

397807

申請日期	85 年 7 月 5 日
案 號	85108141
類 別	C04B 35/581

公告本
A4
C4

修正 87-12-03
本 年 月 日
補充

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

發 新 型

一、發明 名稱	中 文	氮化鋁燒結體
	英 文	Aluminium nitride sintered body
二、發明 創作人	姓 名	(1) 小松通泰 (2) 白井隆雄
	國 籍	(1) 日本 (2) 日本 (1) 日本國横浜市栄區上郷町二六二-三二-二一三
	住、居所	(2) 日本國横浜市緑區いぶき野四八-五
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 東芝股份有限公司 株式会社東芝
	國 籍	(1) 日本 (1) 日本國神奈川県川崎市幸區堀川町七二番地
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	(1) 西室泰三

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

397807

申請日期	85 年 7 月 5 日
案 號	85108141
類 別	C04B 35/581

公告本
A4
C4

修正 87-12-03
本 年 月 日
補充

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

發 新 型

一、發明 名稱	中 文	氮化鋁燒結體
	英 文	Aluminium nitride sintered body
二、發明 創作人	姓 名	(1) 小松通泰 (2) 白井隆雄
	國 籍	(1) 日本 (2) 日本 (1) 日本國横浜市栄區上郷町二六二-三二-二一三
	住、居所	(2) 日本國横浜市緑區いぶき野四八-五
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 東芝股份有限公司 株式会社東芝
	國 籍	(1) 日本 (1) 日本國神奈川県川崎市幸區堀川町七二番地
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	(1) 西室泰三

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

(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

1995年 7月 11日 7-175029

無主張優先權

有關微生物已寄存於：

，寄存日期：

，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

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)

本發明係有關使用於半導體基板之氮化鋁燒結體及其製造方法，特別是不損氮化鋁特有的熱傳導性，可同時大幅改善強度及破壞韌性，具優良放熱性之氮化鋁燒結體及其製造方法。

較以往金屬材料具有優良強度，耐熱性，耐蝕性，耐磨耗性，輕量性等特性之陶瓷燒結體，廣泛被使用於半導體基板，電子機械材料，引擎用部品，高速切削工具用材料，噴嘴，軸承等，及在以往金屬材料所不可及的苛刻溫度，應力，摩耗條件下所使用之機械部品，機能部品，構造材料或裝飾品材料等方面。

特別是氮化鋁(A₂O₃N₂)燒結體為具高熱傳導性之絕緣體，以具有近於矽(Si)之熱膨脹係數而被作為高集積化半導體裝置之放熱板或基板，進一步擴大其用途。

目前上記氮化鋁燒結體一般係以下記製造方法進行量產。即，於氮化鋁原料粉末中添加燒結助劑與，有機膠粘劑與，必要時之各種添加劑或溶媒，分散劑等調製得原料混合體，將所得原料混合體以刮片法或泥漿鑄入法成形，形成薄板狀至片狀成形體，或將原料加壓成型為厚板狀至大型成形體。其次將所得成形體，於空氣或氮氣環境中以加熱進行脫脂處理，將作為有機膠粘劑之碳化氫成份等由成形體排除脫脂。其後將脫脂之成形體於氮氣環境中以高溫度加熱而形成緻密燒結之氮化鋁燒結體。

上述製造方法中，原料A₂O₃N₂粉末若使用平均粒徑為0.5 μm以下程度之超微細原料粉末時，僅使用A₂O₃N₂

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

原

五、發明說明(1)

本發明係有關使用於半導體基板之氮化鋁燒結體及其製造方法，特別是不損氮化鋁特有的熱傳導性，可同時大幅改善強度及破壞韌性，具優良放熱性之氮化鋁燒結體及其製造方法。

較以往金屬材料具有優良強度，耐熱性，耐蝕性，耐磨耗性，輕量性等特性之陶瓷燒結體，廣泛被使用於半導體基板，電子機械材料，引擎用部品，高速切削工具用材料，噴嘴，軸承等，及在以往金屬材料所不可及的苛刻溫度，應力，摩耗條件下所使用之機械部品，機能部品，構造材料或裝飾品材料等方面。

特別是氮化鋁(A₂O₃N₂)燒結體為具高熱傳導性之絕緣體，以具有近於矽(Si)之熱膨脹係數而被作為高集積化半導體裝置之放熱板或基板，進一步擴大其用途。

目前上記氮化鋁燒結體一般係以下記製造方法進行量產。即，於氮化鋁原料粉末中添加燒結助劑與，有機膠粘劑與，必要時之各種添加劑或溶媒，分散劑等調製得原料混合體，將所得原料混合體以刮片法或泥漿鑄入法成形，形成薄板狀至片狀成形體，或將原料加壓成型為厚板狀至大型成形體。其次將所得成形體，於空氣或氮氣環境中以加熱進行脫脂處理，將作為有機膠粘劑之碳化氫成份等由成形體排除脫脂。其後將脫脂之成形體於氮氣環境中以高溫度加熱而形成緻密燒結之氮化鋁燒結體。

上述製造方法中，原料A₂O₃N₂粉末若使用平均粒徑為0.5 μm以下程度之超微細原料粉末時，僅使用A₂O₃N₂

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

原

五、發明說明 (2)

粉末亦可得到相當緻密之燒結體。但附著於原料粉末表面之大量氧等不純物於燒結時，易於 A Q N 結晶格子中固溶，或產生妨礙晶格振動傳播之 A Q - O - N 化合物等複合氧化物，其結果使其較未使用燒結助劑之 A Q N 燒結體具有較低之熱傳導率。

又，原粉粉末若使用平均粒徑 $1 \mu m$ 以上之 A Q N 粉末時，其原料粉末單獨並不具良好燒結性，除熱壓法以外若無助劑添加則不易形成緻密的燒結體，且具低量產性等缺點。其中若以常壓燒結法欲有效率地製造燒結體時，在促使燒結體緻密化及防止 A Q N 原料粉末中之不純物氧固溶於 A Q N 結晶粒子內情形時，一般係以添加作為燒結助劑之氧化鈮 (Y_2O_3) 等稀土類氧化物或氧化鈣等鹼土金屬氧化物進行。

上述燒結助劑可與 A Q N 原料粉末中所含不純物氧或 AQ_2O_3 反應形成液相，在達成燒結體緻密化的同時，此不純物氧以粒界相固定，而達成高熱傳導率化之物質。

但上述目前使用的製造方法中，因 A Q N 與液相化合物間濕潤性較低，又液相本身具有易於偏析之性質，故燒結後液相凝固之時，因液相中 A Q N 粒子之間隙部份形成局部殘留，故凝固時有形成粗大且脆弱之粒界相之傾向。且結晶粒極易形成粒成長，而形成圖 2 所示般燒結體之結晶組織為平均粒徑 $5 \sim 10 \mu m$ 的粗大結晶粒，微小氣孔未消失且殘存於結晶粒內，阻礙了燒結體的緻密化，最後僅形成 3 點撓曲強度為 $350 \sim 400 MPa$ 程度之低強

(請先閱讀背面之注意事項再填寫頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (3)

度，或破壞韌性為 $2.8 \text{ MN} / \text{m}^{3/2}$ 以下低韌性之氮化鋁燒結體，而成為問題所在。

為解決上述問題點，有人嚐試使用粒徑平均之微細氮化鋁原粒粉末以形成具有微細結晶組織之 A Q N 燒結體，或添加各種添加物以提高燒結性等方式進行。例如本案發明人即有提出以使其含有 W 成份等可改善燒結性以製得高強度 A Q N 燒結體之方法。但，在其含有 W 成份之下，為使結晶組織形成微細且均勻化以改善燒結體強度的另一方面，破壞韌性值相對降低。而不易得到同具優異強度與韌性值之半導體基板用的 A Q N 燒結體。

近年來，為配合半導體元件之高集積化，高出力化而增加的發熱量，具有高熱傳導性（高放熱性）之上述氮化鋁材料之普及化，對其放熱性可得到大致滿足的目的。但對上述般構造部份之強度及韌性值不足部份，例如氮化鋁燒結體形成之半導體基板在組裝插床時常因些許之撓曲應力或處理時之衝擊力使半導體基板受損，而產生使半導體電路基板之製造品質大幅降低的問題點。

本發明為解決上述問題點所提出之物，除控制 A Q N 燒結體結晶粒之大小及適切之微構造使燒結體組織微細化外，在謀求粒界相與結晶粒之結合使燒結體強度增大及提高破壞韌性值外，並以提供無損放熱特性且提高機械性強度之 A Q N 燒結體及其製造方法為目的。

本案發明者為達成上述目的，就氮化鋁原料粉末之合成方法，A Q N 原料粉末的粒度分布，添加於原料氮化鋁

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明()

4

粉末之燒結助劑或添加物的種類或添加量以種種改變，就其燒結體的結晶組織的微構造，強度特性或破壞韌性值及傳熱特性之影響進行許多試驗與檢討。

其結果，於所定 A α N 原料粉末上對燒結助劑以外之 S i 成份及碳化硼 (B $_4$ C) 複合添加劑進行微量添加後，在混合體燒結成形時，其平均結晶粒徑為 3 ~ 4 . 5 μ m 微細狀，且可改善上述碳化硼中粒界相與 A α N 結晶粒之結合度而得到均勻分散之燒結體組織，進而得到同時具有優良強度特性及破壞韌性值之 A α N 燒結體。本發明為基於上述內容而完成之發明。

即，本發明之氮化鋁燒結體，係由周期表第 I I I a 族元素 C a , S r , B a 所選出至少 1 種元素之氧化物 1 ~ 1 0 重量 % 與，碳化硼 0 . 2 ~ 2 . 0 重量 % 與，由 S i O $_2$, S i $_3$ N $_4$, S i C , S i $_2$ N $_2$ O , β - 矽鋁化物 (S i - A α - O - N) , α - 矽鋁化物及聚合物形態氮化鋁 (A α - S i - O - N) 所選擇之換算為 S i 成份為 0 . 2 重量 % 以下的至少 1 種矽化合物與，載體組成之氮化鋁為特徵。

較佳為另含有由 T i , F e , N i , C r , C o , L i , M g 所選擇之至少 1 種金屬元素之氧化物 0 . 0 5 ~ 0 . 5 重量 % 。又，燒結體的平均結晶粒徑可設定為 2 ~ 4 . 5 μ m 。由上記組成份所形成，具有廣域結晶粒徑分布之 A α N 燒結體，具有熱傳導率為 1 3 0 W / m . K 以上，3 點撓曲強度為 4 5 0 M P a ，破壞韌性值為

(請先閱讀背面之注意事項再填寫頁)

裝

訂

線

五、發明說明(5)

3. $0.0MN / m^{3/2}$ 以上之特徵。

又有關本發明氮化鋁燒結體的製造方法，係於上記添加物以外之不純物陽離子含量為0.2重量%以下之氮化鋁原料粉末中，添加由周期表I I I a族元素Ca, Sr, Ba中所選出之至少1種元素的氧化物1~10重量%與，上記Si成份0.2重量%以下與 B_4C 0.2~2.0%重量%之混合粉末予以成形，將所得成形體於非氧化性環境中以1650~1900℃溫度進行燒結而成。

本發明中所使用之作為燒結體主成份之氮化鋁(A₂N₃)原料粉末，在考慮燒結性及熱傳導性下以使用不純物氧含量為1.5重量%以下，平均粒徑0.5~2μm左右，較佳為1.5μm以下之微細A₂N₃原料粉末為佳。

周期表I I I a族之Ca, Sr, Ba等氧化物，係作為燒結助劑使用，為使A₂N₃燒結體緻密化以添加對A₂N₃原料粉末為1~10重量%之範圍為宜。上記燒結助劑之具體例如稀土類元素(Y, Sc, Ce, Dy等)之氧化物，氮化物，鹼土金屬(Ca)之氧化物。或燒結體操作下使用由此類化合物構成之物質，特別是以氧化鈮(Y₂O₃)，氧化銻(CeO)或氧化鈣(CaO)為佳。

上述燒結助劑添加量未達1重量%時，未能充份發揮燒結性的改善效果，而形成燒結體未達緻密化之低強度燒

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(6)

結體，A α N結晶中溶入氧原子，而無法形成高熱傳導率之燒結體。

另一方面，若添加量超過10重量%之過量狀態時，燒結助劑之效果達到飽和狀態而成無意義外，在燒結所得A α N燒結體之熱傳導率降低的同時，粒界相大量殘存於燒結體中，以熱處理去除之粒界相體積相對較大，使燒結體中殘留空洞，而使收縮率增大，易產生變形。

Si成份以具有提高燒結性及降低燒結溫度之效果，故配合上記燒結助劑作複合添加時，具有可抑制燒結體的粒成長，形成微細的A α N結晶組織，提高燒結體的構造強度等作用。上記Si成份以使用SiO₂，Si₃N₄，SiC，Si₂N₂O， β -矽鋁化物(Si-A α -O-N)， α -矽鋁化物及聚合物形態之氮化鋁(A α -Si-O-N)等矽化合物為佳。

此矽化合物之含量以調整Si成份至0.2重量%以下範圍為宜。但，矽成份含量未達0.01重量%時，易使粒成長之抑制效果不足，或形成粗大結晶組織，而無法得到高強度之A α N燒結體。另一方面，含量超過0.2重量%之過量情形時，除燒結體之熱傳導率降低外，撓曲強度亦有降低情形。

又碳化硼(B₄C)於A α N燒結體之粒界相與結晶粒之結合度增高同時，可發揮阻止平均分散於燒結體組織內裂隙之擴大，具有進一步提高A α N燒結體的破壞韌性值之效果，此B₄C含量調整至0.2~2重量%之範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(7)

為宜。B₄C 含量未達 0.2 重量% 時，其韌性改善效果不佳，含量超過 2 重量% 之過量時，燒結體之熱傳導率將會降低。

Ti, Fe, Ni, Cr, Co, Li, Mg 之氧化物，除降低燒結溫度提高燒結性外，對形成著色不透明之燒結體等改善 AlN 燒結體特性為有效，以換算為氧化物 0.05 ~ 0.5 重量% 範圍添加為佳。添加量未達 0.05 重量% 時，上記特性改善效果不佳，添加量超過 0.5 重量% 之過量時，與其他不純物相同般 AlN 燒結體之熱傳導率將會降低。

又，上記各種添加物以外之不純物陽離子易形成阻礙 AlN 燒結體熱傳導的化合物，故設定含量為 AlN 燒結體之 0.2 重量% 以下。

將上記 AlN 原料粉末，各種燒結助劑，Si 成份用 Si 代合物及 B₄C，投入例如球磨機等粉碎混合機內經一定時間混合而形成原料混合體。其次將所得原料混合體充填入一定形狀之模具經加壓成形而形成成形體。此時預先於原料混合體添加 5 ~ 10 重量% 之石蠟，硬脂酸等有機膠粘劑，可使成形操作更圓滑進行。

成形法可以常用之模具加壓法，淤漿鑄入法，靜水壓加壓法，擠壓成形法，或刮片法等片狀成形法皆可適可。

於上記成形操作後，將成形體於空氣中以 400 ~ 550 °C 加熱，或於非氧化性環境中，例如氮氣環境中以 400 ~ 800 °C 加熱，將預先添加之有機膠粘劑充份脫

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

8

脂去除。

其次將經脫脂處理之複數片狀成形體，例如經由陶瓷燒結粉形成之離形劑於燒結爐內進行多段積層後，將此配置狀態之複數成形體一起依所定溫度進行燒結。燒結操作係於氮氣等非氧化性氣體環境下之成形體於 1650 ~ 1900 °C 進行 2 ~ 6 小時之加熱。特別是在添加 Si 成份後，可於 1720 ° ~ 1780 °C 之較以往為低的溫度下進行燒結。

燒結環境只要為不與 AlN 反應之非氧化性氣體環境下即可，一般於氮氣，或含有氮氣之還原性環境內進行。還原性氣體可使用 H₂ 氣體，CO 氣體等。又，燒結可於真空（僅含些許還原氣體環境），減壓，加壓及常壓之氣體環境進行。

燒結溫度未達 1650 °C 之低溫狀態進行燒成時，因原料粉末之粒徑，含氧量等不同，故不易形成緻密化，而容易於強度及熱傳導性等特性產生問題，又，高於 1900 °C 之溫度下進行燒成，爐內 AlN 本身蒸氣壓過高不易產生緻密化且有熱傳導率大幅降低之顧慮，故燒結溫度以設定為上記範圍為佳。

其中上記 AlN 原料粉末在添加燒結助劑，B₄C 及 Si 成份後形成之原料混合體經成形，脫脂，燒結後，可得平均結晶粒徑 3 ~ 4.5 μm 左右微細程度，粒界相與 AlN 結晶度得以改善外，具有 B₄C 粒子均勻分散之結晶組織，熱傳導率 130 W / m · K 以上，及撓曲強度為

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(9)

450 MPa 以上，破壞韌性值為 $3.0 \text{ MN} / \text{m}^{3/2}$ 以上之高強度之高韌性 AlN 燒結體。

依上記氮化鋁燒結體及其製造方法，周期表 I I I a 族元素 Ca, Sr, Ba 之氧化物形成之燒結助劑與添加定量 Si 成份及 B_4C 形成之 AlN 燒結體，可得依 Si 成份控制至正常結晶粒大小之結晶組織。又 B_4C 可改善粒界相與 AlN 結晶粒之結合度，且可得具有 B_4C 粒子均勻分散微構造之結晶組織。因此可得有效阻止裂隙擴大之同時具有優良強度特性及破壞韌性值之氮化鋁燒結體。

以下將參照實施例對本發明之氮化鋁燒結體作具體之說明。

實施例 1 ~ 30

對依還原氮化合成法製造之，含不純物氧 0.8 重量%，平均粒徑 $1 \mu\text{m}$ 之氮化鋁粉末 (A)，與直接依氮化合成法製造之，含有不純物氧 1.2 重量%，平均粒徑 $1.3 \mu\text{m}$ 之氮化鋁粉末，與上記 (A) 及 (B) 氮化鋁粉末依重量比 1 : 1 混合製得之氮化鋁粉末 (C) 3 種氮化鋁原料粉末，依表 1 所示之 Si 成份， B_4C 及燒結助劑之 Y_2O_3 , TiO_2 , Fe_2O_3 , NiO , Cr_2O_3 , CoO , Li_2O , MgO , SiO_2 , Si_3N_4 , SiC , Si_2N_2O , α -矽鋁化物， β -矽鋁化物，聚合物形態 AlN, CaO, BaO 及 SrO 各自進行定量添加，以乙醇為溶媒於球磨機進行 20 小時混合製得原料混合體

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (10)

。其次將此原料混合體添加有機膠粘劑之石蠟 5 . 5 重量 % 製作造粒粉。

其次將所得造粒粉充填入加壓成形機中成形用模具內，以 1200 kg/cm^2 之單軸方向加壓力壓縮成形，製得多數個長 $50 \text{ mm} \times$ 寬 $50 \text{ mm} \times$ 厚 5 mm 之板狀成形體。再將各成形體於空氣中以 450°C ，1 小時加熱方式進行脫脂處理。

其後將脫脂處理後之各成形體置入 A Q N 製燒成容器內，燒成爐依表 1 所示燒成下限溫度 $1720 \sim 1780^\circ\text{C}$ 進行 4 小時緻密化燒結，其次再以冷卻速度 200°C/hr 方式冷卻，以製得實施例 1 ~ 30 之 A Q N 燒結體。

比較例 1

另一方面，如表 2 所示般，完全不添加 S i 成份及 B₄C，僅添加以往的燒結助劑以 1800°C 進行燒結外，其他皆依實施例 1 相同條件進行原料添加，成形，脫脂，燒結處理而得相同尺寸之比較例 1 A Q N 燒結體。

比較例 2

又，完全不添加 S i 成份，且於 1780°C 進行燒結外，其他皆依實施例 2 相同條件處理而得比較例 2 之 A Q N 燒結體。

比較例 3

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (11)

於實施例 10 之 A Q N 原料 (B) 中完全不添加 S i 成份，且於 1780 °C 進行燒結外，其他皆依實施例 10 相同條件進行原料添加，成形，脫脂，燒結處理而得相同尺寸之比較例 3 A Q N 燒結體。

比較例 4

將燒結助劑之 Y_2O_3 以過量之 1.5 重量 % 方式添加，且於 1800 °C 進行燒結外，其他皆依實施例 2 相同條件處理而得比較例 4 之 A Q N 燒結體。

比較例 5

將 S i 成份之 Si_3N_4 以過量之 0.3 重量 % (換算為 S i) 方式添加，且於 1720 °C 進行燒結外，其他皆依實施例 2 相同條件處理而得比較例 5 之 A Q N 燒結體。

比較例 6

將 B_4C 以過量之 3 重量 % 方式添加，且於 1780 °C 進行燒結外，其他皆依實施例 2 相同條件處理而得比較例 6 之 A Q N 燒結體。

比較例 7

於燒結助劑之 Y_2O_3 中添加過量之 TiO_2 1 重量 % 及 S i 成份為 0.2 重量 % (換算為 S i) 之 Si_3N_4 ，同時添加 B_4C 0.5 重量 %，且於 1700 °C 進行燒

(請先閱讀背面之注意事項再填寫(頁))

裝

訂

線

五、發明說明 () 12

結外，其他皆依實施例 7 相同條件處理而得比較例 7 之 A Q N 燒結體。

為評估實施例 1 ~ 30 及比較例 1 ~ 7 之各 A Q N 燒結體的強度特性及放熱特性，經測試各試料之 3 點撓曲強度，破壞韌性值，熱傳導率及平均結晶粒徑 (D 5 0)，得下記表 3 結果。又，破壞韌性值係以微壓法 (micro indentation) 中「新原」方式所測定之值。又，各 A Q N 燒結體組成及燒結溫度皆載於表 1 ~ 2 中。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(13)

表 1

試料號碼	原料混合物的組成比例(重量%)										燒結下限溫度(°C)
	燒結助劑成分				B ₄ C	Si成分		A ₂ O ₃ 粉末			
	種類	添加量	種類	添加量		換算為Si	添加源	種類	添加量		
實	1	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.2	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1740
	2	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1760
	3	Y ₂ O ₃	5	-	-	1	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1760
	4	Y ₂ O ₃	5	-	-	2	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1780
	5	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.01	Si ₃ N ₄	A	載體	1760
	6	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1740
	7	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.2	Si ₃ N ₄	A	載體	1720
	8	Y ₂ O ₃	1	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1760
	9	Y ₂ O ₃	10	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1780
	10	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	B	載體	1780
例	11	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	C	載體	1760
	12	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.05	SiO ₂	A	載體	1740
	13	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.05	SiC	A	載體	1740
	14	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.05	Si ₂ N ₂ O	A	載體	1740
	15	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	α矽鋁化物	A	載體	1740
	16	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	β矽鋁化物	A	載體	1740
	17	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.1	聚合物形態A ₂ N	A	載體	1740
	18	Y ₂ O ₃	5	TiO ₂	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720
	19	Y ₂ O ₃	5	TiO ₂	0.5	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1700
	20	Y ₂ O ₃	5	Fe ₂ O ₃	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720
21	Y ₂ O ₃	5	NiO	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720	
22	Y ₂ O ₃	5	Cr ₂ O ₃	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720	
23	Y ₂ O ₃	5	CoO	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720	
24	Y ₂ O ₃	5	Li ₂ O	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720	
25	Y ₂ O ₃	5	MgO	0.1	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1720	
26	CaO	3	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1780	
27	BaO	3	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1780	
28	SrO	3	-	-	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	A	載體	1780	
29	Y ₂ O ₃	5	TiO ₂	0.2	0.5	0.05	Si ₃ N ₄	B	載體	1760	
30	Y ₂ O ₃	5	Fe ₂ O ₃	0.1	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	B	載體	1760	

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(14)

表 2

試料號碼	原料混合物的組成比例(重量%)										燒結下限
	燒結助劑成分				B ₄ C	Si 成分		AlN 粉末		溫度 (°C)	
	種類	添加量	種類	添加量		換算為Si	添加源	種類	添加量		
比較 例	1	Y ₂ O ₃	5	-	-	-	-	-	A	載體	1800
	2	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	-	-	A	載體	1780
	3	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	-	-	B	載體	1780
	4	Y ₂ O ₃	15	-	-	0.5	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1800
	5	Y ₂ O ₃	5	-	-	0.5	0.3	Si ₃ N ₄	A	載體	1720
	6	Y ₂ O ₃	5	-	-	3	0.1	Si ₃ N ₄	A	載體	1780
	7	Y ₂ O ₃	5	TiO ₂	1	0.5	0.2	Si ₃ N ₄	A	載體	1700

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(15)

〔表3〕

試料號碼	燒結體特性				
	3點彎曲 (MPa)	破壞韌性值 (MN/m ^{3/2})	熱傳導率 (W/m·K)	粒徑 D ₅₀ (μm)	
實	1	515	3.05	164	3.5
	2	580	3.10	162	3
	3	550	3.15	160	3
	4	490	3.18	148	3
	5	500	3.15	180	4
	6	510	3.10	174	3.5
施	7	590	3.08	149	3
	8	506	3.15	140	3.7
	9	500	3.05	162	4
	10	510	3.40	150	4.5
	11	525	3.25	156	4
	12	520	3.12	172	3.5
	13	528	3.10	170	3.5
	14	555	3.12	169	3
	15	540	3.15	160	3
	16	550	3.10	159	3
	17	560	3.20	165	3
	18	525	3.22	167	3.5
	19	545	3.25	144	3
	20	530	3.20	160	3.5
例	21	535	3.15	160	3
	22	560	3.10	160	3
	23	500	3.08	152	3.5
	24	475	3.15	156	4.5
	25	490	3.12	158	4
	26	495	3.05	145	4.5
	27	480	3.10	140	4.5
	28	480	3.04	142	4.5
	29	530	3.50	141	3.5
	30	545	3.50	140	3.5
比	1	400	2.70	190	5.5
	2	420	3.10	180	5
	3	440	3.15	160	5
	4	435	2.95	150	5
	5	510	3.10	128	4
	6	445	2.95	130	5
	7	520	3.10	128	4

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明()
16

如上表 1 ~ 3 所示結果般，於 Y_2O_3 ， CaO 等燒結助劑中分別組合添加微量 B_4C 及 Si 成份之實施例 1 ~ 30 的 AlN 燒結體，其結晶粒徑皆為 $3 \sim 4.5 \mu m$ 之極細程度，且 B_4C 可改善粒界面與 AlN 結晶粒之結合度，亦可得 B_4C 粒子均勻分散之結晶組織，因 B_4C 粒子可阻礙裂隙之擴大，而具有除高撓曲強度兼具優良破壞韌性值及熱傳導率。

另一方面，完全未添加 Si 成份之比較例 1，比較例 2 及比較例 3 之 AlN 燒結體，除熱傳導率較實施例 1 ~ 30 優良外，大致有撓曲強度低下，耐久性及處理性等困難點。又， Si 成份過量添加之比較例 5 的試料，其熱傳導率不充份；而過量添加目前作為燒結助劑之 Y_2O_3 的比較例 4，無論有無添加 Si 成份，其熱傳導率及強度皆不佳。

又，添加適量 TiO_2 之比較例 7 的 AlN 燒結體其撓曲強度及韌性值雖與實施例 1 ~ 30 相同，但熱傳導率並不佳。且 B_4C 過量添加之比較例 6 的 AlN 燒結體其熱傳導率，撓曲強度及破壞韌性值皆不佳。

如以上說明之本發明的陶瓷燒結體及其製造方法，由周期表 I I I a 族元素 Ca ， Sr ， Ba 氧化物所形成之燒結助劑配合定量 Si 成份及 B_4C 添加至 AlN 燒結體，可得經 Si 成份適當控制結晶粒大小之結晶組織。又可以 B_4C 改善粒界相與 AlN 結晶粒之結合度，且可得具有 B_4C 粒子微構造呈均勻分散之結晶組織。因此，可得

(請先閱讀背面之注意事項再填寫頁)

裝

訂

線

五、發明說明 ()
17

有效阻止裂隙擴大且具優異強度特性及破壞韌性值之氮化鋁燒結體。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫頁)

裝

訂

線

四、中文創作摘要(創作之名稱:

氮化鋁燒結體

本發明之氮化鋁燒結體，係由周期表第 III a 族元素 Ca, Sr, Ba 所選出至少 1 種元素之氧化物 1 ~ 10 重量% 與，碳化硼 0.2 ~ 2.0 重量% 與，由 SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-矽鋁化物, α-矽鋁化物及聚合物形態氮化鋁 (Al-Si-O-N) 所選擇之換算為 Si 成份為 0.2 重量% 以下的至少 1 種矽化合物與，載體所組成之氮化鋁為特徵。依上述組成可得到一種抑制 AlN 燒結體粒成長，燒結體組織微細化及粒界相與粒晶粒強力結合之燒結體及可改善破壞韌性值，而不損氮化鋁特有的放熱特性同時提高機械性強度及破壞韌性值之 AlN 燒結體。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

英文創作摘要(創作之名稱: Aluminium nitride sintered body)

The aluminum nitride sintered body according to the present invention comprises 1 - 10 % by weight of at least one element selected from a group consisting of a group IIIa element listed in periodic table, Ca, Sr and Ba in terms of the amount of an oxide thereof, 0.2 - 2.0 % by weight of boron carbide, at most 0.2 % by weight of at least one silicon compound selected from a group consisting of SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-Sialon, α-Sialon and poly-type aluminum nitride (Al-Si-O-N) in terms of the amount of Si component, and the balance of aluminum nitride. According to the foregoing structure, there is available an AlN sintered body in which grain growth of the AlN sintered body is inhibited; the sintered body structure is fined; coupling of grain boundaries and crystal grains is intensified, thereby improving both strength and fracture toughness of the sintered body and increasing mechanical strength and fracture toughness without impairing heat radiation characteristics intrinsic to aluminum nitride.

四、中文創作摘要(創作之名稱:

氮化鋁燒結體

本發明之氮化鋁燒結體，係由周期表第 III a 族元素 Ca, Sr, Ba 所選出至少 1 種元素之氧化物 1 ~ 10 重量% 與，碳化硼 0.2 ~ 2.0 重量% 與，由 SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-矽鋁化物, α-矽鋁化物及聚合物形態氮化鋁 (Al-Si-O-N) 所選擇之換算為 Si 成份為 0.2 重量% 以下的至少 1 種矽化合物與，載體所組成之氮化鋁為特徵。依上述組成可得到一種抑制 AlN 燒結體粒成長，燒結體組織微細化及粒界相與粒晶粒強力結合之燒結體及可改善破壞韌性值，而不損氮化鋁特有的放熱特性同時提高機械性強度及破壞韌性值之 AlN 燒結體。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

英文創作摘要(創作之名稱: Aluminium nitride sintered body)

The aluminum nitride sintered body according to the present invention comprises 1 - 10 % by weight of at least one element selected from a group consisting of a group IIIa element listed in periodic table, Ca, Sr and Ba in terms of the amount of an oxide thereof, 0.2 - 2.0 % by weight of boron carbide, at most 0.2 % by weight of at least one silicon compound selected from a group consisting of SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-Sialon, α-Sialon and poly-type aluminum nitride (Al-Si-O-N) in terms of the amount of Si component, and the balance of aluminum nitride. According to the foregoing structure, there is available an AlN sintered body in which grain growth of the AlN sintered body is inhibited; the sintered body structure is fined; coupling of grain boundaries and crystal grains is intensified, thereby improving both strength and fracture toughness of the sintered body and increasing mechanical strength and fracture toughness without impairing heat radiation characteristics intrinsic to aluminum nitride.

六、申請專利範圍

第 8510841 號 專利 申請 案

附件一 A

中文 申請 專利 範圍 修正 本

民國 87 年 12 月 修正

1. 一種氮化鋁燒結體，其特徵為由 1 ~ 10 重量% 至少一種選自周期表第 I I I a 族元素 Ca, Sr, Ba 之元素的氧化物 0.2 ~ 2.0 重量% 碳化硼與至少一種選自 SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-矽鋁化物, α-矽鋁化物及聚合物形態氮化鋁 (Al-Si-O-N) 之換算為 Si 成份為 0.2 重量% 以下的矽化合物，與其餘為構成其之氮化鋁所成。

2. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中含有經換算氧化物為 0.05 ~ 0.5 重量% 之至少一種選自 Ti, Fe, Ni, Cr, Co, Li, Mg 的金屬元素之氧化物。

3. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中破壞韌性值為 3 MN / m^{3/2} 以上。

4. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中 3 點撓曲強度為 450 MPa 以上。

5. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中熱傳導率為 130 W / m · K 以上。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

東

六、申請專利範圍

第 8510841 號 專 利 申 請 案

附件一 A

中 文 申 請 專 利 範 圍 修 正 本

民 國 87 年 12 月 修 正

1. 一種氮化鋁燒結體，其特徵為由 1 ~ 10 重量% 至少一種選自周期表第 I I I a 族元素 Ca, Sr, Ba 之元素的氧化物 0.2 ~ 2.0 重量% 碳化硼與至少一種選自 SiO₂, Si₃N₄, SiC, Si₂N₂O, β-矽鋁化物, α-矽鋁化物及聚合物形態氮化鋁 (Al-Si-O-N) 之換算為 Si 成份為 0.2 重量% 以下的矽化合物，與其餘為構成其之氮化鋁所成。

2. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中含有經換算氧化物為 0.05 ~ 0.5 重量% 之至少一種選自 Ti, Fe, Ni, Cr, Co, Li, Mg 的金屬元素之氧化物。

3. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中破壞韌性值為 3 MN / m^{3/2} 以上。

4. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中 3 點撓曲強度為 450 MPa 以上。

5. 如申請專利範圍第 1 項之氮化鋁燒結體，其中熱傳導率為 130 W / m · K 以上。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

東