



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0122641
(43) 공개일자 2023년08월22일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/18 (2006.01) C01B 33/18 (2006.01)
C01B 33/26 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
C08K 3/20 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C04B 35/18 (2013.01)
C01B 33/18 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2023-7024661
- (22) 출원일자(국제) 2021년11월24일
심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2023년07월19일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2021/042902
- (87) 국제공개번호 WO 2022/137949
국제공개일자 2022년06월30일
- (30) 우선권주장
JP-P-2020-214431 2020년12월24일 일본(JP)
JP-P-2021-051068 2021년03월25일 일본(JP)

- (71) 출원인
덴카 주식회사
일본국, 도쿄, 추오-구, 니혼바시-무로마치 2
초메, 1-1
- (72) 발명자
츠네요시, 도시히코
일본 1038338 도쿄도 추오구 니혼바시무로마치 2
초메 1방1고 덴카 주식회사 내
후카자와, 모토하루
일본 1038338 도쿄도 추오구 니혼바시무로마치 2
초메 1방1고 덴카 주식회사 내
- (74) 대리인
양영준, 신수범, 이석재

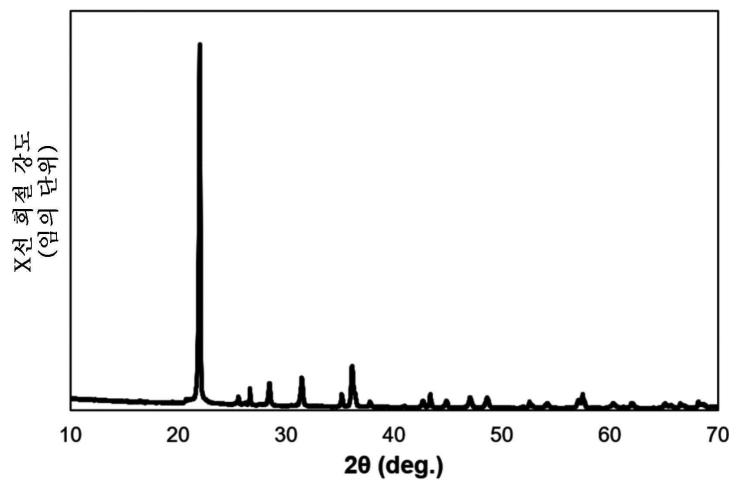
전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 발명의 명칭 산화물 복합 입자 및 그 제조 방법, 그리고 수지 조성물

(57) 요약

수지와 혼합해서 얻어지는 수지 조성물이, 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정점을 나타내는 산화물 복합 입자를 제공한다. 실리카 및 알루미나를 포함하는 산화물 복합 입자이며, 상기 산화물 복합 입자가, α-크리스토팔라이트의 결정상을 40 내지 85질량%, α-알루미나의 결정상을 5 내지 50질량% 및 멀라이트의 결정상을 10질량% 이하 포함하고, X선 광전자 분광법에 의해 검출되는, 알루미늄의 규소에 대한 원소 비율(알루미늄/규소)이 1.5 이상인, 산화물 복합 입자.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C01B 33/26 (2013.01)

C08K 3/013 (2018.01)

C08K 3/20 (2013.01)

C01P 2002/85 (2013.01)

C01P 2004/61 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

실리카 및 알루미나를 포함하는 산화물 복합 입자이며,

상기 산화물 복합 입자가, α -크리스토팔라이트의 결정상을 40 내지 85질량%, α -알루미나의 결정상을 5 내지 50질량% 및 멀라이트의 결정상을 10질량% 이하 포함하고,

X선 광전자 분광법에 의해 검출되는, 알루미늄의 규소에 대한 원소 비율(알루미늄/규소)이 1.5 이상인, 산화물 복합 입자.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 산화물 복합 입자 중 상기 알루미나의 함유율이 15 내지 50질량%인, 산화물 복합 입자.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 산화물 복합 입자의 평균 입자경이 0.5 내지 70 μ m인, 산화물 복합 입자.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 산화물 복합 입자의 평균 원형도가 0.7 이상인, 산화물 복합 입자.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 기재된 산화물 복합 입자의 제조 방법이며,

평균 입자경이 0.5 내지 70 μ m인 실리카 입자와, 안식각의 평균값이 50° 이상 또한 비표면적이 50 내지 170m²/g 인 알루미나 입자를 혼합해서 혼합물을 얻는 공정과,

상기 혼합물을 1300 내지 1500°C에서 2 내지 8시간 가열하는 공정을

포함하는, 산화물 복합 입자의 제조 방법.

청구항 6

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 기재된 산화물 복합 입자와, 수지를 포함하는, 수지 조성물.

청구항 7

제6항에 있어서, 상기 수지 조성물 중의 상기 산화물 복합 입자의 함유율이 20 내지 80질량%인, 수지 조성물.

청구항 8

제6항 또는 제7항에 있어서, 고주파 기관용 수지 조성물인, 수지 조성물.

발명의 설명

기술분야

[0001] 본 발명은 산화물 복합 입자 및 그 제조 방법, 그리고 수지 조성물에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 근년, 통신 분야에 있어서의 정보 통신량의 증가에 수반하여, 전자 기기나 통신 기기 등에 있어서 고주파수대의

활용이 넓어지고 있고, 고주파대용 디바이스에 사용되는 재료에 관해서, 유전율 및 유전 정접이 낮을 것이 요구되고 있다. 또한, 관련된 전자 재료 및 부재의 소형화, 고집적화도 진행되어, 가일층의 방열성이 요구되어 가고 있다.

[0003] 고주파대의 세라믹스 재료로서, 실리카(SiO₂)는 유전율이 작고(3.7), 품질 계수 지표 Qf(유전 정접의 역수와 측정 주파수를 곱한 값)가 약 12만이고, 저유전율 또한 저유전 정접을 갖는 필러의 재료로서 유망하다. 또한, 수지 중에서의 배합을 용이하게 하기 위해, 필러 형상은 구형에 가까울수록 바람직하다. 구상 실리카는 용이하게 합성 가능하고(예를 들어 특허문헌 1), 이미 많은 용도로 사용되고 있다. 그 때문에, 고주파대의 유전체 디바이스 등에 있어서도 널리 사용될 것이 기대된다.

[0004] 그러나, 상기 구상 실리카는 일반적으로 비정질이며, 열전도율이 1W/m·K 정도로 낮아, 구상 실리카를 충전한 수지 조성물은 방열성이 불충분한 경우가 있다.

[0005] 열전도율을 향상시키기 위해, 구상 실리카를 비정질로부터 석영이나 크리스토팔라이트 등으로 결정화시키는 것을 생각할 수 있다. 예를 들어 특허문헌 2이나 3에서는, 비정질 구상 실리카를 열처리함으로써, 석영이나 크리스토팔라이트로 결정화시키는 것이 제안되고 있다. 한편, 특허문헌 4에는, 에어로실을 사용해서 형성되는 산화 알루미늄계 세라믹으로 이루어지는 피막을 갖는 실리카 분말이 개시되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0006] (특허문헌 0001) 일본특허공개 소58-138740호 공보
- (특허문헌 0002) 일본특허 제6207753호 공보
- (특허문헌 0003) 국제공개 제2018/186308호
- (특허문헌 0004) 일본특허공개 평10-251042호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명은 수지와 혼합해서 얻어지는 수지 조성물이, 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정접을 나타내는 산화물 복합 입자 및 그 제조 방법, 그리고 해당 수지 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0008] 본 발명은, 이하의 실시 형태를 포함한다.

[0009] [1] 실리카 및 알루미늄을 포함하는 산화물 복합 입자이며,

[0010] 상기 산화물 복합 입자가, α-크리스토팔라이트의 결정상을 40 내지 85질량%, α-알루미늄의 결정상을 5 내지 50질량% 및 멀라이트의 결정상을 10질량% 이하 포함하고,

[0011] X선 광전자 분광법에 의해 검출되는, 알루미늄의 규소에 대한 원소 비율(알루미늄/규소)이 1.5 이상인, 산화물 복합 입자.

[0012] [2] 상기 산화물 복합 입자 중 상기 알루미늄의 함유율이 15 내지 50질량%인, [1]에 기재된 산화물 복합 입자.

[0013] [3] 상기 산화물 복합 입자의 평균 입자경이 0.5 내지 70 μ m인, [1] 또는 [2]에 기재된 산화물 복합 입자.

[0014] [4] 상기 산화물 복합 입자의 평균 원형도가 0.7 이상인, [1] 내지 [3]의 어느 것에 기재된 산화물 복합 입자.

[0015] [5] [1] 내지 [4]의 어느 것에 기재된 산화물 복합 입자의 제조 방법이며,

[0016] 평균 입자경이 0.5 내지 70 μ m인 실리카 입자와, 안식각의 평균값이 50° 이상 또한 비표면적이 50 내지 170m²/g인 알루미늄 입자를 혼합해서 혼합물을 얻는 공정과,

- [0017] 상기 혼합물을 1300 내지 1500℃에서 2 내지 8시간 가열하는 공정을
- [0018] 포함하는, 산화물 복합 입자의 제조 방법.
- [0019] [6] [1] 내지 [4]의 어느 것에 기재된 산화물 복합 입자와, 수지를 포함하는 수지 조성물.
- [0020] [7] 상기 수지 조성물 중의 상기 산화물 복합 입자의 함유율이 20 내지 80질량%인, [6]에 기재된 수지 조성물.
- [0021] [8] 고주파 기관용 수지 조성물인, [6] 또는 [7]에 기재된 수지 조성물.

발명의 효과

- [0022] 본 발명에 따르면, 수지와 혼합해서 얻어지는 수지 조성물이, 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정접을 나타내는 산화물 복합 입자 및 그 제조 방법, 그리고 해당 수지 조성물을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0023] 도 1은 실시예 1의 산화물 복합 입자의 X선 회절 패턴을 도시하는 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0024] 이하, 본 발명의 실시 형태에 대해서 설명한다. 단, 본 발명은 이하의 실시 형태에 한정되는 것은 아니다.
- [0025] [산화물 복합 입자]
- [0026] 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는 실리카 및 알루미늄을 포함한다. 여기서, 상기 산화물 복합 입자는 α-크리스토팔라이트의 결정상을 40 내지 85질량%, α-알루미나의 결정상을 5 내지 50질량% 및 멀라이트의 결정상을 10질량% 이하 포함한다. 또한, X선 광전자 분광법(이하, XPS라고도 한다.)에 의해 검출되는 알루미늄의 규소에 대한 원소 비율(알루미늄/규소)은 1.5 이상이다.
- [0027] 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는, α-크리스토팔라이트의 결정상, α-알루미나의 결정상 및 멀라이트의 결정상을 상기 함유량의 범위 내에서 포함함으로써, 수지 조성물에 있어서 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정접을 달성할 수 있다. 특히, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는, XPS에 의해 검출되는 알루미늄/규소의 원소 비율이 1.5 이상이기 때문에, 산화물 복합 입자의 표면에 알루미늄이 많이 존재하고, 산화물 복합 입자의 표면의 적어도 일부가 알루미늄층에 의해 피복되어 있는 구조를 갖는다. 산화물 복합 입자의 표면에 위치하는 상기 알루미늄층에 의해 높은 열전도성이 발휘되고, 또한 산화물 복합 입자 중에 포함되는 α-크리스토팔라이트의 결정상은 낮은 유전율 및 유전 정접을 나타내기 때문에, 전체로서 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정접을 달성할 수 있다.
- [0028] 상기 산화물 복합 입자는, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), α-크리스토팔라이트의 결정상을 40 내지 85질량% 포함한다. α-크리스토팔라이트의 결정상 함유량이 40질량% 미만인 경우, 유전율 및 유전 정접이 커져 고주파 디바이스의 이용이 어려워진다. 또한, 상기 함유량이 85질량%를 초과하는 경우, 수지 조성물로 했을 때의 열전도율을 담보할 수 없게 된다. 상기 함유량은, 예를 들어 50 내지 85질량%일 수 있고, 60 내지 85질량%일 수 있고, 70 내지 85질량%일 수 있고, 75 내지 85질량%일 수 있다. 해당 결정상의 동정 및 정량은, 분말 X선 회절/리트벨트법에 의해 행한다. 결정의 귀속은, 예를 들어 X선 데이터베이스 등에서 행할 수 있다. 구체적으로는, 후술하는 방법에 의해 분석할 수 있다.
- [0029] 상기 산화물 복합 입자는, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), α-알루미나의 결정상을 5 내지 50질량% 포함한다. α-알루미나의 결정상 함유량이 5질량% 미만인 경우, 수지 조성물로 했을 때의 열전도율을 담보할 수 없게 된다. 또한, 상기 함유량이 50질량%를 초과하는 경우, 유전율 및 유전 정접이 커져 고주파 디바이스의 이용이 어려워진다. 상기 함유량은, 예를 들어 10 내지 50질량%일 수 있고, 10 내지 40질량%일 수 있고, 10 내지 30질량%일 수 있고, 10 내지 25질량%일 수 있고, 10 내지 20질량%일 수 있다. 당해 결정상의 동정 및 정량, 결정의 귀속은, 전술한 α-크리스토팔라이트의 결정상과 마찬가지로 방법에 의해 행할 수 있다. 구체적으로는, 후술하는 방법에 의해 분석할 수 있다.
- [0030] 상기 산화물 복합 입자는, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), 멀라이트의 결정상을 10질량% 이하 포함한다. 멀라이트의 결정상 함유량이 10질량%를 초과하는 경우, 얼마 안되지만, 유전율, 유전 정접과 같은 유전 특성 및 열전도 성능을 저하시킨다. 멀라이

트의 결정상 함유량은 5질량% 이하일 수 있고, 1질량% 이하일 수도 있다. 멀라이트의 결정상 함유량 범위의 하한은 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 0.01질량% 이상일 수 있다. 또한, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는, 멀라이트의 결정상을 포함하지 않아도 된다. 당해 결정상의 동정 및 정량, 결정의 귀속은, 전술한 α -크리스토팔라이트의 결정상과 마찬가지로 방법에 의해 행할 수 있다. 구체적으로는, 후술하는 방법에 의해 분석할 수 있다.

[0031] 상기 산화물 복합 입자는, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), 비정질 실리카를 50질량% 이하 포함할 수 있고, 0.01 내지 15질량% 포함하는 것이 바람직하고, 0.01 내지 5질량% 포함하는 것이 보다 바람직하다. 비정질 실리카의 함유량이 50질량% 이하인 것에 의해, 유전 정점의 값을 낮게 억제된다. 또한, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는, 비정질 실리카를 포함하지 않아도 된다. 비정질 실리카의 동정 및 정량은, 전술한 α -크리스토팔라이트의 결정상과 마찬가지로 방법에 의해 행할 수 있다. 구체적으로는, 후술하는 방법에 의해 분석할 수 있다.

[0032] 상기 산화물 복합 입자는, 상기 α -크리스토팔라이트의 결정상, 상기 α -알루미나의 결정상, 상기 멀라이트의 결정상 및 상기 비정질 실리카 이외에, 다른 결정상이나 다른 비정질상을 더 포함해도 된다. 다른 결정상으로서, 예를 들어 γ -알루미나, θ -알루미나, 석영 등을 들 수 있다. 다른 비정질상으로서, 예를 들어 알루미나 등을 들 수 있다. 다른 결정상의 함유율은, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), 예를 들어 0 내지 8질량%일 수 있고, 0 내지 4질량%일 수 있다. 또한, 기타 비정질상의 함유율은, 상기 산화물 복합 입자 전체의 질량을 기준으로 해서(즉, 산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다), 예를 들어 0 내지 8질량%일 수 있고, 0 내지 4질량%일 수 있다. 또한, 상기 산화물 복합 입자는, 상기 다른 결정상이나 다른 비정질상을 포함하지 않아도 된다.

[0033] 상기 산화물 복합 입자 중 알루미나의 함유율(산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다)은, 15 내지 50 질량%인 것이 바람직하다. 상기 함유율이 15질량% 이상인 것에 의해, 수지 조성물로서 일정한 이상의 방열 성능을 확보할 수 있다. 또한, 상기 함유율이 50질량% 이하인 것에 의해, 고주파 디바이스에 있어서도 이용 가능한 낮은 유전율, 유전 정점을 확보할 수 있다. 상기 함유율은, 예를 들어 15 내지 40질량%일 수 있고, 15 내지 30 질량%일 수 있다. 또한, 여기에서의 「알루미나」란, α -알루미나 이외의 성분도 포함하는 모든 알루미나 성분을 가리킨다. 또한, 알루미나의 함유율은, 합성 시의 투입량으로부터 산출되는 값이다.

[0034] 상기 산화물 복합 입자 중 실리카의 함유율(산화물 복합 입자 전체의 질량을 100질량%로 한다)은 50 내지 90질량%인 것이 바람직하다. 상기 함유율이 50질량% 이상인 것에 의해, 고주파 디바이스에 있어서도 이용 가능한 낮은 유전율, 유전 정점을 확보할 수 있다. 또한, 실리카의 함유율은, 합성 시의 투입량으로부터 산출되는 값이다.

[0035] 상기 산화물 복합 입자는 실리카 및 알루미나 이외에 또 다른 성분을 포함할 수 있지만, 실리카 및 알루미나를 포함해도 된다.

[0036] 상기 산화물 복합 입자는 XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy)에 의해 검출되는 알루미늄/규소의 원소 비율이 1.5 이상이다. XPS는 측정 시료의 표면 수nm 이하에 존재하는 원소의 정보를 얻을 수 있기 때문에, 상기 원소 비율이 1.5 이상인 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자에서는, 산화물 복합 입자의 표면에 알루미나가 많이 존재하고, 산화물 복합 입자의 표면의 적어도 일부가 알루미나층에 의해 피복되어 있는 구조를 갖는다. 상기 원소 비율은 2.0 이상이 바람직하고, 2.3 이상이 보다 바람직하다. 산화물 복합 입자의 표면은 가능한 한 알루미나층에 의해 피복되어 있는 것이 바람직하기 때문에, 상기 원소 비율은 높은 편이 바람직하다. 또한, XPS에 의해 검출되는 알루미늄/규소의 원소 비율은, 후술하는 방법에 의해 측정할 수 있다.

[0037] 상기 산화물 복합 입자의 평균 입자경은 0.5 내지 70 μ m인 것이 바람직하다. 해당 평균 입자경이 0.5 μ m 이상인 것에 의해, 수지 조성물로서 일정한 방열 특성을 확보할 수 있다. 또한, 해당 평균 입자경이 70 μ m 이하인 것에 의해, 고주파 디바이스에 적합한 방열 필러로서 재료간에 충전 가능하게 된다. 해당 평균 입자경은, 예를 들어 5 내지 70 μ m일 수 있고, 10 내지 65 μ m일 수 있고, 20 내지 60 μ m일 수 있다. 또한, 해당 평균 입자경은, 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치를 사용하여 측정된다. 구체적으로는, 후술하는 방법에 의해 측정할 수 있다.

[0038] 상기 산화물 복합 입자의 평균 원형도는 0.7 이상인 것이 바람직하다. 해당 평균 원형도가 0.7 이상인 것에 의해, 수지 조성물이 낮은 점도를 달성할 수 있다. 해당 평균 원형도는 0.8 이상인 것이 보다 바람직하고, 0.85 이상인 것이 더욱 바람직하고, 0.9 이상인 것이 특히 바람직하다. 해당 평균 원형도의 범위의 상한은 특별히 한정되지는 않고, 평균 원형도는 보다 높은 값 쪽이 바람직하고, 1이어도 된다. 후술하는 바와 같이, 산화물

복합 입자의 제조에 있어서 구상의 원료 실리카 입자를 사용함으로써 산화물 복합 입자의 평균 원형도를 높게 할 수 있다. 평균 원형도는 이하의 방법에 의해 측정된다. 전자 현미경을 사용해서 촬영한 산화물 복합 입자의 투영 면적(S)과 투영 주위 길이(L)를 구하고, 이하의 식 (1)에 적용됨으로써 원형도를 산출한다. 그리고, 일정한 투영 면적(100개 이상의 산화물 복합 입자를 포함하는 면적)에 포함되는 산화물 복합 입자 모든 원형도의 평균값을 산출하고, 당해 평균값을 평균 원형도로 한다. 평균 원형도는 구체적으로는 후술하는 방법에 의해 측정할 수 있다.

[0039] 원형도 = $4\pi S/L^2$ (1)

[0040] 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자는, 수지와 혼합했을 때에 수지 조성물이 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전을 및 유전 정점을 나타낼 수 있기 때문에, 이들 물성이 요구되는 수지 조성물(예를 들어 고주파 기관용 수지 조성물 등)에 충전되는 필러로서 유용하다.

[0041] [산화물 복합 입자의 제조 방법]

[0042] 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자의 제조 방법은, 이하의 공정을 포함한다. 평균 입자경이 0.5 내지 70 μm 인 실리카 입자와, 안식각의 평균값이 50° 이상 또한 비표면적이 50 내지 170 m^2/g 인 알루미늄 입자를 혼합해서 혼합물을 얻는 공정(이하, 혼합물 제조 공정이라고도 한다.); 상기 혼합물을 1300 내지 1500°C에서 2 내지 8시간 가열하는 공정(이하, 가열 공정이라고도 한다.). 본 실시 형태에 따른 방법에 의하면, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자를 용이하고 또한 효율적으로 제조할 수 있다.

[0043] (혼합물 제조 공정)

[0044] 본 공정에서는, 평균 입자경이 0.5 내지 70 μm 인 실리카 입자와, 안식각의 평균값이 50° 이상 또한 비표면적이 50 내지 170 m^2/g 인 알루미늄 입자를 혼합해서 혼합물을 얻는다.

[0045] 원료로서 사용되는 실리카 입자는 비정질, 석영, 크리스토팔라이트 등의 결정계는 특별히 한정되지는 않고, 실리카 입자의 제법도 특별히 한정되지는 않지만, 비정질상을 90질량% 이상 포함하는 SiO₂를 사용하는 것이 바람직하고, 비정질상을 포함하는 SiO₂를 사용하는 것이 보다 바람직하다. 비정질상을 90질량% 이상 포함하는 SiO₂로서는, 화염 용융법, 폭연법, 기상법, 습식법 등으로 제조된 SiO₂를 들 수 있다.

[0046] 가열 후에 얻어지는 산화물 복합 입자의 입자경은, 주로 원료인 실리카 입자의 입자경을 반영한다. 그 때문에, 실리카 입자의 평균 입자경은 예를 들어 0.5 내지 70 μm 일 수 있고, 3 내지 65 μm 일 수 있고, 20 내지 60 μm 일 수 있고, 35 내지 55 μm 일 수 있다. 또한, 해당 평균 입자경은 산화물 복합 입자의 평균 입자경과 마찬가지로 측정된다. 또한, 가열 후에 얻어지는 산화물 복합 입자의 형상은, 주로 원료인 실리카 입자의 형상을 반영하기 위해서, 구상의 실리카 입자를 사용하는 것이, 산화물 복합 입자의 평균 원형도를 높게 할 수 있기 때문에 바람직하다. 실리카 입자의 평균 원형도는, 0.60 이상인 것이 바람직하고, 0.70 이상인 것이 바람직하고, 0.80 이상인 것이 더욱 바람직하다. 또한, 해당 평균 원형도는 산화물 복합 입자의 평균 원형도와 마찬가지로 측정된다.

[0047] 원료로서 사용되는 알루미늄 입자의 알루미늄은 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$, $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0048] 알루미늄 입자의 안식각의 평균값은 50° 이상인 것이 바람직하고, 52° 이상인 것이 보다 바람직하다. 상기 안식각의 평균값이 50° 이상인 것에 의해, 알루미늄 입자의 유동성이 낮아지고, 혼합 시에 실리카 입자의 표면에 알루미늄 입자가 충분한 양 부착되기 때문에, 표면이 알루미늄층에 의해 충분히 덮인 구조를 갖는 산화물 복합 입자를 얻을 수 있다. 상기 안식각의 평균값 범위의 상한은 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 55° 이하일 수 있다. 상기 안식각의 평균값은, 후술하는 방법에 의해 측정되는 값이다. 또한, 알루미늄 입자로서 에어로실을 사용한 경우, 에어로실은 안식각의 평균값이 50° 미만이기 때문에, 알루미늄 입자가 실리카 입자 표면에 편석하고, 표면이 알루미늄층에 의해 충분히 덮이지 않는다. 그 때문에, XPS에 의해 검출되는 알루미늄/규소의 원소 비율은 1.5 미만이 된다.

[0049] 알루미늄 입자의 비표면적은 50 내지 170 m^2/g 인 것이 바람직하고, 60 내지 130 m^2/g 인 것이 보다 바람직하고, 70 내지 100 m^2/g 인 것이 더욱 바람직하다. 상기 비표면적이 50 m^2/g 이상인 것에 의해, 실리카 표면에 알루미늄 입자가 안정적으로 흡착하기 쉽기 때문에, 알루미늄층에 의한 표면 피복의 정도가 커진다. 또한, 상기 비표면적이 170 m^2/g 이하인 것에 의해, 알루미늄 입자의 부피가 일정 이하로 억제되어, 당해 방법에 의한 산화물 복합

입자의 합성이 가능하게 된다. 또한, 상기 비표면적은 후술하는 방법에 의해 측정되는 값이다.

- [0050] 실리카 입자와 알루미늄 입자의 혼합 방법은, 건식 혼합, 습식 혼합의 어느 것이어도 되지만, 건식 혼합쪽이 용매를 사용하지 않기 때문에, 용매를 건조시킬 필요가 없어, 산화물 복합 입자의 제조 비용을 저감할 수 있기 때문에 바람직하다. 혼합 방법으로는, 예를 들어, 마노 유발이나 볼 밀, 진동 밀 등의 분쇄기, 각종 믹서류를 들 수 있다.
- [0051] (가열 공정)
- [0052] 본 공정에서는, 상기 혼합물 제조 공정에서 얻어진 혼합물을, 1300 내지 1500℃에서 2 내지 8시간 가열한다. 혼합물을 가열하는 가열 장치로서는, 고온에서의 가열이 가능한 장치이면 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 전기로, 푸셔 로 등을 들 수 있다. 가열 분위기는 특별히 한정되지는 않고, 예를 들어, 대기, N₂, Ar, 진공 하 등을 들 수 있다.
- [0053] 가열 온도는 1300 내지 1500℃가 바람직하고, 1300 내지 1450℃가 더욱 바람직하고, 1300℃ 내지 1400℃가 더욱 바람직하다. 가열 온도가 1300℃ 이상인 것에 의해, 크리스토팔라이트의 함유율이 커지고, 방열 필러로서의 열전도성을 확보할 수 있다. 또한, 가열 온도가 1500℃ 이하인 것에 의해, 가열에 수반하는 입자간 용착에 의한 산화물 복합 입자의 원형도의 저하를 방지할 수 있다. 가열 시간은 2 내지 8시간이 바람직하고, 2 내지 6시간이 보다 바람직하고, 4 내지 5시간이 더욱 바람직하다. 가열 시간이 2시간 이상인 것에 의해, 크리스토팔라이트의 함유율이 커지고, 방열 필러로서의 열전도성을 확보할 수 있다. 또한, 가열 시간이 8시간 이하인 것에 의해, 가열에 수반하는 입자간 용착에 의한 산화물 복합 입자의 원형도의 저하를 방지할 수 있다.
- [0054] 가열 후에 얻어지는 산화물 복합 입자는, 복수의 입자가 응집한 응집체로 되어 있는 경우가 있다. 응집체 자체를 산화물 복합 입자로서 이용해도 되지만, 필요에 따라 응집체를 해체하고 나서, 이것을 산화물 복합 입자로서 사용해도 된다. 응집체의 해체 방법은 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 마노 유발, 볼 밀, 진동 밀, 제트 밀, 습식 제트 밀 등에 의해 해체하는 방법을 들 수 있다. 해체는 건식으로 행해져도 되지만, 물 또는 알코올 등의 액체와 혼합해서 습식으로 행해져도 된다. 습식에 의한 해체에서는, 해체 후에 건조시키는 것으로 산화물 복합 입자가 얻어진다. 건조 방법은 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 가열 건조, 진공 건조, 동결 건조, 초임계 이산화탄소 건조 등을 들 수 있다.
- [0055] (기타 공정)
- [0056] 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자의 제조 방법은, 상기 혼합물 제조 공정 및 상기 가열 공정 이외에도, 예를 들어 원하는 평균 입자경이 얻어지도록 산화물 복합 입자를 분급하는 분급 공정, 불순물 저감을 위한 세정 공정 등의 다른 공정을 더 포함해도 된다.
- [0057] [수지 조성물]
- [0058] 본 실시 형태에 따른 수지 조성물은, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자와, 수지를 포함한다. 본 실시 형태에 따른 수지 조성물은, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자를 포함하기 때문에, 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정점을 나타낼 수 있다. 또한, 본 실시 형태에 따른 수지 조성물은, 저점도이기 때문에 유동성이 높고, 성형성이 우수하다.
- [0059] 상기 수지로서는, 특별히 한정되지는 않지만, 예를 들어 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에폭시 수지, 실리콘 수지, 페놀 수지, 멜라민 수지, 우레아 수지, 불포화 폴리에스테르, 불소 수지, 폴리이미드, 폴리아미드이미드, 폴리에테르이미드 등의 폴리아미드, 폴리부틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌테레프탈레이트 등의 폴리에스테르, 폴리페닐렌술폰, 전방향족 폴리에스테르, 폴리술폰, 액정 폴리머, 폴리에테르술폰, 폴리카르보네이트, 말레이미드 변성 수지, ABS 수지, AAS(아크릴로니트릴-아크릴 고무·스티렌) 수지, AES(아크릴로니트릴·에틸렌·프로필렌·디엔 고무-스티렌) 수지 등을 들 수 있다. 이들 수지는 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0060] 상기 수지 조성물 중의 산화물 복합 입자의 함유량은, 목적으로 하는 열전도율, 유전율 및 유전 정점 등의 물성에 따라서 적절히 선택되지만, 20 내지 80질량%인 것이 바람직하다. 이 함유량은 상기 산화물 복합 입자의 밀도가 2.4이고 상기 수지의 밀도가 1.2인 경우에는 11 내지 67체적%이고, 상기 산화물 복합 입자의 밀도가 3.1이고 상기 수지의 밀도가 1.2인 경우에는 9 내지 61체적%이다.
- [0061] 본 실시 형태에 따른 수지 조성물은, 본 실시 형태에 따른 산화물 복합 입자 및 수지 이외의 다른 성분을 포함할 수 있다. 다른 성분으로서, 예를 들어 난연제, 유리 클로스 등을 들 수 있다. 또한, 본 실시 형태에 따

른 산화물 복합 입자이외에, 조성이나 비표면적, 평균 입자경 등이 상이한 다른 입자를 더욱 혼합함으로써, 수지 조성물의 열전도율, 유전율, 유전 정접, 충전율 등을 보다 용이하게 조정할 수 있다.

[0062] 본 실시 형태에 따른 수지 조성물의 열전도율은, 0.80W/m·K 이상인 것이 바람직하고, 0.85W/m·K 이상인 것이 보다 바람직하다. 본 실시 형태에 따른 수지 조성물의 유전율은, 4.0 이하인 것이 바람직하고, 3.5 이하인 것이 보다 바람직하다. 본 실시 형태에 따른 수지 조성물의 유전 정접은, 5.0×10^{-4} 이하인 것이 바람직하고, 4.0×10^{-4} 이하인 것이 보다 바람직하다. 본 실시 형태에 따른 수지 조성물의 점도는, 700Pa·s 이하인 것이 바람직하고, 500Pa·s 이하인 것이 보다 바람직하다. 또한, 상기 수지 조성물의 열전도율, 유전율, 유전 정접 및 점도는, 후술하는 방법에 의해 측정되는 값이다.

[0063] 본 실시 형태에 따른 수지 조성물은, 높은 열전도율, 그리고 낮은 유전율 및 유전 정접을 나타내기 위해서, 특히 고주파 기관용 수지 조성물로서 유용하다. 고주파 기관으로서, 구체적으로는 불소 기관, PPE 기관, 세라믹스 기관 등을 들 수 있다.

[0064] 실시예

[0065] 이하, 실시예에 의해 본 발명의 실시 형태를 보다 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이들 실시예에 한정되는 것은 아니다.

[0066] [실시예 1]

[0067] 실리카 입자(상품명: FB40R, 덴카(주)제, 평균 입자경: 50.1 μ m)에, 알루미늄 입자(상품명: AKPG07, 스미토모 가가꾸(주)제, 안식각 평균값: 52.5°, 비표면적: 80.0m²/g)를, 알루미늄 입자의 첨가량이 15질량%가 되도록 첨가했다. 또한, 당해 혼합 입자를, 진동 믹서(Resodyn사 제조, 상품명: 저주파 공진 음향 믹서 Lab RAM II)로 혼합했다. 얻어진 혼합물 10g을 알루미늄 도가니에 넣고, 실온으로부터 10°C/min으로 승온시키고, 전기로로 가열했다. 이때, 가열 온도는 1400°C, 가열 시간은 4시간이었다. 가열 후 자연 방랭하고, 시료가 냉각된 후, 마노 유발로 해체해서 산화물 복합 입자를 얻었다. 해당 산화물 복합 입자를 후술하는 방법에 의해 평가했다.

[0068] [실시예 2 내지 6 및 비교예 1 내지 4]

[0069] 원료의 종류 및 첨가량, 가열 시간 그리고 가열 온도를 표 1 또는 표 2에 나타낸 조건으로 변경한 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로 방법에 의해 산화물 복합 입자를 조제하고, 평가했다. 또한, 실시예 2 및 6, 그리고 비교예 2 및 4에서는, 실리카 입자(상품명: FB5D, 덴카(주)제, 평균 입자경: 8.0 μ m)를 사용했다. 또한, 비교예 4에서는, 알루미늄 입자(상품명: TM-DA, 다이메이 가가꾸 고교(주)제, 안식각 평균값: 48.0°, 비표면적: 6.6m²/g)를 사용했다.

[0070] [실시예 7 및 8]

[0071] 실리카 입자(상품명: FB40R, 덴카(주)제, 평균 입자경: 50.1 μ m) 또는 실리카 입자(상품명: FB5D, 덴카(주)제, 평균 입자경: 8.0 μ m)에, 알루미늄 입자(상품명: AKPG07, 스미토모 가가꾸(주)제, 안식각 평균값: 52.5°, 비표면적: 80.0m²/g)를, 알루미늄 입자의 첨가량이 15질량%가 되도록 첨가했다. 또한, 당해 혼합 입자를, 진동 믹서(Resodyn사 제조, 상품명: 저주파 공진 음향 믹서 Lab RAM II)로 혼합했다. 얻어진 혼합물 1kg을 알루미늄 도가니에 넣고, 실온으로부터 2.5°C/min으로 승온시키고, 전기로로 가열했다. 이때, 가열 온도는 1400°C, 가열 시간은 4시간이었다. 가열 후 자연 방랭하고, 시료가 냉각된 후, 마노 유발로 해체해서 산화물 복합 입자를 얻었다. 해당 산화물 복합 입자를 후술하는 방법에 의해 평가했다.

[0072] 각 실시예, 비교예에서 조제한 산화물 복합 입자의 각 특성을, 이하의 방법에서 평가했다. 각 평가 결과를 표 1 및 표 2에 나타낸다.

[0073] [각 결정상의 동정 및 각 결정상의 함유량 측정]

[0074] 산화물 복합 입자에 포함되는 각 결정상의 동정 및 각 결정상의 함유량 측정은, 분말 X선 회절 측정/리트벨트법에 의해 행하였다. 측정 장치로서, 시료 수평형 다목적 X선 회절 장치(리가쿠사 제조, 상품명: RINT-UltimaIV)를 사용했다. 측정은, X선원: CuK α , 관 전압: 40kV, 관 전류: 40mA, 스캔 속도: 10.0°/min, 2 θ 스캔 범위: 10° ~ 70° 의 조건에서 행하였다. 일 예로서, 실시예 1의 산화물 복합 입자의 X선 회절 패턴을 도 1에 나타낸다. 결정상의 정량 분석에는, 리트벨트법 소프트웨어(MDI사 제조, 상품명: 통합 분말 X선 소프트웨어 Jade9.6)를 사용했다. 각종 결정상의 비율(질량%)은 산화물 복합 입자 시료를 X선 회절 측정하고, 리트벨트 해석에 의해 산출했다. 그 때에, 당해 산화물 복합 입자 시료의 X선 회절 측정에 있어서 얻어지는 시료의 X

선 회절 피크 중 α -크리스토팔라이트 결정상 유래의 피크 피크 면적(A_s)과, 일본 작업 환경 측정 협회제 크리스토팔라이트 표준 시료(JAWE 551)를 측정했을 때 얻어지는 X선 회절 피크의 피크 면적(A_c)의 비율로부터, 하기 식 (2)를 사용해서 상기 산화물 복합 입자 시료 중의 실리카 성분 α -크리스토팔라이트의 함유율(R_c)(질량%)을 산출했다.

[0075] $R_c=100A_s/A_c$ (2)

[0076] 이와 같이 해서 얻어진 α -크리스토팔라이트 함유율의 값과, 별도 리트벨트 해석으로부터 얻어진 결정상의 비율을 비교하고, 이하와 같이 상기 산화물 복합 입자 시료 중의 각 결정상 및 비정질 실리카 성분의 함유량을 계산했다.

[0077] 리트벨트 해석에 의해 요구한 각 결정상의 함유율(질량%)이, α -크리스토팔라이트에 대해서 C, α -알루미나에 대해서 A, 멀라이트에 대해서 M, 기타 결정상에 대해서 X로 한다. 이때, C와 전술한 R_c 의 비율 R_c/C 를 C, A, M 및 X로 곱한 R_c , $A \times R_c/C$, $M \times R_c/C$ 및 $X \times R_c/C$ 를 각각, 상기 산화물 복합 입자 중에 포함되는 α -크리스토팔라이트 결정상, α -알루미나 결정, 멀라이트 결정 및 기타 결정상의 함유율(질량%)로 하고, 나머지 성분을 비정질로 하였다.

[0078] [XPS에 의해 검출되는 알루미늄/규소의 원소 비율의 측정]

[0079] X선 광전자 분광 장치(XPS, 서모사 제조, 상품명: K-Alpha)를 사용해서 산화물 복합 입자 표면의 알루미늄/규소의 원소 비율의 측정을 행하였다. 산화물 복합 입자를 장치 내에 도입 후, $400 \times 200 \mu\text{m}$ 의 측정 영역에 단색화 Al-K α 선을 조사함으로써 측정을 행하였다.

[0080] [평균 입자경의 측정]

[0081] 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치(베크만 콜터사 제조, 상품명: LS 13 320)를 사용해서 평균 입자경의 측정을 행하였다. 유리 비이커에 50cm^3 의 순수수와, 측정 시료 0.1g을 넣고, 초음파 호모지나이저(BRANSON사 제조, 상품명: SFX250)로 1분간, 분산 처리를 행하였다. 분산 처리를 행한 측정 시료의 분산액을, 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치에 스포이트로 한 방울씩 첨가하고, 소정량 첨가하고 나서 30초 후에 측정을 행하였다. 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치 내의 센서로 검출한 측정 시료에 의한 회절/산란광의 광 강도 분포의 데이터로부터, 입도 분포를 계산했다. 평균 입자경은 측정되는 입자경의 값에 상대 입자량(차분%)을 곱하고, 상대 입자량의 합계(100%)로 나누어서 구했다. 또한, 여기에서의 %는 체적%이다.

[0082] [평균 원형도의 측정]

[0083] 산화물 복합 입자를 카본 테이프로 시료대에 고정 후, 오스뮴 코팅을 행하여, 주사형 전자 현미경(니혼덴시사 제조, 상품명: JSM-7001F SHL)으로 촬영한 배율 500 내지 5000배, 해상도 2048×1356 픽셀의 화상을 퍼스컴에 도입했다. 이 화상을, 화상 해석 장치(닛폰 로퍼사 제조, 상품명: Image-Pro Premier Ver.9.3)를 사용하고, 산화물 복합 입자의 투영 면적(S)과 산화물 복합 입자의 투영 주위 길이(L)를 산출하고 나서, 하기 식 (1)에서 원형도를 산출했다. 이와 같이 해서 얻어진 임의의 투영 면적 원 상당 직경 $0.1 \mu\text{m}$ 이상의 산화물 복합 입자 100개의 원형도를 구하고, 그 평균값을 평균 원형도로 하였다.

[0084] $\text{원형도} = 4 \pi S / L^2$ (1)

[0085] [밀도의 측정]

[0086] 산화물 복합 입자의 밀도의 측정은 건식 밀도 측정에 의해 측정했다. 시마즈 세이사쿠쇼사제 건식 자동 밀도계(큐어 피크 II1340)의 측정용 셀에 미리 중량 측정을 행한 산화물 복합 입자 시료를 넣고, 헬륨 충전에 의한 건식 측정에 의해 시료의 체적, 밀도를 구했다.

[0087] [알루미나 입자의 안식각의 평균값의 측정]

[0088] 알루미나 입자의 안식각의 평균값은 파우더 테스터를 사용한 안식각 측정에 의해 구했다. 호소카와 미크론사제 파우더 테스터(PT-X)에 의해, 눈 크기 $1700 \mu\text{m}$ 의 분산체를 사용하고, 진동시키면서 시료를 공급함으로써 형성된 알루미나 입자의 퇴적을, CCD 카메라로 촬영, 화상 처리를 행함으로써 안식각을 측정했다.

[0089] [알루미나 입자의 비표면적의 측정]

[0090] 알루미나 입자의 비표면적은 가스 흡착 측정에 의해 측정했다. 측정용 셀에 시료를 1g 충전하고, Mountech사제 Macsorb HM model-1201 전자동 비표면적계 측정 장치(BET1점법)에 의해 비표면적을 측정했다. 측정전의 탈기

조건은 200℃, 10분으로 하였다. 흡착 가스는 질소로 하였다.

[0091] [수지 조성물의 열전도율의 측정]

[0092] 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(미쯔비시 가가꾸사 제조, 상품명: JER828) 25.6질량부, 4,4'-디아미노페닐메탄(도쿄 카세이사제) 6.4질량부를 95℃에서 용융시키면서 혼합했다. 이 혼합물에 산화물 복합 입자를 충전량이 40체적%가 되도록 더하고, 유성식 교반기(싱키사, 상품명: 아와토리 렌타로 AR-250, 회전수 2000rpm)로 혼합했다. 미리 80℃로 가열해 둔 실리콘제의 형틀(한 변이 2cm인 정사각형×6mm 두께)에 얻어진 혼합물을 유입하고, 진공 가열 프레스기(이모또 세이사꾸쇼사 제조, 상품명: IMC-1674-A형)로, 80℃/1시간/3MPa, 150℃/1시간/5MPa, 200℃/0.5시간/7MPa의 순으로 프레스 가열 경화하여, 수지 조성물을 얻었다.

[0093] 수지 조성물의 열전도율은 열확산율, 비중, 비열을 모두 곱해서 산출했다. 열확산율은, 상기 경화 후의 샘플을 폭 10mm×10mm×두께 1mm로 가공하고, 레이저 플래시법에 의해 구했다. 측정 장치는 크세논 플래시 애널라이저(NETZSCH사 제조, 상품명: LFA447 NanoFlash)를 사용했다. 비중은 아르키메데스법을 사용해서 구했다. 비열은 시차 주사 열량계(티·에이·인스트루먼트사 제조, 상품명: Q2000)를 사용하여, 질소 분위기 하에서, 승온 속도 10℃/분으로 실온 내지 200℃까지 승온시켜서 구했다.

[0094] [수지 조성물의 유전율, 유전 정접의 측정]

[0095] 산화물 복합 입자의 충전량이 40체적%가 되도록, 산화물 복합 입자 및 폴리에틸렌 분말(스미토모 세이카사 제조, 상품명: 플로센 UF-20S)을 계량하고, Resodyn사제 진동식 믹서로 혼합했다(가속도 60g, 처리 시간 2분). 얻어진 혼합 분말을 소정 체적분(두께가 약 0.5mm가 되도록) 계량하고, 직경 3cm의 금속 프레임 안에 넣고, 나노임프린트 장치(SCIVAX사 제조, 상품명: X-300)에서 140℃, 5분, 30000N의 조건에서 시트화하고, 평가 시료로 하였다. 평가 시료의 시트 두께는 약 0.5mm이다. 형상이나 사이즈는 측정기에 탑재할 수 있으면 평가 결과에 영향을 미치지 않지만, 한 변이 1 내지 3cm인 정사각형 정도이다.

[0096] 유전 특성의 측정은, 이하의 방법에 의해 행하였다. 36GHz 공동 공진기(사무테크사제)를 벡터 네트워크 애널라이저(상품명: 85107, 키사이트 테크놀로지사제)에 접속하고, 평가 시료(한 변이 1.5cm인 정사각형, 두께 0.5mm)를 공진기에 마련된 직경 10mm의 구멍을 막도록 세트하고, 공진 주파수(f0), 무부하 Q값(Qu)을 측정했다. 측정마다 평가 시료를 회전시켜서, 마찬가지로 측정을 5회 반복하고, 얻어진 f0, Qu의 평균을 취해서 측정값으로 하였다. f0으로부터 유전율, Qu으로부터 유전 정접(tan δc)을 해석 소프트웨어(사무테크사제 소프트웨어)로 산출했다. 측정 온도는 20℃, 습도는 60%RH였다.

[0097] [수지 조성물의 점도의 측정]

[0098] 산화물 복합 입자의 충전량이 전체의 40체적%가 되도록, 산화물 복합 입자를 비스페놀 A형 액상 에폭시 수지(미쯔비시 가가꾸사 제조, 상품명: JER828)와 혼합하여, 유성식 교반기(싱키사 「아와토리 렌타로 AR-250」, 회전수 2000rpm)로 혼련하고, 수지 조성물을 조제했다. 얻어진 수지 조성물에 대해서, 레오미터(안톤파사제 「MCR-302」)를 사용해서 하기 조건에서 점도를 측정했다.

[0099] 플레이트 형상: 원형 평판 10mm φ

[0100] 시료 두께: 1mm

[0101] 온도: 25±1℃

[0102] 전단 속도: 1s⁻¹

표 1

		실시에 1	실시에 2	실시에 3	실시에 4	실시에 5	실시에 6	실시에 7	실시에 8
실리카 입자	종류	FB40R	FB5D	FB40R	FB40R	FB40R	FB5D	FB40R	FB5D
	평균 입자경 (um)	50.1	8.0	50.1	50.1	50.1	8.0	50.1	8.0
알루미늄 입자	종류	AKPG07	AKPG07	AKPG07	AKPG07	AKPG07	AKPG07	AKPG07	AKPG07
	첨가량(질량%)	15	30	50	15	15	15	15	15
	안식각 평균값 (°)	52.5	52.5	52.5	52.5	52.5	52.5	52.5	52.5
	비표면적 (m ² /g)	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0
가열 온도 (°C)		1400	1400	1400	1300	1500	1400	1400	1400
가열 시간 (h)		4	4	4	8	2	4	4	4
산화물 복합 입자	α-크리스토발라이트 결정상 함유량 (질량%)	84	65	48	80	84	84	79	79
	α-알루미나 결정상 함유량 (질량%)	15	28	49	13	15	15	11	5
	밀라이트 결정상 함유량 (질량%)	1	1	1	1	1	1	3	10
	XPS 알루미늄/규소 원소 비율(-)	2.3	3.4	3.0	2.3	2.5	1.6	2.1	1.8
	알루미나 함유량 (질량%)	15	30	50	15	15	15	15	15
	평균 입자경 (um)	40	8.3	32.5	23.5	63	8.3	43	8.4
	평균 원형도 (-)	0.90	0.90	0.78	0.82	0.73	0.75	0.90	0.75
	밀도 (g/mL)	2.5	2.8	3.0	2.5	2.5	2.6	2.5	2.6
	열전도율 (W/mK)	0.86	0.89	0.95	0.85	0.87	0.85	0.86	0.85
	유전율 (-)	3.1	3.2	3.6	3.1	3.1	3.1	3.2	2.9
수지 조성물	유전 정점 (10 ⁻⁴)	2.9	3.7	4.8	3.1	2.9	2.9	2.8	2.7
	점도 (PaS)	439	493	480	450	620	460	480	465

[0103]

표 2

		비교예 1	비교예 2	비교예 3	비교예 4
실리카 입자	종류	FB40R	FB5D	FB40R	FB5D
	평균 입자경 (um)	50.1	8.0	50.1	50.1
알루미늄 입자	종류	AKPG07	AKPG07	AKPG07	TM-DA
	첨가량(질량%)	10	55	15	15
	안식각 평균값 (°)	52.5	52.5	52.5	48.0
	비표면적 (m ² /g)	80.0	80.0	80.0	6.6
가열 온도 (°C)		1400	1400	1200	1400
가열 시간 (h)		4	4	4	4
산화물 복합 입자	α-크리스토발라이트 결정상 함유량 (질량%)	86	35	12	80
	α-알루미나 결정상 함유량 (질량%)	8	52	13	13
	밀라이트 결정상 함유량 (질량%)	0	1	0	1
	XPS 알루미늄/규소 원소 비율(-)	1.2	3.8	3.1	0.8
	알루미나 함유량 (질량%)	10	55	15	15
	평균 입자경 (um)	46.7	5.8	20.6	4.8
	평균 원형도 (-)	0.81	0.80	0.82	0.80
	밀도 (g/mL)	2.5	3.2	2.4	2.5
수지 조성물	열전도율 (W/mK)	0.75	0.77	0.72	0.66
	유전율 (-)	3.0	3.6	3.1	3.1
	유전 정점 (10 ⁻⁴)	3.1	5.2	3.8	3.2
	점도 (PaS)	420	720	452	529

[0104]

[0105]

표 1 및 표 2에 나타나는 바와 같이, 본 발명의 실시 형태인 실시예 1 내지 8의 산화물 복합 입자를 함유하는 수지 조성물은, 높은 열전도율(0.80W/m·K 이상), 낮은 유전율(4.0 이하) 및 낮은 유전 정점(5.0×10⁻⁴ 이하)을 나타내는 것을 알 수 있다.

도면

도면1

