



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I746448 B

(45)公告日：中華民國 110 (2021) 年 11 月 21 日

(21)申請案號：105121609

(22)申請日：中華民國 105 (2016) 年 07 月 07 日

(51)Int. Cl. : C08L63/00 (2006.01)

C08G59/40 (2006.01)

C08K9/06 (2006.01)

(30)優先權：2015/07/10 日本

2015-138447

(71)申請人：日商昭和電工材料股份有限公司 (日本) SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.
(JP)

日本

(72)發明人：田中賢治 TANAKA, KENJI (JP)；片木秀行 KATAGI, HIDEYUKI (JP)；竹澤由
高 TAKEZAWA, YOSHITAKA (JP)

(74)代理人：李世章

(56)參考文獻：

CN 103917605A

JP 2013-227307A

審查人員：韓薰蘭

申請專利範圍項數：項 圖式數： 共頁

(54)名稱

環氧樹脂成形材料、成形物及硬化物

(57)摘要

一種環氧樹脂成形材料，其含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料，其中，前述硬化劑包含二
苯并[g,p]

蒽

，該二苯并[g,p]

蒽

具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基。

An epoxy resin molding material, comprising an epoxy resin, a curing agent and an inorganic filler, the curing agent comprising a dibenzo[g,p]chrysene having at least two substituents that are independently a hydroxy group or an amino group.



I746448

【發明摘要】

【中文發明名稱】環氧樹脂成形材料、成形物及硬化物

【英文發明名稱】 EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL, MOLDED
PRODUCT AND CURED PRODUCT

【中文】一種環氧樹脂成形材料，其含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料，其中，前述硬化劑包含二苯并[*g*,*p*]蒽，該二苯并[*g*,*p*]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基。

【英文】 An epoxy resin molding material, comprising an epoxy resin, a curing agent and an inorganic filler, the curing agent comprising a dibenzo[*g*,*p*]chrysene having at least two substituents that are independently a hydroxy group or an amino group.

【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】環氧樹脂成形材料、成形物及硬化物

【英文發明名稱】EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL, MOLDED
PRODUCT AND CURED PRODUCT

【技術領域】

【0001】 本發明關於一種環氧樹脂成形材料、成形物及硬化物。

【先前技術】

【0002】 使用於產業用與汽車用馬達、反相器(inverter)等裝置中的絕緣材料，從絕緣性能的高度、成形的容易度、耐熱性等觀點來看，環氧樹脂等熱硬化性樹脂被廣泛地使用。近年來，急速地進行該等裝置的高輸出(output)化和小型化，並且亦相當程度地提高了絕緣材料所要求的特性的等級。尤其，由經伴隨小型化而進行高密度化之導體所產生的放熱量有增加的傾向，所以該如何使熱發散便成為重要的問題。因此，已嘗試了各種使熱硬化性樹脂的成形後的導熱性提升的方法。

【0003】 作為一種使熱硬化性樹脂的成形後的導熱性提升的方法，列舉了將高導熱性的填充材料混合在熱硬化性樹脂中的方法(例如，參照專利文獻1)。

[先前技術文獻]

(專利文獻)

【 0 0 0 4 】

專利文獻 1：日本特開 2008-13759 號公報

【發明內容】**【 0 0 0 5 】 [發明所欲解決的問題]**

當在熱硬化性樹脂中混合無機填充材料時，隨著無機填充材料的量的增加，會使樹脂組成物的黏度上升，而會有操作性惡化、或無機填充材料的分散性降低等傾向。因此，只要能夠使可混合在熱硬化性樹脂中的無機填充材料的量增加，便能夠期待成形後的導熱性更進一步地提升。進而，亦可期望耐熱性等其他特性的提升。

有鑑於該狀況，本發明所欲解決的問題為提供：一種環氧樹脂成形材料，其成形後的導熱性和耐熱性優異；以及，使用該環氧樹脂成形材料而成之成形物及硬化物。

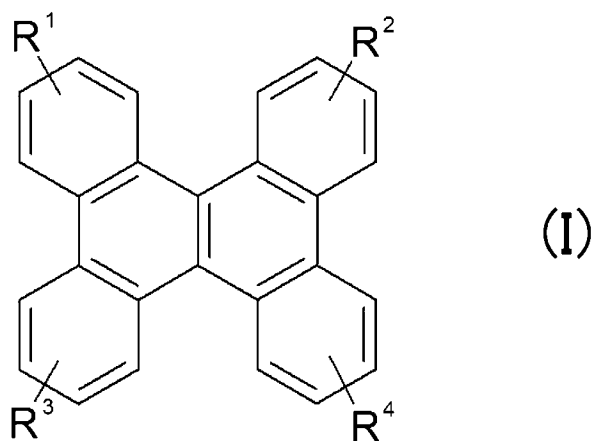
[解決問題的技術手段]

【 0 0 0 6 】 解決前述問題的具體的手段如同下述。

< 1 > 一種環氧樹脂成形材料，其含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料，其中，前述硬化劑包含二苯并[*g,p*]蒽(dibenzo[*g,p*]chrysene)，該二苯并[*g,p*]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基。

< 2 > 如< 1 >所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述二苯并[*g,p*]蒽是由下述通式(I)所表示之化合物：

【 0 0 0 7 】



【0008】 通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 各自獨立地為氫原子或一價的基，並且 $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個各自獨立地為羥基或胺基。

<3> 如<2>所述之環氧樹脂成形材料，其中，通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個為羥基。

<4> 如<2>或<3>所述之環氧樹脂成形材料，其中，通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 全部為羥基。

<5> 如<2>～<4>中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，由通式(I)所表示之化合物，在前述硬化劑的整體中的比例為20質量%以上。

<6> 如<1>～<5>中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述環氧樹脂包含具有液晶基骨架之環氧樹脂。

<7> 如<6>所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有液晶基骨架之環氧樹脂，在前述環氧樹脂的整體中的比例為50質量%以上。

< 8 > 如 < 6 > 或 < 7 > 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有液晶基骨架之環氧樹脂，在前述環氧樹脂的整體中的比例為 90 質量 % 以上。

< 9 > 如 < 1 > ~ < 8 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，進一步包含矽烷偶合劑。

< 10 > 如 < 9 > 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述矽烷偶合劑包含具有苯基之矽烷偶合劑。

< 11 > 如 < 10 > 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有苯基之矽烷偶合劑，具有苯基直接鍵結在矽原子上而成的結構。

< 12 > 如 < 9 > ~ < 11 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，在前述無機填充材料的每單位比表面積中，源自前述矽烷偶合劑的矽原子的附著量為 5.0×10^{-6} 莫耳 / m^2 ~ 10.0×10^{-6} 莫耳 / m^2 。

< 13 > 如 < 1 > ~ < 12 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述無機填充材料，包含選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種。

< 14 > 如 < 1 > ~ < 13 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，在前述無機填充材料的固體成分中，前述無機填充材料的含有率為 60 體積 % ~ 90 體積 %。

< 15 > 如 < 1 > ~ < 14 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料，其中，該環氧樹脂成形材料處於 A - 階段狀態。

< 16 > 如 < 15 > 所述之環氧樹脂成形材料，其中，在 180 °C 加熱 1 小時後的質量減少率為 0.1 質量 % 以下。

< 17 > 一種成形物，其是藉由將< 1 > ~ < 16 > 中任一項所述之環氧樹脂成形材料進行成形而製成。

< 18 > 一種硬化物，其是藉由將< 17 > 所述之成形物進行加熱處理而製成。

[發明的效果]

【0009】 根據本發明，可提供：一種環氧樹脂成形材料，其成形後的導熱性和耐熱性優異；以及，使用該環氧樹脂成形材料而成之成形物及硬化物。

【圖式簡單說明】無。

【實施方式】

【0010】 以下，詳細地說明用以實施本發明的形態。但是，本發明並未限定於以下的實施形態。在以下的實施形態中，其構成要素(亦包含要素階段等)，除了特別明示的情況以外，並不為必須。數值和其範圍亦相同，並非用以限制本發明。

【0011】 本說明書中，「步驟」的用語，不僅為獨立的步驟，即便是與其他步驟無法明確區別，只要可達成該步驟所期望的目的，亦包含於本用語中。

本說明書中，使用「~」所示之數值範圍，是表示將「~」的前後所述之數值分別作為最小值及最大值來包含。

本說明書中，組成物中的各成分的含有率，當在組成物中存在複數種相當於各成分的物質時，只要無特別說明，是意指存在於組成物中的該複數種物質的合計的含有率。

本說明書中，組成物中的各成分的粒徑，當在組成物中存在複數種相當於各成分的粒子時，只要無特別說明，是意指存在於組成物中的該複數種粒子的混合物的值。

本說明書中，「層」的用語，當觀察存在該層的區域時，除了形成於該區域整面的情況之外，亦包含僅形成於該區域的一部分的情況。

【0012】 <環氧樹脂形成材料>

本實施形態的環氧樹脂成形材料，含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料；其中，前述硬化劑，包含二苯并[g,p]蒽(以下，亦稱為特定硬化劑)，該二苯并[g,p]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基。

【0013】 藉由本發明人的研究，可知：相較於使用先前的硬化劑的情況，當使用特定硬化劑作為硬化劑時，能夠在不損害環氧樹脂成形材料的流動性的情況下增加無機填充材料的量。這點顯示了能夠提升環氧樹脂成形材料的成形後的導熱性。

進一步，藉由本發明人的研究，可知：相較於使用先前的硬化劑的情況，當使用特定硬化劑作為硬化劑

時，成形後的玻璃轉移溫度(T_g)較高。這點顯示了成形後的耐熱性優異。又，可知：相較於使用先前的硬化劑的情況，當使用特定硬化劑作為硬化劑時，對環氧樹脂成形材料進行成形後由模具取出的狀態的成形物的玻璃轉移溫度，與將成形物進行熱處理所得的硬化物的玻璃轉移溫度的差值較小。這點顯示：即便為成形後由模具取出的狀態，亦可達成接近熱處理後的狀態時的耐熱性，繼而可縮短或省略成形後的熱處理步驟。

【0014】 以下，詳細地說明本實施形態的環氧樹脂成形材料中所含有的各成分。

(環氧樹脂)

環氧樹脂成形材料中所包含的環氧樹脂的種類，並無特別限制。可列舉例如：雙酚A型環氧樹脂；雙酚F型環氧樹脂；雙酚AD型環氧樹脂；氫化雙酚A型環氧樹脂；氫化雙酚AD型環氧樹脂；萘型環氧樹脂；及，僅具有一個環氧基之環氧樹脂，其被稱為反應性稀釋劑。環氧樹脂，可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。

【0015】 從提升導熱性的觀點來看，環氧樹脂成形材料，較佳是包含具有液晶基骨架之環氧樹脂來作為環氧樹脂。

【0016】 本說明書中，所謂的「液晶基骨架」，意指具有表現液晶性的可能性之分子結構。具體而言，可列舉包含以下骨架的分子結構：聯苯骨架、苯甲酸苯酯骨架、偶氮苯(azobenzene)骨架、二苯乙烯骨架、及該

等的衍生物等。具有液晶基骨架之環氧樹脂有容易形成高階結構、並且能夠進一步提高成為成形物時的導熱率的傾向。此處，所謂的高階結構，是意指其構成要素微小地排列的狀態，例如，相當於結晶相和液晶相。如此的高階結構是否存在，藉由以偏光顯微鏡觀察可以容易地進行判斷。亦即，在正交偏光(crossed-nicol)狀態的觀察中可看見由於消偏光(depolarization)所產生的干涉條紋時，便能夠判斷為高階結構存在。高階結構，通常在樹脂中是以島狀存在，並且形成區域結構(domain structure)。並且，形成區域結構的島各自稱為高階結構體。構成高階結構體的構造單元彼此，一般而言是以共價鍵進行鍵結。

【0017】 具有液晶基骨架之環氧樹脂的具體例，例如記載於日本專利4118691號說明書中。以下，表示了具有液晶基骨架之環氧樹脂的具體例，但本實施形態並不限於該等具體例。

作為具有液晶基骨架之環氧樹脂，可列舉：聯苯型環氧樹脂、1-(3-甲基-4-環氧乙烷基甲氧基苯基)-4-(4-環氧乙烷基甲氧基苯基)-1-環己烯、1-(3-甲基-4-環氧乙烷基甲氧基苯基)-4-(4-環氧乙烷基甲氧基苯基)-苯、反式-4-(2,3-環氧基丙氧基)苯甲酸=4-{4-(2,3-環氧基丙氧基)苯基}環己酯等。「=」表示形成酯的部分。

聯苯型環氧樹脂，可由利用公知的方法使表氯醇與雙酚化合物進行反應來獲得。作為如此的聯苯型環氧樹脂，可列舉：4,4'-雙(2,3-環氧基丙氧基)聯苯等，並且作為市售品可購入YL-6121H(三菱化學股份有限公司製)等。

具有液晶基骨架之環氧樹脂，可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。

具有液晶基骨架之環氧樹脂的環氧當量，較佳是 $130\text{ g/eq} \sim 500\text{ g/eq}$ ，更佳是 $135\text{ g/eq} \sim 400\text{ g/eq}$ ，進一步較佳是 $140\text{ g/eq} \sim 300\text{ g/eq}$ 。

【0018】具有液晶基骨架之環氧樹脂，可以是預聚物的狀態，該預聚物是藉由硬化劑等使一部分進行部分反應而成。具有液晶基骨架之環氧樹脂，一般而言較為容易進行結晶化並且對溶劑的溶解度亦較低者，所以若使具有液晶基骨架之環氧樹脂的一部分進行聚合，便可有抑制結晶化的傾向。因此，利用成為預聚物的狀態，有時可提升成形材料的成形性。

【0019】本實施形態的環氧樹脂成形材料中，當環氧樹脂包含具有液晶基骨架之環氧樹脂時，具有液晶基骨架之環氧樹脂，在環氧樹脂的整體中的比例，較佳是50質量%以上，更佳是90質量%以上，進一步較佳是95質量%以上。

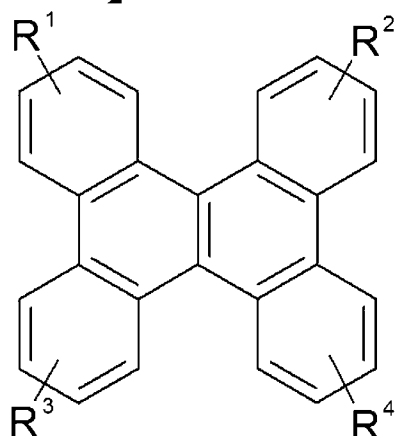
【0020】(硬化劑)

環氧樹脂成形材料中所包含的硬化劑，包含二苯并[g,p]蒽(以下，亦稱為特定硬化劑)，該二苯并[g,p]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基。至少兩個取代基，較佳是各自位於二苯并[g,p]蒽中互不相同的縮合芳香環上。又，至少兩個取代基的數量，較佳是2~4，更佳是4。

【0021】 從成形後的耐熱性的觀點來看，特定硬化劑，較佳是具有至少兩個羥基之二苯并[g,p]蒽，更佳是具有四個羥基之二苯并[g,p]蒽，進一步較佳是具有四個各自位於二苯并[g,p]蒽中互不相同的縮合芳香環上的羥基。特定硬化劑，可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。

【0022】 特定硬化劑，較佳是由下述通式(I)所表示之化合物。該化合物的詳情，例如能夠參照日本特開2014-152164號公報。

【0023】



(I)

【0024】 通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 各自獨立地為氫原子或一價的基，並且 $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個為各自獨立的羥基或胺基。

【0025】 上述通式(I)中，一價的基並無特別限制。作為一價的基，可列舉例如：羥基、胺基、脂肪族羥基、脂環式羥基及芳香族羥基。其中，較佳是羥基、胺基及脂肪族羥基，更佳是羥基及胺基。脂肪族羥基、脂環式羥基及芳香族羥基的碳數，例如可以各自獨立地為1～10，較佳是1～5，更佳是1～3。

【0026】 從成形後的耐熱性的觀點來看，在上述通式(I)中，較佳是 $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個為羥基，更佳是 $R^1 \sim R^4$ 皆為羥基。

【0027】 本實施形態的環氧樹脂成形材料，可以含有特定硬化劑以外的硬化劑作為硬化劑。作為其他硬化劑，可以使用通常使用的硬化劑而無特別限制，並且能夠使用酚類化合物、將酚類化合物進行酚醛清漆化而成之酚樹脂等。

【0028】 當硬化劑包含特定硬化劑與特定硬化劑以外的硬化劑時，特定硬化劑在硬化劑整體中的比例，較佳是20質量%以上，更佳是50質量%以上，進一步較佳是80質量%以上。

【0029】 環氧樹脂成形材料中的硬化劑的含量並無特別限制。例如，硬化劑所含有的活性氫的當量數與環氧

樹脂所含有的環氧基的當量數之比值(活性氫/環氧基)，較佳為0.5~2，更佳為0.8~1.2。

【0030】 (硬化促進劑)

環氧樹脂成形材料，可以含有硬化促進劑。利用將硬化劑與硬化促進劑併用，可促進環氧樹脂成形材料的硬化。硬化促進劑的種類和調配量並無特別限定，從反應速度、反應溫度、保存性等觀點來看，能夠選擇適當的硬化促進劑。

【0031】 作為硬化促進劑的具體例，可列舉：咪唑化合物、有機磷化合物、三級胺、四級銨鹽等。硬化促進劑可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。

【0032】 從耐熱性的觀點來看，較佳是有機磷化合物。作為有機磷化合物，更佳是選自由下述化合物所組成之群組中的至少一種：有機磷化合物；具有分子內的極化(polarization)的化合物，其是將具有 π 鍵的化合物加成在有機磷化合物上而成，該具有 π 鍵的化合物是馬來酸酐、醌化合物、重氮基甲苯、酚樹脂等，該醌化合物是1,4-苯醌、2,5-甲醌、1,4-萘醌、2,3-二甲基苯醌、2,6-二甲基苯醌、2,3-二甲氧基-5-甲基-1,4-苯醌、2,3-二甲氧基-1,4-苯醌、苯基-1,4-苯醌等；及，有機磷化合物與有機硼化合物的錯合物，該有機硼化合物是硼酸四苯酯、硼酸四-對甲苯酯、硼酸四正丁酯等。

【0033】 作為有機磷化合物，具體而言，可列舉：三苯磷、二苯(對甲苯)磷、三(烷基苯)磷、三(烷氧基苯)

膦、三(烷基/烷氧基苯)膦、三(二烷基苯)膦、三(三烷基苯)膦、三(四烷基苯)膦、三(二烷氧基苯)膦、三(三烷氧基苯)膦、三(四烷氧基苯)膦、三烷膦、二烷基芳膦、烷基二芳膦等。

【0034】 當環氧樹脂成形材料包含硬化促進劑時，環氧樹脂成形材料中的硬化促進劑的含有率並無特別限制。從流動性和成形性的觀點來看，硬化促進劑的含有率，以環氧樹脂與硬化劑的合計質量計，較佳是0.1質量%～1.5質量%，更佳是0.2質量%～1質量%。

【0035】 (無機填充材料)

環氧樹脂成形材料，包含無機填充材料。藉此，能夠達成高導熱性。無機填充材料，較佳是具有絕緣性。本說明書中，所謂無機填充材料的「絕緣性」，是意指：即便施加數百伏特～數千伏特左右的電壓，無機填充材料本身亦不會流通電流的性質，並且該性質是由於自價電子能帶(valence band)至位於其上的下一個能帶(band)(傳導帶)之間隔著很大的能隙所致，該價電子能帶是電子所占有的最高能階。

【0036】 作為無機填充材料，具體而言，可列舉：氮化硼、氧化鋁、二氧化矽、氮化鋁、氧化鎂、氧化矽、氫氧化鋁、硫酸鋇等。其中，從流動性、導熱性及電絕緣性(electric insulation)的觀點來看，較佳是選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種。又，在

不妨礙流動性的範圍內，可以進一步含有氮化硼、二氧化矽、氮化鋁等。

【0037】無機填充材料中，選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種的無機填充材料所占的比例，較佳是50質量%以上，更佳是80質量%以上，進一步較佳是90質量%以上。

【0038】無機填充材料，當將橫軸設為粒徑並且將縱軸設為頻率來描繪粒度分布曲線時，可以具有單一波峰，亦可以具有複數個波峰。利用使用粒度分布曲線具有複數個波峰之無機填充材料，有傾向可提升無機填充材料的填充性、並且可提升環氧樹脂成形材料作成硬化物時的導熱性。

【0039】描繪粒度分布曲線時，當無機填充材料具有單一波峰時，相當於累積50%的平均粒徑(D50)，從導熱性的觀點來看，較佳是 $0.1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ ，更佳是 $0.1\mu\text{m} \sim 70\mu\text{m}$ ，該累積50%是由無機填充材料的重量累積粒度分布的小粒徑側進行累積而得。

【0040】粒度分布曲線具有複數個波峰之無機填充材料，例如，能夠以組合兩種以上具有不同平均粒徑之無機填充材料來構成。

【0041】本實施形態中，無機填充材料的平均粒徑，當使用雷射繞射法來測定並且由小粒徑側描繪重量累積粒度分布曲線時，相當於重量累積為50%的粒徑。使用雷射繞射法而得的粒度分布測定，能夠使用雷射繞射散

射粒度分布裝置(例如,貝克曼庫爾特公司製造,LS230)來實行。

【0042】無機填充材料的比表面積並無特別限制,例如能夠由 $0.01\text{ m}^2/\text{g} \sim 2\text{ m}^2/\text{g}$ 來選擇,較佳是由 $0.1\text{ m}^2/\text{g} \sim 1.5\text{ m}^2/\text{g}$ 來選擇。

本實施形態中,無機填充材料的比表面積,是藉由BET法所測定的值。所謂的BET法,是一種氣體吸附法,其是使氮氣(N_2)、氬氣(Ar)、氙氣(Kr)等惰性氣體分子吸附在固體粒子上,然後由所吸附的氣體分子的量來測定固體粒子的比表面積。比表面積的測定,能夠使用比表面積細孔分布測定裝置(例如,貝克曼庫爾特公司製造,SA3100)來實行。

【0043】環氧樹脂成形材料中的無機填充材料的含有率,並無特別限制。從導熱性和成形性的觀點來看,當環氧樹脂成形材料的固體成分的總體積設為100體積%時,較佳是60體積%~90體積%,更佳是70體積%~85體積%。利用無機填充材料的含有率為60體積%以上,而有可達成更高的導熱性的傾向。另一方面,利用無機填充材料的含有率為90體積%以下,會有環氧樹脂成形材料的成形性優異的傾向。

【0044】本實施形態中,所謂的環氧樹脂成形材料的固體成分,意指由環氧樹脂成形材料去除有機溶劑等揮發性成分後所殘留的成分。

【0045】 本實施形態中，環氧樹脂成形材料中的無機填充材料的含有率(體積%)，是設為藉由下述式所求得之值。

$$\text{無機填充材料含有率(體積\%)} = \{ (C_w / C_d) / ((A_w / A_d) + (B_w / B_d) + (C_w / C_d) + (D_w / D_d)) \} \times 100$$

此處，各變數如同下述。

A_w：環氧樹脂的質量組成比(質量%)

B_w：硬化劑的質量組成比(質量%)

C_w：無機填充材料的質量組成比(質量%)

D_w：其他成分(任意成分)的質量組成比(質量%)

A_d：環氧樹脂的比重

B_d：硬化劑的比重

C_d：無機填充材料的比重

D_d：其他成分(任意成分)的比重

【0046】 (矽烷偶合劑)

環氧樹脂成形材料，可以包含矽烷偶合劑。利用包含矽烷偶合劑，可使無機填充材料的表面與包圍在其周圍的環氧樹脂之間產生相互作用，而提升流動性，並且可達成高導熱化，進一步可藉由妨礙水分的滲入而有提升絕緣可靠性的傾向。

【0047】 矽烷偶合劑的種類並無特別限制，可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。其中，較佳是具有苯基之矽烷偶合劑。具有苯基之矽烷偶合劑，容易與具有

液晶基骨架之環氧樹脂進行相互作用。因此，當環氧樹脂成形材料包含具有液晶基骨架之環氧樹脂作為環氧樹脂時，利用使用具有苯基之矽烷偶合劑，會有可達成更優異的導熱性的傾向。

【0048】 具有苯基之矽烷偶合劑的種類並無特別限定。作為具體例，可列舉：3-苯基胺基丙基三甲氧基矽烷、3-苯基胺基丙基三乙氧基矽烷、N-甲基苯胺基丙基三甲氧基矽烷、N-甲基苯胺基丙基三乙氧基矽烷、3-苯基亞胺基丙基三甲氧基矽烷、3-苯基亞胺基丙基三乙氧基矽烷、苯基三甲氧基矽烷、苯基三乙氧基矽烷、二苯基二甲氧基矽烷、二苯基二乙氧基矽烷、三苯基甲氧基矽烷、三苯基乙氧基矽烷等。具有苯基之矽烷偶合劑可以單獨使用一種，亦可以併用兩種以上。

【0049】 矽烷偶合劑中，具有苯基之矽烷偶合劑所占的比例，較佳是50質量%以上，更佳是80質量%以上，進一步較佳是90質量%以上。

【0050】 從使無機填充材料的表面與包圍在其周圍的環氧樹脂接近可達成優異導熱性的觀點來看，具有苯基之矽烷偶合劑，更佳是包含一種矽烷偶合劑，其苯基直接鍵結在矽原子上。

【0051】 具有苯基之矽烷偶合劑中，苯基直接鍵結在矽原子上的矽烷偶合劑所占的比例，較佳是30質量%以上，更佳是50質量%以上，進一步較佳是80質量%以上。

【0052】 當環氧樹脂成形材料包含矽烷偶合劑時，矽烷偶合劑，可以是以附著在無機填充材料的表面的狀態存在，亦可以是以未附著在無機填充材料的表面的狀態存在，亦可以是兩者混合地存在。從成形性的觀點來看，較佳是矽烷偶合劑的至少一部分附著在無機填充材料的表面，更佳是矽烷偶合劑的至少一部分經由分子中的矽原子附著在無機填充材料的表面。矽烷偶合劑的至少一部分是否附著在無機填充材料的表面，能夠藉由後述的「無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量之測定方法」來調查。

【0053】 當矽烷偶合劑的至少一部分附著在無機填充材料的表面時，無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量，較佳是 5.0×10^{-6} 莫耳/ $\text{m}^2 \sim 10.0 \times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2 ，更佳是 5.5×10^{-6} 莫耳/ $\text{m}^2 \sim 9.5 \times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2 ，進一步較佳是 6.0×10^{-6} 莫耳/ $\text{m}^2 \sim 9.0 \times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2 。

【0054】 本說明書中，所謂的「無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量」，是意指：將無機填充材料1 g中所包含之源自矽烷偶合劑的矽原子的量A(莫耳)，除以無機填充材料每1 g的表面積B(m^2)而得的值(A/B)。

【0055】 無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量之測定方法，如同下述。

首先，作為無機填充材料的比表面積之測定方法，主要使用BET法。所謂的BET法，是一種氣體吸附法，其是使氮氣(N₂)、氬氣(Ar)、氪氣(Kr)等惰性氣體分子吸附在固體粒子上，然後由所吸附的氣體分子的量來測定固體粒子的比表面積。比表面積的測定，能夠使用比表面積細孔分布測定裝置(例如，貝克曼庫爾特公司製造，SA3100)來實行。

【0056】進一步，對存在於無機填充材料表面的源自矽烷偶合劑的矽原子進行定量。作為定量方法，可使用²⁹Si CP/MAS(Cross polarization/magic angle spinning；交叉極化/魔角旋轉)固態NMR(核磁共振)、X射線螢光分析等。

核磁共振裝置(例如，日本電子股份有限公司製造，JNM-ECA700)因為具有高分解能力，故即便環氧樹脂成形材料包含二氧化矽作為無機填充材料，亦可將源自作為無機填充材料的二氧化矽的矽原子、與源自矽烷偶合劑的矽原子進行區別。

當環氧樹脂成形材料不包含源自矽烷偶合劑的矽原子以外的矽原子時，亦能夠藉由X射線螢光分析裝置(例如，理科股份有限公司製造，Supermini200)來對源自矽烷偶合劑的矽原子進行定量。

【0057】基於如上述操作所獲得之無機填充材料的比表面積、與存在於無機填充材料表面上的源自矽烷偶合

劑的矽原子的量，便可算出無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量。

【0058】 藉由實行上述測定，環氧樹脂成形材料中所包含的無機填充材料，例如，能夠藉由以下所列舉的方法由環氧樹脂成形材料中取出。

(1) 將環氧樹脂成形材料置入陶瓷製的坩堝中，利用隔焰爐 (muffle furnace) 等加熱 (例如 600℃) 來使樹脂成分燃燒。

(2) 使環氧樹脂成形材料的樹脂成分溶解於適當的溶劑中，並且藉由過濾來回收無機填充材料，然後進行乾燥。

【0059】 當環氧樹脂成形材料包含矽烷偶合劑時，對環氧樹脂成形材料添加矽烷偶合劑的方法，並無特別限制。具體而言，可列舉以下方法：整體混合方法 (integral method)，其是在混合環氧樹脂、無機填充材料等其他材料時，亦添加矽烷偶合劑；母料 (masterbatch) 法，其是將特定量的矽烷偶合劑混合在少量的樹脂中後，將該混合物與無機填充材料等其他材料進行混合；前處理法，其是在與環氧樹脂等其他材料混合之前，將無機填充材料與矽烷偶合劑混合，而預先在無機填充材料的表面上以矽烷偶合劑進行處理。作為前處理法，可列舉：乾式法，其將矽烷偶合劑的原液或溶液藉由與無機填充材料一起高速攪拌，使其分散來進行處理；濕式法，其利用以矽烷偶合劑的稀薄溶液將無

機填充材料進行漿化、或在無機填充材料中浸漬矽烷偶合劑，在無機填充材料的表面施行矽烷偶合劑處理。

【0060】（其他成分）

環氧樹脂成形材料中，除了上述的成分，亦可以包含其他成分。作為該其他成分，可列舉脫模劑、應力鬆弛劑、補強材料等；該脫模劑是氧化型或非氧化型聚烯烴、巴西棕櫚蠟、二十八酸酯、二十八酸、硬脂酸等；該應力鬆弛劑是聚矽氧油、聚矽氧橡膠粉末等；該補強材料是玻璃纖維等。

【0061】（環氧樹脂成形材料的調製方法）

環氧樹脂成形材料的調製方法，並無特別限制。作為一般的手法，可列舉下述方法：將特定的調配量的成分藉由混合機(mixer)充分混合後，將混合物進行熔融揉合，然後冷卻並且進行粉碎。熔融揉合，例如，能夠利用預先加熱成為70℃～140℃的捏合機(kneader)、混合輥(mixing roll)、擠壓機(extruder)等來實行。環氧樹脂成形材料，可以配合成形條件的大小和質量進行片狀(tablet)化。

【0062】（環氧樹脂成形材料的狀態）

環氧樹脂成形材料，較佳是A-階段狀態。若環氧樹脂成形材料為A-階段狀態，當將環氧樹脂成形材料熱處理來進行硬化時，相較於環氧樹脂成形材料為B-階段狀態，環氧樹脂與硬化劑之間進行硬化反應時所產生的反應熱量會變多，並且硬化反應會變得容易進行。本說明

書中，成為 A - 階段和 B - 階段的用語的定義，是依據日本工業規格 JIS K 6800:1985。

【0063】環氧樹脂成形材料是否為 A - 階段狀態，可藉由下述基準來判斷。將特定量的環氧樹脂成形材料，投入可溶解該環氧樹脂成形材料所包含之環氧樹脂的有機溶劑(四氫呋喃、丙酮等)中，經過特定時間後藉由過濾來將殘留的無機填充材料濾出。只要藉由濾出所獲得之殘渣的乾燥後的質量、與高溫處理後的灰分的質量之間的差值是 0.5 質量% 以內，便可判斷環氧樹脂成形材料為 A - 階段狀態。灰分的質量，是依據日本工業規格 JIS K 7250-1:2006 的規定進行測定所算出。

又，藉由示差掃描熱量計(DSC)(例如，珀金埃爾默公司製造，Pyris 1)來測定已預先判別為 A - 階段狀態的環氧樹脂成形材料的每單位特定質量的反應熱，然後設為基準值。只要之後調製而成的環氧樹脂成形材料的每單位特定質量的反應熱之測定值、與前述基準值的差值為 $\pm 5\%$ 以內，便可判斷為 A - 階段狀態。

【0064】當環氧樹脂成形材料為 A - 階段狀態時，在 180℃ 將 A - 階段狀態的環氧樹脂材料加熱 1 小時後的質量減少率，較佳是 0.1 質量% 以下。所謂的在 180℃ 將 A - 階段狀態的環氧樹脂材料加熱 1 小時後的質量減少率是 0.1 質量% 以下，是意指：A - 階段狀態的環氧樹脂成形材料是所謂的「無溶劑型」的環氧樹脂成形材料。若環氧樹脂成形材料為無溶劑型，不經過乾燥步驟便可獲

得環氧樹脂成形材料的成形物，而能夠簡化用以獲得成形物或硬化物的步驟。

【0065】 〈成形物和硬化物〉

本實施形態的成形物，可藉由將本實施形態的環氧樹脂成形材料進行成形來製作。本實施形態的硬化物，可藉由將本實施形態的成形物進行熱處理（後硬化）來製作。

【0066】 將環氧樹脂成形材料進行成形的方法並無特別限制，而能夠由加壓成形法等公知的方法依據用途來選擇。作為將環氧樹脂成形材料進行成形的方法，最一般的是轉移成形法（transfer molding），亦可以使用壓縮成形法等。環氧樹脂成形材料，在成形後亦能夠直接以由模具取出的狀態來使用。相較於先前的成形物，本實施形態的成形物，即便在不實行熱處理的狀態，仍有玻璃轉移溫度充分地高、並且耐熱性優異的傾向。

【0067】 將成形物進行熱處理的方法並無特別限制。例如，能夠使用已設定至期望的溫度的烤箱等來實行。熱處理的條件，能夠依據環氧樹脂成形材料所包含的環氧樹脂、硬化劑等成分的種類和量來選擇。例如，熱處理的溫度較佳是 $130^{\circ}\text{C} \sim 200^{\circ}\text{C}$ ，更佳是 $150^{\circ}\text{C} \sim 180^{\circ}\text{C}$ 。熱處理的時間較佳是1小時 $\sim$ 10小時，更佳是2小時 $\sim$ 6小時。

【0068】 本實施形態的成形物和硬化物，除了產業用和汽車用馬達、反相器等裝置之外，亦能夠使用於印刷線路板、半導體元件用密封材料等技術領域中。

當使用本實施形態的成形物和硬化物作為半導體元件用密封材料時，作為具備經密封的元件之電子零件裝置，可列舉例如下述電子零件裝置，其在支撐體（導線架、經裝設線路的膠帶載體（tape carrier）、線路板、玻璃、矽晶圓等支撐構件；構裝基板等）的期望的位置上裝載元件（半導體晶片、電晶體、二極體、閘流電晶體等主動元件；電容器、電阻、線圈等被動元件等），然後以本實施形態的樹脂組成物將必要的部分密封而成。

[實施例]

【0069】 以下，藉由實施例說明本發明，但是本發明之範圍並未限定於該等實施例。

【0070】 <環氧樹脂成形材料的調製>

將環氧樹脂成形材料的成分各自以下述表1～表5中所示之質量份進行調配，並且以揉合溫度80℃、揉合時間10分鐘的條件實行輥揉合，製作成實施例1～實施例11和比較例1～比較例11的環氧樹脂成形材料。表中的空格表示「未調配」。

【0071】 以下為實施例與比較例各自相同的成分：實施例1～5與比較例1～5中是環氧樹脂1與氧化鎂；實施例6～7與比較例6～7中是環氧樹脂1與氧化鋁；實施例8～9與比較例8～9中是環氧樹脂2預聚物與氧化鋁；實

施例 10 與比較例 10 中是環氧樹脂 1 和環氧樹脂 3 (併用) 與氧化鋁；實施例 11 與比較例 11 中是環氧樹脂 3 與氧化鋁。

【0072】 實施例 1 ~ 實施例 11 和比較例 1 ~ 比較例 11 的環氧樹脂成形材料，皆為 A - 階段狀態。

又，當在 180℃ 將實施例 1 ~ 實施例 11 和比較例 1 ~ 比較例 11 的環氧樹脂成形材料加熱 1 小時後，質量減少率皆為 0.1 質量 % 以下。

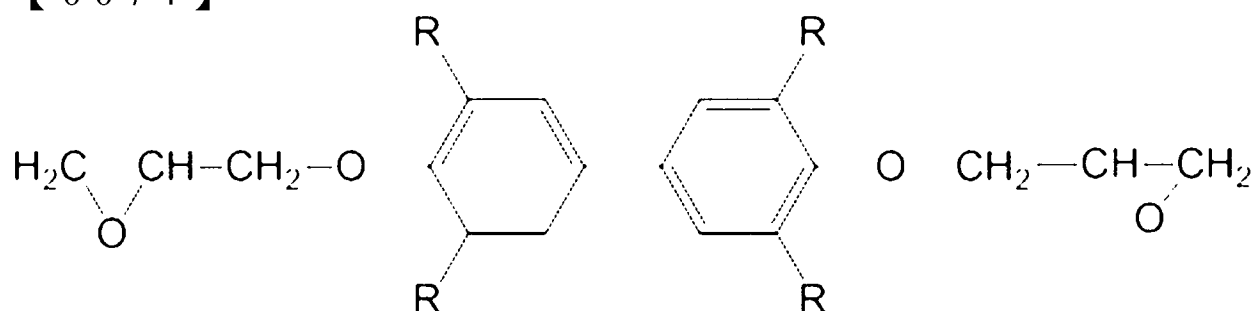
【0073】 以下表示所使用的原料與其略稱。

[環氧樹脂]

• 環氧樹脂 1

YL6121H (三菱化學股份有限公司製造；為一種混合物，其以約 1 : 1 的比例包含下述式中的 R 為 H 的化合物、及下述式中的 R 為 CH₃ 的化合物；環氧當量：172 g / eq)。

【0074】

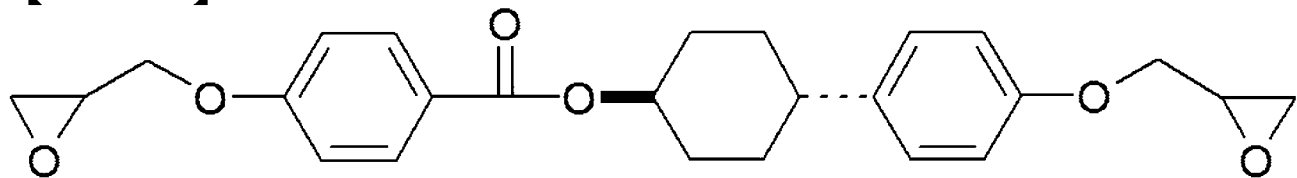


【0075】

• 環氧樹脂 2

反式 - 4 - (2 , 3 - 環 氧 基 丙 氧 基) 苯 甲 酸 = 4 - { 4 - (2 , 3 - 環 氧 基 丙 氧 基) 苯 基 } 環 己 酯 (由 下 述 結 構 所 表 示 之 化 合 物 , 參 照 日 本 專 利 第 5 4 7 1 9 7 5 號 公 報 ; 環 氧 當 量 : 2 1 2 g / e q) 。

【 0 0 7 6 】



【 0 0 7 7 】

• 環 氧 樹 脂 3 (不 具 有 液 晶 基 骨 架 之 雙 酚 F 型 環 氧 樹 脂)

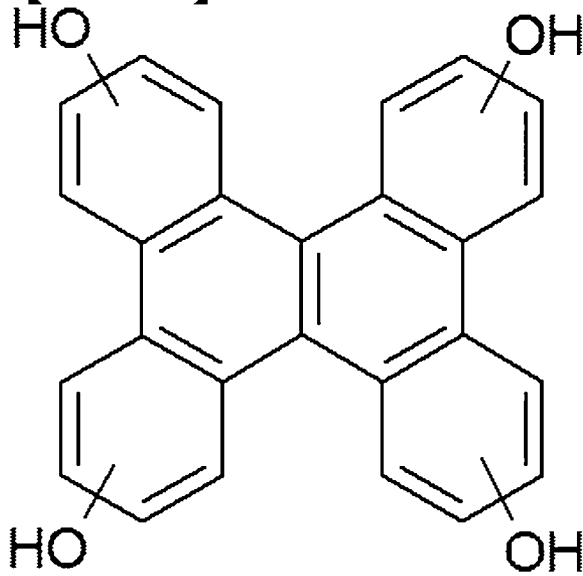
Y S L V - 8 0 X Y (新 日 鐵 住 金 化 學 股 份 有 限 公 司 製 造 ; 環 氧 當 量 : 1 9 5 g / e q) 。

【 0 0 7 8 】 [硬 化 劑]

• 硬 化 劑 1

四 羥 二 苯 并 [g , p] 蒽 (由 下 述 結 構 所 表 示 之 化 合 物 , 參 照 日 本 特 開 2 0 1 4 - 1 5 2 1 6 4 號 公 報 ; 羥 基 當 量 : 9 8 g / e q) 。

【 0 0 7 9 】



【 0 0 8 0 】

• 硬化劑 2

H - 1 0 0 (明和化成股份有限公司製造；羥基當量：
1 0 6 g / e q) 苯酚酚醛清漆樹脂。

【 0 0 8 1 】 [無機填充材料]

• P Y R O K I S U M A 3 3 5 0 (氧化鎂；協和化學工業股份有限公司製造；平均粒徑 $50\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $0.1\text{ m}^2/\text{g}$)。

• P Y R O K I S U M A 3 3 2 0 (氧化鎂；協和化學工業股份有限公司製造；平均粒徑 $20\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $0.2\text{ m}^2/\text{g}$)。

• S T A R M A G S L (氧化鎂；神島化學工業股份有限公司製造；平均粒徑 $8\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $1\text{ m}^2/\text{g}$)。

• A L 3 5 - 6 3 (氧化鋁；新日鐵住金材料股份有限公司製造；平均粒徑 $50\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $0.1\text{ m}^2/\text{g}$)。

• A L 3 5 - 4 5 (氧化鋁；新日鐵住金材料股份有限公司製造；平均粒徑 $20\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $0.2\text{ m}^2/\text{g}$)。

• A X 3 - 3 2 (氧化鋁；新日鐵住金材料股份有限公司製造；平均粒徑 $4\text{ }\mu\text{m}$ ；比表面積 $1\text{ m}^2/\text{g}$)。

【 0 0 8 2 】 [矽烷偶合劑]

• K B M - 2 0 2 S S (二苯基二甲氧基矽烷；信越化學工業股份有限公司製造；分子量 2 4 4)。

• K B M - 5 7 3 (3 - 苯基胺基丙基三甲氧基矽烷；信越化學工業股份有限公司製造；分子量 2 5 5)。

• K B M - 4 0 3 (3 - 環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷；信越化學工業股份有限公司製造；分子量 2 3 6)。

【0083】 [硬化促進劑]

- TPP (三苯膦；北興化學股份有限公司製造)。

【0084】 [脫模劑]

- 二十八酸酯 (Licowax E；Clariant Japan 公司製造)

【0085】 (環氧樹脂2預聚物的合成)

使用在實施例8、9和比較例8、9中的環氧樹脂2預聚物，由以下的方法來合成。

在500 mL的三頸燒瓶中，量取50 g (0.118 mol) 的環氧樹脂2，並且在其中添加80 g 的丙二醇單甲基醚作為溶劑。在該三頸燒瓶設置冷卻管和氮氣導入管，並且以可浸在溶劑中的方式設置攪拌葉片。將該三角燒瓶浸漬在120℃的油浴中，開始攪拌。數分鐘後，確認環氧樹脂2已溶解並且成為透明的溶液之後，在燒瓶中添加1.70 g (0.0153 mol) 的對苯二酚，進一步添加0.5 g 的三苯膦，並且以120℃的油浴溫度繼續加熱。繼續加熱五小時後，由反應溶液減壓餾除丙二醇單甲基醚，並且將殘渣冷卻至室溫，藉此來獲得環氧樹脂2預聚物。再者，該環氧樹脂2預聚物中，仍包含一部分的丙二醇單甲基醚、及未成為預聚物的未反應的環氧樹脂2。

【0086】 藉由加熱減量法來測定環氧樹脂2預聚物的固體成分的量後，為99.6質量%。再者，固體成分的量，是在鋁製的杯中量取1.0～1.1 g 的環氧樹脂2預聚物，

然後基於在溫度設定為 180°C 的乾燥機內放置 30 分鐘後的測得量與加熱前的測得量，藉由下述式算出。

固體成分的量 (%) = (放置 30 分鐘後的測得量 (g) / 加熱前的測得量 (g)) $\times 100$ 。

【0087】 當由膠透層析術 (GPC) 測定環氧樹脂 2 預聚物的數量平均分子量時，由於合成而新生成的聚合物成分的數量平均分子量為 1520，包含未反應的環氧樹脂單體之範圍的數量平均分子量為 607。

藉由過氯酸滴定法測定環氧樹脂 2 預聚物的環氧當量後，為 275 g / eq。

藉由環球法測定環氧樹脂 2 預聚物的軟化點後，為 $95^{\circ}\text{C} \sim 105^{\circ}\text{C}$ 。

【0088】 (源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量之測定)

實施例 1 ~ 11 和比較例 1 ~ 11 的環氧樹脂成形材料，是利用以下的方法來測定無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量。

首先，藉由 BET 法，使用比表面積細孔分布測定裝置 (例如，貝克曼庫爾特公司製造，SA3100) 來測量無機填充材料的比表面積。接下來，使用核磁共振裝置 (日本電子股份有限公司製造，JNM-EC700)，藉由 ^{29}Si CP/MAS 固態 NMR 來實行於無機填充材料的表面存在的源自矽烷偶合劑的矽原子的定量。由所獲得之值，算出無機填充材料的每單位比表面積中源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量。無機填充材料是藉由以下方法取出：

將環氧樹脂成形材料置入陶瓷製的坩堝中，然後以隔焰爐在 600°C 進行加熱使樹脂成分燃燒而得。

【0089】（成形物的製作）

藉由轉移成形機，將成形壓力設為 20MPa ，以 180°C 300秒或 140°C 900秒的條件，將實施例1～11和比較例1～11的環氧樹脂成形材料進行成形來製作成形物。表中的「成形溫度($^{\circ}\text{C}$)」欄位的數值，表示成形溫度。

【0090】（流動距離的測定）

將成形時的環氧樹脂成形材料的流動性作為表示的指標，來測定旋流(spiral flow)。測定方法，是使用依據EMMI-1-66的旋流測定用模具，將環氧樹脂成形材料由上述條件進行成形，然後求得流動距離(cm)。又，表1～表5中所謂的「可否成形」，當環氧樹脂成形材料可流動而填充至模具中時設為「可」，當殘留未填充部分時設為「否」。

【0091】（硬化物的製作）

對製作而成的成形物實行在 180°C 中5小時的熱處理(後硬化)，製作成硬化物。表中的欄位各別表示如以下：表中的「有無後硬化」的欄位為「有」者，評價對象是硬化物，「無」則表示評價對象為成形物(未實行後硬化)，「—」則表示「可否成形」為「否」並且未實行以下的評價。

【0092】（玻璃轉移溫度(T_g)的測定)

切割成形物或硬化物來製作成 5 m m × 5 0 m m × 3 m m 的長方體，在動態黏彈性測定裝置(使用 T A 儀器公司製造的 R S A - G 2) 中使用三點彎曲振動試驗夾具，以頻率 1 赫茲 (H z) 、升溫速度 5 ° C / 分鐘的條件，測定在 4 0 ~ 3 0 0 ° C 的溫度範圍中的動態黏彈性。玻璃轉移溫度 (T g) ，設為 t a n δ 中的波峰峰頂 (p e a k t o p) 部分的溫度，該 t a n δ 是藉由利用上述方法所得之儲存彈性模數與損耗彈性模數的比值所求得。

【 0 0 9 3 】 （密度的測定）

切割成形物或硬化物來製作 1 0 m m 見方的立方體，藉由阿基米德法來測定密度 (g / c m ³)

【 0 0 9 4 】 （導熱率的測定）

切割成形物或硬化物來製作 1 0 m m 見方的立方體，以石墨噴霧 (g r a p h i t e s p r a y) 進行黑化處理。之後使用 氬 閃 光 法 (N E T Z S C H 公 司 製 造 的 L F A 4 4 7 n a n o f l a s h) 來評價熱擴散率。從此值、與由阿基米德法所測得的密度、與藉由 D S C (使用珀金埃爾默公司製造的 P y r i s 1) 所測得的比熱的乘積來求得成形物或硬化物的導熱率 (W / (m · K)) 。

【 0 0 9 5 】 [表 1]

項目 (原材料的單位為質量份)		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	實施例5
環氧樹脂	環氧樹脂1	4.59	4.59	4.70	4.70	4.13
硬化劑	硬化劑1	0.57	0.57	2.73	2.73	2.40
	硬化劑2	2.27	2.27			
硬化促進劑	TPP	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
矽烷偶合劑	KBM-202SS	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03

脫模劑	二十八酸酯	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
氧化鎂	PYROKISUMA 3350	64.06	64.06	64.06	64.06	64.69
	PYROKISUMA 3320	18.30	18.30	18.30	18.30	18.48
	STARMAG SL	9.15	9.15	9.15	9.15	9.24
填充材料含有率(體積%)		78	78	78	78	80
源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量($\times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2)		6.2	6.2	6.2	6.2	6.2
成形溫度($^{\circ}\text{C}$)		180	180	180	180	180
流動距離(cm)		78	78	85	85	70
可否成形		可	可	可	可	可
有無後硬化(180 $^{\circ}\text{C}$ /5小時)		無	有	無	有	有
成形物或成形硬化物的特性	Tg($^{\circ}\text{C}$)	180	184	267	268	265
	密度(g/cm^3)	3.00	3.00	3.00	3.00	3.05
	導熱率(W/($\text{m}\cdot\text{K}$))	9.6	9.6	10.3	10.3	12.2

【 0 0 9 6 】 [表 2]

項目 (原材料的單位為質量份)		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
環氧樹脂	環氧樹脂1	4.56	4.56	4.01	4.01	4.01
硬化劑	硬化劑1					
	硬化劑2	2.87	2.87	2.52	2.52	2.52
硬化促進劑	TPP	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
矽烷偶合劑	KBM-202SS	0.03	0.03	0.03		
	KBM-573				0.03	
	KBM-403					0.03
脫模劑	二十八酸酯	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
氧化鎂	PYROKISUMA 3350	64.06	64.06	64.69	64.69	64.69
	PYROKISUMA 3320	18.30	18.30	18.48	18.48	18.48
	STARMAG SL	9.15	9.15	9.24	9.24	9.24
填充材料含有率(體積%)		78	78	80	80	80
源自矽烷偶合劑的矽原子的附著量($\times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2)		6.2	6.2	6.2	5.9	6.4
成形溫度($^{\circ}\text{C}$)		180	180	180	180	180
流動距離(cm)		63	63	40	34	29
可否成形		可	可	否	否	否
有無後硬化(180 $^{\circ}\text{C}$ /5小時)		無	有	-	-	-
成形物或成形硬化物的特性	Tg($^{\circ}\text{C}$)	140	160	-	-	-
	密度(g/cm^3)	3.00	3.00	-	-	-
	導熱率(W/($\text{m}\cdot\text{K}$))	8.5	8.8	-	-	-

【 0 0 9 7 】 [表 3]

項目 (原材料的單位為質量份)		實施例6	實施例7	比較例6	比較例7
環氧樹脂	環氧樹脂1	3.75	3.25	3.64	3.15
硬化劑	硬化劑1	2.18	1.89		
	硬化劑2			2.29	1.98
硬化促進劑	TPP	0.02	0.02	0.02	0.02
矽烷偶合劑	KBM-202SS	0.04	0.04	0.04	0.04
脫模劑	二十八酸酯	1.00	1.00	1.00	1.00
氧化鋁	AL35-63	59.19	59.69	59.19	59.69
	AL35-45	16.91	17.06	16.91	17.06
	AX3-32	16.91	17.06	16.91	17.06
填充材料含有率(體積%)		80	82	80	82
源自矽烷偶合劑的矽原子的 附著量($\times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2)		6.2	6.2	6.2	6.2
成形溫度($^{\circ}\text{C}$)		180	180	180	180
流動距離(cm)		90	80	66	48
可否成形		可	可	可	否
有無後硬化(180 $^{\circ}\text{C}$ /5小時)		有	有	有	-
成形物或成 形硬化物的 特性	Tg($^{\circ}\text{C}$)	261	263	160	-
	密度(g/cm^3)	3.32	3.37	3.31	-
	導熱率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)	9.5	11.8	8.2	-

【 0 0 9 8 】 [表 4]

項目 (原材料的單位為質量份)		實施例8	實施例9	比較例8	比較例9
環氧樹脂	環氧樹脂2 預聚物	4.34	4.34	4.25	4.84
硬化劑	硬化劑1	1.58	1.58		
	硬化劑2			1.67	1.90
硬化促進劑	TPP	0.02	0.02	0.02	0.02
矽烷偶合劑	KBM-202SS	0.04		0.04	0.04
	KBM-573		0.04		
脫模劑	二十八酸酯	1.00	1.00	1.00	1.00
氧化鋁	AL35-63	59.19	59.19	59.19	58.67
	AL35-45	16.91	16.91	16.91	16.76
	AX3-32	16.91	16.91	16.91	16.76
填充材料含有率(體積%)		80	80	80	78
源自矽烷偶合劑的矽原子的 附著量($\times 10^{-6}$ 莫耳/ m^2)		6.2	5.9	6.2	6.2
成形溫度($^{\circ}\text{C}$)		140	140	140	140
流動距離(cm)		74	70	44	64
可否成形		可	可	否	可
有無後硬化(180 $^{\circ}\text{C}$ /5小時)		有	有	-	有
成形物或成 形硬化物的	Tg($^{\circ}\text{C}$)	286	286	-	178
	密度(g/cm^3)	3.32	3.32	-	3.26

特性	導熱率 (W/(m·K))	12.5	12.5	-	9.1
----	------------------	------	------	---	-----

【 0 0 9 9 】 [表 5]

項目 (原材料的單位為質量份)		實施例10	比較例10	實施例11	比較例11
環氧樹脂	環氧樹脂1	1.92	1.86		
	環氧樹脂3	1.92	1.86	3.92	3.81
硬化劑	硬化劑1	2.09		2.01	
	硬化劑2		2.20		2.11
硬化促進劑	TPP	0.02	0.02	0.02	0.02
矽烷偶合劑	KBM-202SS	0.04	0.04		
	KBM-573			0.04	0.04
脫模劑	二十八酸酯	1.00	1.00	1.00	1.00
氧化鋁	AL35-63	59.19	59.19	59.19	59.19
	AL35-45	16.91	16.91	16.91	16.91
	AX3-32	16.91	16.91	16.91	16.91
填充材料含有率(體積%)		80	80	80	80
源自矽烷偶合劑的矽原子的 附著量(×10 ⁻⁶ 莫耳/m ²)		5.9	5.9	6.4	6.4
成形溫度(℃)		180	180	180	180
流動距離(cm)		90	84	94	87
可否成形		可	可	可	可
有無後硬化(180℃/5小時)		有	有	有	有
成形物或成 形硬化物的 特性	Tg(℃)	276	154	265	147
	密度(g/cm ³)	3.32	3.32	3.32	3.32
	導熱率	9.1	8.0	7.2	7.2
	(W/(m·K))				

【 0 1 0 0 】 〈 評價結果的考察 〉

(1)相較於硬化劑中不包含特定硬化劑之比較例 1 ~ 11，硬化劑中包含特定硬化劑之實施例 1 ~ 11，旋流的流動距離顯示了較高值。其中，比較例 3 ~ 5、7 及 8 不但無法成形為成形物，並且流動距離未滿 50 c m。與該等無法成形的比較例有相同無機填充材料的填充率的實施例 5 及 7 ~ 9 則能夠成形。由此可知，本實施形態不僅不會損害環氧樹脂成形材料的流動性，亦能夠使無機填充材料的量增加。

【0101】 (2) 硬化劑中包含特定硬化劑之實施例3～11，其成形物或硬化物的玻璃轉移溫度(T_g)超過260℃，相對於此，硬化劑中不包含特定硬化劑之比較例1、2、6及9～11，其成形物或硬化物的玻璃轉移溫度(T_g)則未滿180℃。由此可知，本實施形態可獲得玻璃轉移溫度(T_g)高並且耐熱性優異的成形物或硬化物。

【0102】 (3) 當除了有無熱硬化以外條件皆相同時，比較玻璃轉移溫度(T_g)的差值時，實施例1(無後硬化)與實施例2(有後硬化)、和實施例3(無後硬化)與實施例4(有後硬化)未滿5℃，相對於此，比較例1(無後硬化)與比較例2(有後硬化)則為20℃。由此可知，本實施形態即便為不實行熱處理的狀態，亦可獲得接近經實行熱處理的狀態的耐熱性。

【0103】 (4) 實施例10，硬化物的導熱率為9.1 W/(m·K)，相較於實施例11的7.2 W/(m·K)更高；實施例10中，環氧樹脂中包含具有液晶基骨架之環氧樹脂(環氧樹脂1)，實施例11中，環氧樹脂中不包含具有液晶基骨架之環氧樹脂。由此可知，本實施形態利用併用特定硬化劑與具有液晶基骨架之環氧樹脂，可更提升成形後的導熱率。

【0104】 (5) 比較例10中，硬化物的導熱率為8.0 W/(m·K)，比較例11中硬化物的導熱率則為7.2 W/(m·K)，其差值為0.8 W/(m·K)；比較例10中，硬化劑中不含特定硬化劑、並且的環氧樹脂中包含具有液晶基骨

架之環氧樹脂；比較例 11 中，硬化劑中不含特定硬化劑、並且的環氧樹脂中不包含具有液晶基骨架之環氧樹脂。將這點與實施例 10 和實施例 11 的導熱率的差值 ($1.9 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$) 比較，可知：由於使用具有液晶基骨架之環氧樹脂作為環氧樹脂而得的提升成形後的導熱率的效果，利用併用特定硬化劑會有加乘的效果。

【0105】 藉由參照日本專利申請案第 2015-138447 號揭示內容，將其整體併入本說明書中。本說明書中所述之全部的文獻、全部的專利申請案、全部的技術規格，是藉由參照各別的文獻、各別的專利申請案、及各別的技術規格所併入的內容，並且藉由參照，以具體且分別記載的情況相同程度地來併入本說明書中。

【符號說明】

【0106】 無

【生物材料寄存】

【0107】 國內寄存資訊 (請依寄存機構、日期、號碼順序註記)

無

【0108】 國外寄存資訊 (請依寄存國家、機構、日期、號碼順序註記)

無

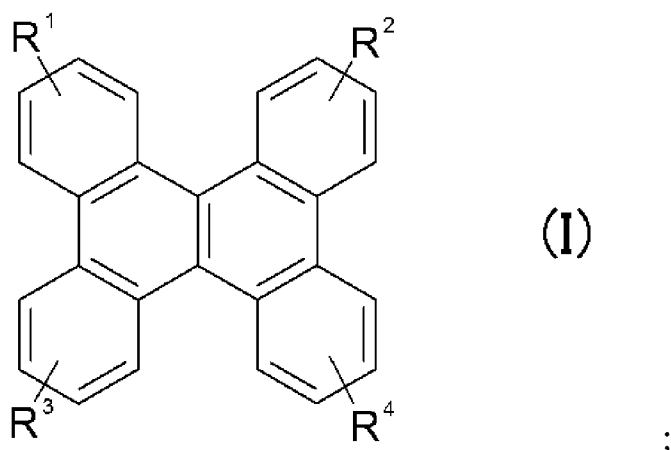
【序列表】(請換頁單獨記載)

無

【發明申請專利範圍】

【第1項】一種環氧樹脂成形材料，其含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料，其中，前述硬化劑包含二苯并[g,p]蒽，該二苯并[g,p]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基，且在固體成分中，前述無機填充材料的含有率為78體積%～90體積%。

【第2項】如請求項1所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述二苯并[g,p]蒽是由下述通式(I)所表示之化合物：



通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 各自獨立地為氫原子或一價的基，並且 $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個各自獨立地為羥基或胺基。

【第3項】如請求項2所述之環氧樹脂成形材料，其中，通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 之中的至少兩個為羥基。

【第4項】如請求項2或3所述之環氧樹脂成形材料，其中，通式(I)中， $R^1 \sim R^4$ 全部為羥基。

【第5項】如請求項2所述之環氧樹脂成形材料，其

中，由通式(I)所表示之化合物，在前述硬化劑的整體中的比例為 20 質量% 以上。

【第6項】 如請求項 1 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述環氧樹脂包含具有液晶基骨架之環氧樹脂。

【第7項】 如請求項 6 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有液晶基骨架之環氧樹脂，在前述環氧樹脂的整體中的比例為 50 質量% 以上。

【第8項】 如請求項 6 或 7 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有液晶基骨架之環氧樹脂，在前述環氧樹脂的整體中的比例為 90 質量% 以上。

【第9項】 如請求項 1 所述之環氧樹脂成形材料，其中，進一步包含矽烷偶合劑。

【第10項】 如請求項 9 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述矽烷偶合劑包含具有苯基之矽烷偶合劑。

【第11項】 如請求項 10 所述之環氧樹脂成形材料，其中，前述具有苯基之矽烷偶合劑，具有苯基直接鍵結在矽原子上而成的結構。

【第12項】 如請求項 9 所述之環氧樹脂成形材料，其中，在前述無機填充材料的每單位比表面積中，源自前述矽烷偶合劑的矽原子的附著量為 5.0×10^{-6} 莫耳 / m^2 $\sim 10.0 \times 10^{-6}$ 莫耳 / m^2 。

【第13項】 如請求項 1 所述之環氧樹脂成形材料，其

中，前述無機填充材料，包含選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種。

【第14項】 如請求項1所述之環氧樹脂成形材料，其中，該環氧樹脂成形材料處於A-階段狀態。

【第15項】 如請求項14所述之環氧樹脂成形材料，其中，在180℃加熱1小時後的質量減少率為0.1質量%以下。

【第16項】 一種環氧樹脂成形材料的成形物，其是藉由將請求項1～15中任一項所述之環氧樹脂成形材料進行成形而製成。

【第17項】 一種環氧樹脂成形材料的成形物的硬化物，其是藉由將請求項16所述之成形物進行加熱處理而製成。

【第18項】 一種環氧樹脂成形材料，其含有環氧樹脂、硬化劑及無機填充材料，其中，前述硬化劑包含二苯并[g,p]蒽，該二苯并[g,p]蒽具有至少兩個取代基，且該取代基各自獨立地為羥基或胺基，且前述無機填充材料，包含選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種，前述無機填充材料中，選自由氧化鎂和氧化鋁所組成之群組中的至少一種所占的比例是50質量%以上。