉末和 / 或含有作為碳來源之經由加熱可轉變為碳的化合物。
- 10.如申請專利範圍第 8 項之高強度氮化矽多孔體的製法，其中需控制壓實物之氧含量和碳含量，以便在燒結後得到 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 重量比為 0.12 至 0.42 之多孔體。
- 11.如申請專利範圍第 8 項之高強度氮化矽多孔體的製法，其中稀土元素為釔。

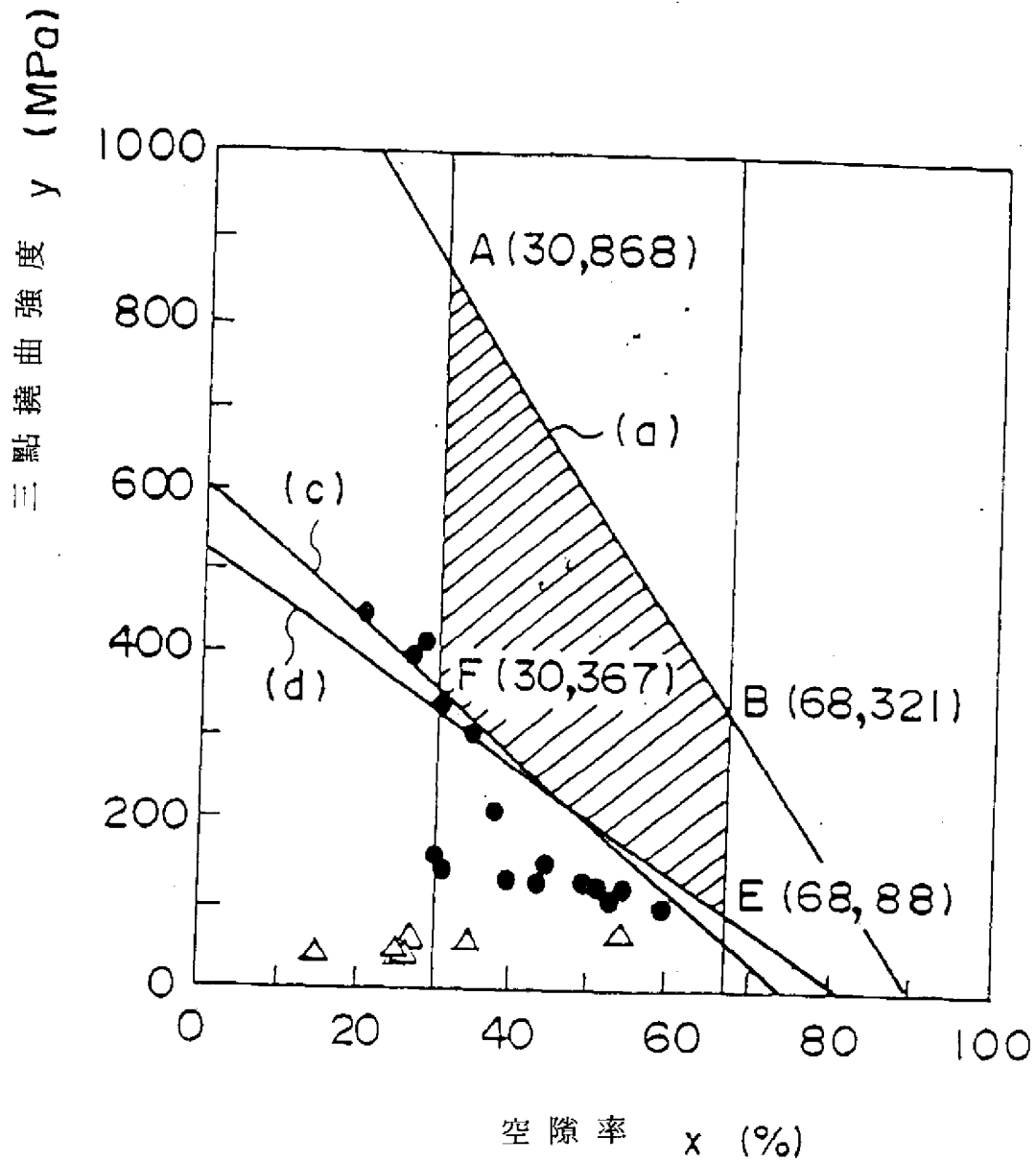
第 1 圖



$$(a)y = -14.4x + 1300$$

$$(b)y = -4.8x + 360$$

第 2 圖

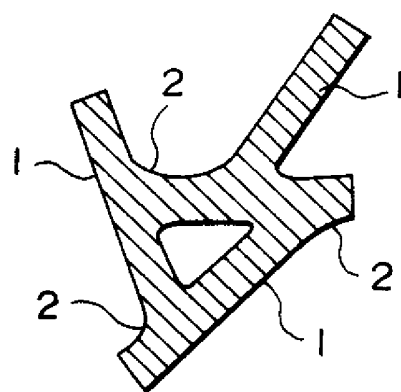


$$(a) y = -14.4x + 1300$$

$$(c) y = -8.1x + 610$$

$$(d) y = -6.5x + 530$$

第3圖





8812

申請日期	1997, 1, 8
案 號	86100132
類 別	C04B 14/30, 14/32, 38/00

A4
C4

460426

961-3517A

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	高強度氮化矽多孔體及其製法 (88年12月28日修正)
	英 文	HIGH-STRENGTH POROUS SILICON NITRIDE BODY AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME
二、發明 人	姓 名	1. 河合千尋 2. 松浦貴宏 3. 山川晃
	國 籍	1. 日本 2. 日本 3. 日本
	住、居所	1. 兵庫縣伊丹市昆陽北一丁目1番1號 住友電氣工業株式會社伊丹製作所內 2. 同上 3. 同上
三、申請人	姓 名 (名稱)	住友電氣工業股份有限公司 (住友電氣工業株式會社)
	國 籍	日本
	住、居所 (事務所)	大阪府大阪市中央區北浜四丁目5番33號
	代 表 人 姓 名	倉內憲孝

裝

訂

線

五、發明說明(4)

88 10 20

因為該陶瓷多孔體的孔隙率還是太低，因此可切削加工性改進地仍不夠完善。

發明總述

鑑於先前技藝，本發明目的在於提供一種具有優良可切削性和可作為輕質結構元件之氮化矽多孔體，而且該多孔體之強度也在保持孔隙率的情況下被進一步地改善，另外本發明還包括製備上述氮化矽多孔體的方法。

根據本發明製備之氮化矽多孔體之方法包括：壓實一壓實體，其組成包括氮化矽粉末、基於氮化矽之含有 2 至 15 重量%之至少一種稀土元素之氧化物、和有機黏合劑，但在壓實時需控制壓實物之氧含量和碳含量；在含氮大氣下，以 1,650 至 2,200℃ 的溫度燒結該壓實物，以得一多孔體，包括柱狀氮化矽微粒和氧化物黏合相且具有由柱狀氮化矽微粒及氧化物黏合相所構成之三維交纏結構，且該多孔體中還含有 0.012 至 0.65 重量比之 SiO_2 /

六、申請專利範圍

第 86100132 號「高強度氮化矽多孔體及其製法」專利案
 (88 年 12 月 28 日修正)

六 申請專利範圍：

1. 一種高強度之氮化矽多孔體，其包括柱狀氮化矽顆粒氧化物黏合相，該多孔體係由柱狀氮化矽顆粒和氧化物黏合相之三維交纏結構所形成，其中氧化物黏合相含有 2 至 15 重量 % (以氮化矽而言) 之至少一種稀土元素之氧化物，該氮化矽多孔體含有 0.012 至 0.65 重量比之 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ ，該多孔體之平均孔洞尺寸至多 3 微米，孔隙率 x (體積 %) 和三點撓曲強度 y (MPa) 滿足下列關係式：

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -8.1x + 610 \text{ (條件爲 } 50 \geq x \geq 30 \text{)}$$

$$-14.4x + 1300 \geq y \geq -6.5x + 530 \text{ (條件爲 } 68 \geq x \geq 50 \text{)}。$$

2. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中 $\text{SiO}_2/(\text{SiO}_2 + \text{稀土元素氧化物})$ 之重量比為 0.12 至 0.42。

3. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中導熱率 z (W/mK) 和孔隙率 x (體積 %) 滿足下列關係式：

$$z \geq -0.15x + 9.5。$$

4. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中楊氏模數為 15 至 100 GPa。

5. 如申請專利範圍第 1 項之高強度氮化矽多孔體，其中孔隙率為 40 至 68 體積 %，且介電常數至多 3.6。