(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017 年 1 月 5 日(05.01.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/002890 A1

(51) 国際特許分類:
C08K 13/02 (2006.01)　*C08L 101/00* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01)　*C09K 5/06* (2006.01)
C08K 5/10 (2006.01)　*H01L 23/36* (2006.01)
C08K 5/20 (2006.01)　*H01L 23/373* (2006.01)
C08K 7/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/069368

(22) 国際出願日: 2016 年 6 月 30 日(30.06.2016)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2015-133943 2015 年 7 月 2 日(02.07.2015) JP

(71) 出願人: 株式会社カネカ (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒5308288 大阪府大阪市北区中之島二丁目３番１８号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 大西　芳史 (ONISHI, Yoshifumi); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西５－１－１　株式会社カネカ内 Osaka (JP). 西浦　浩一 (NISHIURA, Koichi); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西５－１－１　株式会社カネカ内 Osaka (JP). 宮本　慎平 (MIYAMOTO, Shinpei); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西５－１－１　株式会社カネカ内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 植木　久一, 外 (UEKI, Kyuichi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島２丁目１番１６号　フジタ東洋紡ビル９階 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2017/002890 A1

(54) **Title**: THERMALLY CONDUCTIVE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称 : 熱伝導性樹脂組成物

(57) **Abstract**: The present invention relates to a thermally conductive resin composition characterized by the inclusion of an (A) constituent, which is a resin whereof the melting point is 40-100°C, and a (B) constituent, which is an inorganic filler, wherein the decrease in weight of the (A) constituent is less than 10% after storage for 100 hours in air at 150°C. This thermally conductive resin composition can be used suitably, for instance, in a TIM, and particularly in a TIM for semiconductor module.

(57) 要約: 本発明は、（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂および（Ｂ）成分：無機充填剤を含有し、（Ａ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものであることを特徴とする熱伝導性樹脂組成物に関する。本発明の熱伝導性樹脂組成物は、例えばＴＩＭ、特に半導体モジュール用ＴＩＭに好適に用いることができる。

明　細　書

発明の名称 ： 熱伝導性樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は熱伝導性樹脂組成物及びこれを用いた熱界面材料（ＴＩＭ）に関する。

背景技術

[0002] 半導体モジュールは大量の熱を発生するため、放熱材料が広く使用されている。一方で更なる展開が見込まれている電気自動車や送電システムのインバータやコンバータ等で使用されるパワー半導体においては、半導体素子にシリコンが使用されているが、電力損失が大幅に低減できる、耐電圧が高い、及び高温駆動が可能な点でＳｉＣ（炭化ケイ素）やＧａＮ（窒化ガリウム）を使用する動きがあり、これらの材料に対応した放熱材料が求められる。

[0003] その中でもＴＩＭ（熱界面材料）は、半導体モジュール全体の熱対策において重要な要素となっている。このＴＩＭとして使用されることの多いシリコーン系をはじめとするグリースでは、長期間の使用で含まれる低分子成分が分離し、効果を及ぼさなくなることが知られている。そのため、低分子成分を使用しないで高温時に軟化してＴＩＭの役割を示す製品が提案されているが、その主原料はパラフィン系であることが多く、充分な耐熱性を発現させることは難しいという問題がある（特許文献１）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第３７９４９９６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 具体的に、特許文献１で使用されるパラフィン系材料は、融点が３０～１２０℃を有し、常温では固体である。しかしながら、本発明者らは、パラフィン系材料が、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１

０％以上であり、ＴＩＭで必要とされる高温下での耐熱性は、十分ではないことを見出した。

本発明は、上記の課題に鑑みてなされたものであって、１５０℃の大気雰囲気下において劣化がほとんど観測されない熱伝導性樹脂組成物及びそれを用いたＴＩＭを提供する事を目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、上記課題に鑑み鋭意検討した結果、１５０℃の大気雰囲気下において劣化がほとんど観測されない熱伝導性樹脂組成物及びＴＩＭを提供できることを見出し、本発明に至った。

[0007] すなわち本発明は以下の通りである。

１）（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂および（Ｂ）成分：無機充填剤を含有し、（Ａ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものであることを特徴とする熱伝導性樹脂組成物。

２）（Ａ）成分が、官能基を有する炭素数１～１００の脂肪族炭化水素化合物である１）に記載の熱伝導性樹脂組成物。

３）（Ａ）成分が、炭素数１～１００の脂肪酸エステル又はアミドを含む１）又は２）に記載の熱伝導性樹脂組成物。

４）（Ｂ）成分が、金属、金属酸化物、金属窒化物、及び金属炭化物からなる群より選択される１種以上を含む１）～３）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

５）（Ｂ）成分が、球状、鱗片状、又は破砕状である１）～４）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

６）（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂を含有し、（Ｃ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものである１）～５）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

７）（Ｃ）成分がアクリル樹脂又は多塩基酸エステルである１）～６）のい

ずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

８）（Ｂ）成分を熱伝導性樹脂組成物１００重量％に対して５０～９０重量％含有する１）～７）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

９）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して球状粉末を５０重量％以上含有するものである１）～８）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１０）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して球状粉末を９０重量％以上含有するものである１）～９）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１１）（Ｂ）成分が平均粒径５０μｍ以下の粉末である１）～１０）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１２）（Ｂ）成分が平均粒径２０μｍ以下の粉末である１１）に記載の熱伝導性樹脂組成物。

１３）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有するものである１）～１２）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１４）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を９０重量％以上含有するものである１）～１３）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１５）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有するものである１）～１４）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１６）（Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を８０重量％超含有するものである１）～１５）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物。

１７）上記１）～１６）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物を含有するＴＩＭ。

１８）上記１）～１６）のいずれか１つに記載の熱伝導性樹脂組成物を含有

する半導体モジュール用ＴＩＭ。

発明の効果

[0008] 上記本発明に係る熱伝導性樹脂組成物は、高い長期耐熱性を有するため、ＴＩＭに好適な半導体パッケージの放熱用樹脂組成物として用いられる。特に、ＳｉＣなどを使用した次世代半導体モジュールの有効な熱対策が実現できるという効果を奏する。

発明を実施するための形態

[0009] 本発明の一実施形態について以下、説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

本発明の熱伝導性樹脂組成物は、（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂および（Ｂ）成分：無機充填剤を含有し、（Ａ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満であることを特徴とする。

[0010] 以下各成分について説明する。

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂（化合物）

本発明において、（Ａ）成分は、厳密には重合、重縮合、重付加等によって得られる高分子量物質を指すのではなく、加熱すると軟化して塑性を示し、任意の形に成形できるが冷却すると固化する過程を可逆的に行うことができる化合物を樹脂と称する。また、本発明において、熱伝導性樹脂組成物は、熱伝導性組成物と言い換えてもよい。

前記樹脂を選定することで、高温時に軟化してＴＩＭの役割を付与することが可能となる。前記樹脂の融点は特に限定されないが、４０～１００℃であり、４０～８０℃が好ましく、４５～６５℃がより好ましい。４０℃を下回ると組成物の取り扱いが困難になり、１００℃を超えると組成物をＴＩＭとして使用することが困難になる場合がある。

融点は、（Ａ）成分の加熱昇温過程での状態変化を観察し、溶け終わりの温度を測定し、これを融点としてもよい。

[0011] （Ａ）成分は、官能基を有する炭素数１～１００の脂肪族炭化水素化合物

であることが好ましい。

脂肪族炭化水素化合物は、飽和でも不飽和であってもよく、不飽和の場合、例えば不飽和結合（炭素－炭素二重結合、炭素－炭素三重結合）は、前記官能基と直接結合しない限り、脂肪族炭化水素化合物の任意の部位に結合又は置換していてもよい。

また、脂肪族炭化水素化合物は、直鎖、分岐鎖、及び環状のいずれであってもよい。

[0012] 直鎖脂肪族炭化水素化合物としては、メタン、エタン、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ノナン、デカン、ウンデカン、ドデカン、テトラデカン、ヘキサデカン、ヘプタデカン、イコサン等の直鎖アルカン等が挙げられる。

[0013] 分岐鎖脂肪族炭化水素化合物としては、２，２－ジメチル－１，３－プロパン、２－メチルペンタン、２，２－ジメチルブタン、２，３－ジメチルブタン、２－メチルヘキサン、３－メチルヘキサン、２，３－ジメチルペンタン、２，４－ジメチルペンタン、２－メチルヘプタン、３－メチルヘプタン、４－メチルヘプタン、３－エチルヘキサン、２，２－ジメチルヘキサン、２，３－ジメチルヘキサン、２，４－ジメチルヘキサン、２，５－ジメチルヘキサン、３，３－ジメチルヘキサン、３，４－ジメチルヘキサン、２－メチル－３－エチルペンタン、３－メチル－３－エチルペンタン、２，３，３－トリメチルペンタン、２，３，４－トリメチルペンタン、２，３，３，３－テトラメチルブタン、２，２，５－トリメチルヘキサン等の分岐鎖アルカン等が挙げられる。

[0014] 環状脂肪族炭化水素化合物としては、シクロプロパン、シクロブタン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタン、シクロノナン、シクロデカン、シクロウンデカン、シクロドデカン、シクロテトラデカン、シクロヘキサデカン、シクロヘプタデカン等；ノルボルナン、アダマンタン等のシクロアルカン等が挙げられる。

[0015] 脂肪族炭化水素化合物の炭素数は、５～９９であることが好ましく、１０

～９８であることがより好ましく、１２～９７であることがさらに好ましく、２２～９６であることがさらにより好ましく、３０～９５であることが特に好ましい。

[0016] 官能基は、脂肪族炭化水素化合物に結合してもよく、脂肪族炭化水素化合物の一部で置換されていてもよく、水酸基、エステル基、アミノ基、カルボキシル基、エポキシ基、チオール基、アミド基、スルホニル基，イミノ基、エーテル基、カルバモイル基、シアノ基等であればよい。中でも、エステル基、アミノ基、カルボキシル基、アミド基が特に好ましく、エステル基、アミド基が最も好ましい。

[0017] （Ａ）成分は、炭素数１～１００の脂肪酸エステル又はアミドを含むことが特に好ましい。

[0018] 脂肪酸エステルは、例えば一価又は多価アルコールと脂肪酸との脱水縮合物であってもよく、上記脂肪族炭化水素化合物に１つ以上の水酸基が結合した化合物と脂肪酸との脱水縮合物であってもよい。

[0019] 脂肪酸エステルにおける脂肪酸は、飽和又は不飽和のいずれでもよい。

[0020] 飽和脂肪酸としては、ブタン酸（酪酸）、ペンタン酸（吉草酸）、ヘキサン酸（カプロン酸）、ヘプタン酸（エナント酸）、オクタン酸（カプリル酸）、ノナン酸（ベラルゴン酸）、デカン酸（カプリン酸）、ドデカン酸（ラウリン酸）、テトラデカン酸（ミリスチン酸）、ペンタデカン酸、ヘキサデカン酸（パルミチン酸）、ヘプタデカン酸（マルガリン酸）、オクタデカン酸（ステアリン酸）、イコサン酸（アラキジン酸）、ヘニコシル酸、ドコサン酸（ベヘン酸）、テトラドコサン酸（リグノセリン酸）、ヘキサドコサン酸（セロチン酸）、オクタドコサン酸（モンタン酸）、メリシン酸等の炭素数４～３０の飽和脂肪酸が挙げられる。

[0021] 不飽和脂肪酸としては、９－ヘキサデセン酸（パルミトレイン酸）、ｃｉｓ－９－オクタデセン酸（オレイン酸）、１１－オクタデセン酸（バクセン酸）、ｃｉｓ，ｃｉｓ－９，１２－オクタデカジエン酸（リノール酸）、９，１２，１５－オクタデカトリエン酸（（９，１２，１５）－リノレン酸）

、６，９，１２－オクタデカトリエン酸（（６，９，１２）－リノレン酸）、９，１１，１３－オクタデカトリエン酸（エレオステアリン酸）、８，１１－イコサジエン酸、５，８，１１－イコサトリエン酸、５，８，１１，１４，－イコサテトラエン酸（アラキドン酸）、ｃｉｓ－１５－テトラドコサン酸（ネルボン酸）等の炭素数４～３０の不飽和脂肪酸が挙げられる。

これらの脂肪酸は、単独で又は複数を合わせて使用してもよい。

[0022] 脂肪酸の炭素数は、好ましくは６～２８、より好ましくは８～２６、さらに好ましくは１０～２４、さらにより好ましくは１２～２２である。

[0023] 脂肪酸エステルは、モノエステル型脂肪酸エステル、ポリエステル型脂肪酸エステルのいずれであってもよい。モノエステル型脂肪酸エステルとしては、ラウリン酸メチル、ミリスチン酸メチル、パルミチン酸メチル、ステアリン酸メチル、オレイン酸メチル、エルカ酸メチル、ベヘニン酸メチル、ラウリン酸ブチル、ステアリン酸ブチル、ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸オクチル、ステアリン酸オクチル、ラウリン酸ラウリル、ベヘニン酸ベヘニン、ミリスチン酸セチル等が挙げられる。

[0024] ポリエステル型脂肪酸エステルとしては、グリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ペンタエリスリトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル等が挙げられる。

[0025] 中でも、脂肪酸エステルは、ポリエステル型脂肪酸エステルであることが好ましく、ペンタエリスリトール脂肪酸エステルであることがより好ましく、ペンタエリスリトールに炭素数１２～２２の脂肪酸が脱水縮合したエステル化物であることがさらに好ましい。

[0026] 脂肪酸アミドは、例えばアミン（例えばアンモニア、エチレンジアミン）と脂肪酸との脱水縮合物であればよい。

脂肪酸アミドは、アミドが分子末端に存在するモノアミド、分子末端以外

の部分がアミドに置換されたモノアミド又はジアミド、分子末端にメチロールアミドが結合したモノアミド等であればよい。脂肪酸アミドにおける脂肪酸は、飽和又は不飽和のいずれでもよく、脂肪酸エステルで説明した脂肪酸が挙げられる。

[0027] モノアミドとしては、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド等の飽和脂肪酸アミド；オレイン酸アミド、エルカ酸アミド等の不飽和脂肪酸アミド；Ｎ－オレイルパルミチン酸アミド、Ｎ－ステアリルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルオレイン酸アミド、Ｎ－オレイルステアリル酸アミド、Ｎ－ステアリルエルカ酸アミド等の置換不飽和脂肪酸アミド；メチロールステアリン酸アミド等のメチロールアミド；等が挙げられる。

[0028] ジアミドとしては、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、エチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド、ヘキサメチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルセバシン酸アミド等の飽和脂肪酸ビスアミド；エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスエルカ酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジ゛オレイルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルセバシン酸アミド等の不飽和脂肪酸ビスアミド；等が挙げられる。

中でも不飽和脂肪酸アミドが好ましく、不飽和脂肪酸モノアミドがより好ましく、オレイン酸アミドがさらに好ましい。

[0029] 前記樹脂の種類としては、上記脂肪酸エステル、脂肪酸アミド以外に、パラフィンワックス等を挙げることができる。

特に組成物に充分な耐熱性を付与できる点で、脂肪酸エステル、脂肪酸アミドを少なくとも１種以上含有することが好ましい。

また（Ａ）成分は、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減

少が１０％未満であり、９．９％以下であることが好ましく、９．８％以下であることがより好ましく、９．７％以下であることがさらに好ましい。重量減少の下限は、例えば０％、１％又は２％である。１０％を超えると組成物に充分な耐熱性を発現させることが難しい場合がある。重量減少は、後述する通り、例えば樹脂（２ｇ）をシャーレ（直径４５ｍｍ）に入れて、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の樹脂の重量減少を測定すればよい。

[0030] （Ａ）成分は、熱伝導性樹脂組成物１００重量％に対して、好ましくは０．１～６０重量％、より好ましくは０．２～５５重量％、さらに好ましくは０．５～５０重量％、さらにより好ましくは１．０～１０重量％含む。（Ａ）成分量が少ない場合、組成物をＴＩＭとして使用することが困難になる虞があり、多い場合、熱伝導率が低下する虞がある。

[0031] （Ｂ）成分：無機充填剤

（Ｂ）成分は、金属、金属酸化物、金属窒化物、及び金属炭化物からなる群より選択される１種以上を含むことが好ましい。

無機充填剤を含有することで、組成物の熱伝導率を向上することができる。無機充填剤の種類としては特に限定されないが、グラファイト、カーボンナノチューブ、ダイヤモンド等の炭素化合物、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、酸化チタン、酸化ジルコニウムおよび酸化亜鉛等の金属酸化物、窒化ホウ素、窒化アルミニウムおよび窒化ケイ素等の金属窒化物、炭化ホウ素、炭化アルミニウムおよび炭化ケイ素等の金属炭化物、アクリロニトリル系ポリマー焼成物、フラン樹脂焼成物、クレゾール樹脂焼成物、ポリ塩化ビニル焼成物、砂糖の焼成物および木炭の焼成物等の有機性ポリマー焼成物、Ｚｎフェライトとの複合フェライト、Ｆｅ－Ａｌ－Ｓｉ系三元合金、アルミニウム粉末、銅粉末、銀粉末、ニッケル粉末等の金属粉末、結晶性シリカ等を使用することができ、単独で又は２種以上組み合わせて使用することができる。充填剤の形状も特に限定されるものではなく、球状、板状（例えば鱗片状）、破砕状等を使用することができ、単独で又は２種

以上組み合わせ使用することができる。充填量を増やして熱伝導率を向上することができる点、及び容易に入手可能な点で、少なくとも１種以上のアルミニウム粉末を含有することが好ましい。また、無機充填剤と樹脂との分散性を向上させる目的で、予めシランカップリング剤、チタネートカップリング剤等の処理により充填剤表面の修飾を施していても良い。

[0032] （Ｂ）成分は、球状のアルミニウム粉末、鱗片状のアルミニウム及び窒化ホウ素、及び破砕状の炭化ケイ素からなる群から選択される１種以上であることが好ましい。球状の形状物は、熱伝導率、印刷性、外観（平坦）性をバランスよく向上させることが可能である。他方、球状以外の形状物を用いると、熱伝導をより一層高めることができる。

[0033] （Ｂ）成分の配合量は、熱伝導性樹脂組成物１００重量％に対して、５０～９０重量％とすることが好ましく、６５～９０重量％とすることがより好ましく、７５～９０重量％とすることがさらに好ましく、８０～９０重量％とすることがさらにより好ましい。５０重量％を下回ると熱伝導率が２Ｗ／ｍ・Ｋを下回り熱対策が実現できないことがあり、９０重量％を超えると組成物の各成分を均一に混錬することが困難になることがある。

[0034] （Ｂ）成分は、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して球状粉末を５０重量％以上含有するものであることが好ましく、球状粉末を９０重量％以上含有するものであることがより好ましい。５０重量％未満であると、平坦性が悪化する虞がある。

[0035] また（Ｂ）成分は、平均粒径５０μｍ以下の粉末であることが好ましく、平均粒径２０μｍ以下の粉末であることがより好ましい。５０μｍ超であると、平坦性が悪化する虞がある。本発明において、無機充填剤の平均粒径は、累積重量百分率の積算値５０％の粒度、Ｄ５０（メジアン径）として表す。

[0036] （Ｂ）成分は、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して、平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有することが好ましく、平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を９０重量％以上含有すること

がより好ましく、平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有し、平均粒径２０μｍ以下の粉末を９０重量％以上含有することがより好ましく、平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を９０重量％以上含有し、平均粒径２０μｍ以下の粉末を９０重量％以上含有することがより好ましい。平均粒径１～３μｍの粉末が４０重量％を下回るとスクリーン印刷した際のパターン表面の外観（平坦）性が確保できない場合がある。

[0037] また（Ｂ）成分は、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有することが好ましく、平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を８０重量％超含有することがより好ましい。４０重量％を下回ると熱伝導率が４Ｗ／ｍ・Ｋを下回り充分な熱対策が実現できない場合がある。

なお、本発明において、平均粒径３～４μｍの粉末は、平均粒径１～３μｍの粉末に含まれてもよい。

[0038] （Ｂ）成分は、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径２０μｍ超の粉末を０～４０重量％含んでいてもよい。平均粒径２０μｍ超の粉末を含む場合、（Ｂ）成分は、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径２０μｍ超の粉末を２～３５重量％含むことが好ましく、５～３０重量％含むことがより好ましく、１０～２５重量％含むことがさらに好ましい。当該数値範囲である場合、熱伝導率をより一層高くすることができる。

[0039] （Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂（液状化合物）

前記組成物は、さらに（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂を含有し、（Ｃ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものであることが好ましい。

[0040] 前記液状樹脂を選定することで、無機充填剤を多量に含有させることが可能となる。前記液状樹脂の２５℃における粘度は特に限定されないが、１００Ｐａ・ｓ以下が好ましく、９５Ｐａ・ｓ以下がより好ましく、９０Ｐａ・ｓ以下がさらに好ましく、８５Ｐａ・ｓ以下がさらにより好ましく、８０Ｐ

ａ・ｓ以下が特に好ましい。１００Ｐａ・ｓを超えると組成物の各成分を均一に混錬することが困難になる場合がある。

粘度は、例えばウベローデ粘度計等の毛細管粘度法を用いて測定することができる。

[0041] 前記液状樹脂の種類としては、アクリル樹脂、ポリイソプレン、ポリブタジエン、脂肪酸エステル、多塩基酸エステル等を挙げることができる。

[0042] アクリル樹脂は、例えば両末端に反応性基を有するものであればよく、テレケリックポリアクリレート（カネカ製、ＳＡ１００Ｓ、ＳＡ１１０Ｓ、ＳＡ１２０Ｓ、ＳＡ３１０Ｓ）等を用いてもよい。

別のアクリル樹脂は、例えば官能基を有さないアクリル樹脂であってもよく、東亜合成株式会社製のＡＲＵＦＯＮ（登録商標）シリーズのアクリル樹脂（例えば、ＵＰ－１０００、ＵＰ－１０１０、ＵＰ－１０２０、ＵＰ－１０２１、ＵＰ－１０６１、ＵＰ－１０８０、ＵＰ－１１１０、ＵＰ－１１７０、ＵＰ－１１７２、ＵＰ－１１９０、ＵＰ－１５００）等を用いてもよい。

[0043] 脂肪酸エステルは、前記（Ａ）成分に挙げたもののうち、融点及び重量減少の一方又は両方を満たさないものであってもよい。

[0044] 多塩基酸エステルは、１つ以上のカルボキシル基がエステル化された化合物であればよく、例えば置換されていてもよいグルタル酸エステル、置換されていてもよいピロメリット酸エステル、置換されていてもよいアジピン酸等を挙げることができる。置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基等の炭素数１～２０の直鎖アルキル基；イソプロピル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基等の炭素数１～２０の分岐鎖アルキル基等が挙げられる。市販されている多塩基酸エステルは、オクチル基が置換したピロメリット酸エステル（ＤＩＣ株式会社製のＷ－７０１０等）であってもよい。

[0045] 特に有機溶媒で溶解した際に適切な粘度を得られる点、及び容易に入手可

能な点、印刷性の点で、少なくとも１種以上のアクリル樹脂を含有することが好ましい。

また（Ｃ）成分は、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満であることが好ましく、９．８％以下であることがより好ましく、９．６％以下であることがさらに好ましく、９．４％以下であることがさらにより好ましく、９．２％以下であることが特に好ましく、９．０％以下であることが最も好ましい。重量減少の下限は、例えば０．１％、０．２％、又は０．３％である。重量減少は、後述する通りに測定することができる。１０％を超えると組成物に充分な耐熱性を発現させることが難しい場合がある。

[0046] （Ｃ）成分は、熱伝導性樹脂組成物１００重量％に対して、好ましくは０～４０重量％、より好ましくは１～３８重量％、さらに好ましくは３～３６重量％、さらにより好ましくは５～３４重量％含む。印刷性の向上の観点から、（Ｃ）成分を添加することが好ましい。４０重量％超である場合、熱伝導率向上が見込めない虞がある。

[0047] （Ｂ）成分１００重量部に対する｛（Ａ）成分＋（Ｃ）成分｝の総量は、例えば１～１５０重量部であり、好ましくは２～１３０重量部であり、より好ましくは３～１００重量部であり、さらに好ましくは４～７０重量部であり、さらにより好ましくは５～５０重量部であり、特に好ましくは１０～３０重量部である。｛（Ａ）成分＋（Ｃ）成分｝の総量が少ない場合、組成物の各成分を均一に混練することが困難になる傾向があり、多い場合、熱伝導率が低くなる傾向がある。

[0048] （Ｄ）成分：その他成分

上記（Ａ）～（Ｃ）成分のほかに、必要に応じて（Ａ）成分および（Ｃ）成分以外の樹脂、熱老化防止剤、可塑剤、増量剤、チクソ性付与剤、接着性付与剤、脱水剤、カップリング剤、難燃剤、充填剤、溶剤等を添加することができる。

本発明の熱伝導性樹脂組成物の各成分を均一に混錬させる方法は、特に限

定されない。あらかじめ室温で成分を混錬させたのち常温で攪拌混錬することも、加熱ロール、ニーダー、押出機等により溶融混錬することもできる。混錬温度としては樹脂の熱老化が起こらない温度であれば特に限定されず、１００℃以下であることが好ましい。

本発明の熱伝導性樹脂組成物をスクリーン印刷する際の有機溶媒は、印刷したのち１００℃以下での乾燥時に揮発するものであれば特に限定されず、ドデカン、テトラデカン等の炭化水素系溶媒を使用することができる。有機溶媒量としてはスクリーン印刷した際にパターン間に滲みが起こらない量であれば特に限定されず、組成物１００重量％に対して１０重量％以下であることが好ましい。

[0049] 本発明の熱伝導性樹脂組成物の熱伝導率（２５℃）は、例えば０．５Ｗ／ｍ・Ｋ以上であり、好ましくは１．０Ｗ／ｍ・Ｋ以上、より好ましくは１．５Ｗ／ｍ・Ｋ以上、さらに好ましくは３．０Ｗ／ｍ・Ｋ以上、さらにより好ましくは４．０Ｗ／ｍ・Ｋ以上である。熱伝導率の上限は、例えば３０Ｗ／ｍ・Ｋであり、好ましくは２０Ｗ／ｍ・Ｋである。熱伝導率は、例えばホットディスク法熱物性測定装置（京都電子工業株式会社製ＴＰＡ－５０１）により測定することができる。

[0050] 本発明の熱伝導性樹脂組成物は、熱により相転移、軟化して基材に密着し、熱抵抗が小さくなり、充分な放熱性を発現できる点で、ＴＩＭ、特に半導体モジュールのＴＩＭに好適である。

[0051] 本願は、２０１５年７月２日に出願された日本国特許出願第２０１５－１３３９４３号に基づく優先権の利益を主張するものである。２０１５年７月２日に出願された日本国特許出願第２０１５－１３３９４３号の明細書の全内容が、本願に参考のため援用される。

実施例

[0052] 本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。

[0053] ＜重量減少測定＞

本実施例に示す樹脂の重量減少は以下に示す条件で測定した。

（Ａ）成分や（Ｃ）成分の樹脂（２ｇ）をシャーレ（直径４５ｍｍ）に入れて、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の樹脂の重量減少を測定した。

[0054] （Ａ）成分として、脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）、脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６）、脂肪酸アミド（日本化成株式会社製ダイヤミッド　Ｏ－２００）、鎖式飽和炭化水素（ヘキサコサン、ドトリアコンタン）を、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の樹脂の重量減少を測定した。結果を表１に示す。

[0055]

[表1]

	脂肪酸エステル (H-476D)	脂肪酸エステル (H-476)	脂肪酸アミド (O-200)	鎖式飽和炭化水素 (ヘキサコサン)	鎖式飽和炭化水素 (ドトリアコンタン)
融点（℃）	53	62	75	56	69
重量減少（%）	9.4	8.8	8.1	51.4	34.3

[0056] 鎖式飽和炭化水素（ヘキサコサン、ドトリアコンタン）は融点が４０～１００℃であるが、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％を超え、本発明の熱伝導性樹脂組成物の一成分には適さない。

[0057] （Ｃ）成分として、アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）、アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）、アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１１７２）、多塩基酸エステル（ＤＩＣ株式会社製モノサイザー　Ｗ－７０１０）、鎖式飽和炭化水素（ヘキサデカン）を、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の樹脂の重量減少を測定した。結果を表２に示す。

[0058]

[表2]

	アクリル樹脂 (SA120S)	アクリル樹脂 (UP-1080)	アクリル樹脂 (UP-1172)	多塩基酸エステル (W-7010)	鎖式飽和炭化水素 (ヘキサデカン)
粘度（Pa・s）	70	5	22	0.45	0.003
重量減少（%）	0.7	7.8	7.9	0.5	100

[0059] 鎖式飽和炭化水素（ヘキサデカン）は２５℃における粘度が１００Ｐａ・

ｓ以下であるが、１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％を超え、本発明の熱伝導性樹脂組成物の一成分には適さない。

[0060] ＜熱伝導率測定＞

本実施例に示す熱伝導率は以下に示す分析装置、条件で測定した。

得られた組成物（試験片の大きさ１０×１０×３ｍｍ）を、ホットディスク法熱物性測定装置（京都電子工業株式会社製ＴＰＡ－５０１）を用いて熱伝導率を測定した。

[0061] ＜印刷性、外観（平坦）性試験＞

得られた組成物をドデカン（組成物１００重量％に対して４重量％）で溶解し、スクリーン印刷機（ニューロング精密工業株式会社製ＨＰ－３２０）を用いて印刷（版の材質　ＳＵＳ、版の厚み　０．２ｍｍ）したのち、１００℃にて５分間乾燥し、印刷性、外観（平坦）性を評価した。

[0062] 印刷性評価指標：

組成物が印刷面に供給されやすい：○

組成物が印刷面にやや供給されやすい：△

組成物が印刷面に供給されにくい：×

[0063] 外観（平坦）性評価指標：

パターン表面の起伏が小さい：○

パターン表面の起伏がやや小さい：△

パターン表面の起伏が大きい：×

[0064] （実施例１）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　５０．０重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　５０．０重量部

上記成分を１００℃にて加熱溶融させたのち混錬し、均一な組成物を得た。

[0065]（実施例２）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　２．３重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　８４．７重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

多塩基酸エステル（ＤＩＣ株式会社製モノサイザー　Ｗ－７０１０）　１３．０重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0066]（実施例３）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　５．６重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製、ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　１６．７重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００８７、球状、平均粒径（Ｄ５０）９μｍ）　１６．７重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　１６．７重量部

窒化ホウ素（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製　ＰＴ－１１０　鱗片状、平均粒径（Ｄ５０）４５μｍ）　１２．５重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　２２．２重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　９．７重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0067]（実施例４）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　２．３重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　７２．７重量部

窒化ホウ素（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製　ＰＴ－１１０　鱗片状、平均粒径（Ｄ５０）４５μｍ）　１１．６重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　９．３重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　４．１重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0068]（実施例５）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　１．７重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　２９．５重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００８７、球状、平均粒径（Ｄ５０）９μｍ）　２９．５重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均

粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　２９．５重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　６．８重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　３．０重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0069]（実施例６）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　２．３重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　８４．７重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　９．０重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　４．０重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0070]（実施例７）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　１．７重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　４４．３重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００８７、球状、平均粒径（Ｄ５０）９μｍ）　２２．２重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均

粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　２２．２重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　６．８重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　３．０重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0071]（実施例８）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　１．２重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　３３．６重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ１０Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）１０μｍ）　１６．８重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　１６．８重量部

炭化ケイ素（信濃電気製錬株式会社製　ＧＰ＃３２０、破砕状、平均粒径（Ｄ５０）４０μｍ）　２１．６重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１１７２）　１０．１重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0072]（実施例９）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　１．２重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　３７．６重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ１０Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）１０μｍ）　１１．３重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ２０Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２０μｍ）　２６．３重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　Ｐ０１００、鱗片状、平均粒径（Ｄ５０）１５μｍ）　１．９重量部

炭化ケイ素（信濃電気製錬株式会社製　ＧＰ＃３２０、破砕状、平均粒径（Ｄ５０）４０μｍ）　１２．１重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１１７２）　７．４重量部

多塩基酸エステル（ＤＩＣ株式会社製モノサイザー　Ｗ－７０１０）　２．３重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0073]（実施例１０）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６Ｄ）　１．３重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　２８．７重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ１０Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）１０μｍ）　２１．５重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ２０Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２０μｍ）　２１．５重量部

窒化ホウ素（デンカ株式会社製　ＳＧＰ、鱗片状、平均粒径（Ｄ５０）１８

μｍ）　１６．２重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１１７２）　１０．８重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0074]（実施例１１）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸エステル（日油株式会社製ユニスター　Ｈ－４７６）　１．６重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　４４．４重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００８７、球状、平均粒径（Ｄ５０）９μｍ）　２２．２重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　２２．２重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　６．７重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　２．９重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0075]（実施例１２）

（Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂

脂肪酸アミド（日本化成株式会社製ダイヤミッド　Ｏ－２００）　２．６重量部

（Ｂ）成分：無機充填剤

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　ＴＦＨ－Ａ０２Ｐ、球状、平均粒径（Ｄ５０）２μｍ）　１６．９重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００８７、球状、平均

粒径（Ｄ５０）９μｍ）　２５．３重量部

アルミニウム（東洋アルミニウム株式会社製　１３－００９０、球状、平均粒径（Ｄ５０）１４μｍ）　４２．２重量部

（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂

アクリル樹脂（株式会社カネカ製ＸＭＡＰ　ＳＡ１２０Ｓ）　７．８重量部

アクリル樹脂（東亞合成株式会社製ＡＲＵＦＯＮ　ＵＰ－１０８０）　５．２重量部

上記成分を実施例１と同様の方法で組成物を作製した。

[0076] 実施例１～１２で製造した組成物の各種特性を測定した。結果を表３に示す。

[0077]

[表3]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
(A)成分	脂肪酸エステル(H-476D)融点53℃、重量減少9.4%	50.0	2.3	5.6	2.3	1.7	2.3	1.7	1.2	1.2	1.3		
	脂肪酸エステル(H-476)融点62℃、重量減少8.8%											1.6	
	脂肪酸アミド(O-200)融点75℃、重量減少8.1%												2.6
(C)成分	アクリル樹脂(SA120S)粘度70Pa・s、重量減少0.7%			22.2	9.3	6.8	9.0	6.8				6.7	7.8
	アクリル樹脂(UP-1080)粘度5Pa・s、重量減少7.8%			9.7	4.1	3.0	4.0	3.0				2.9	5.2
	アクリル樹脂(UP-1172)粘度22Pa・s、重量減少7.9%								10.1	7.4	10.8		
	多塩基酸エステル(W-7010)粘度0.45Pa・s、重量減少0.5%		13.0							2.3			
(B)成分	アルミニウム(TFH-A02P、球状、D50 2μm)	50.0	84.7	16.7	72.7	29.5	84.7	44.3	33.6	37.6	28.7	44.4	16.9
	アルミニウム(13-0087、球状、D50 9μm)			16.7		29.5		22.2				22.2	25.3
	アルミニウム(TFH-A10P、球状、D50 10μm)								16.8	11.3	21.5		
	アルミニウム(13-0090、球状、D50 14μm)			16.7		29.5		22.2	16.8			22.2	42.2
	アルミニウム(TFH-A20P、球状、D50 20μm)									26.3	21.5		
	アルミニウム(P0100、鱗片状、D50 15μm)									1.9			
	窒化ホウ素(SGP、鱗片状、D50 18μm)										16.2		
	窒化ホウ素(PT-110、鱗片状、D50 45μm)			12.5	11.6								
	炭化ケイ素(GP#320、破砕状、D50 40μm)								21.6	12.1			
組成物100重量%に対する(B)成分量(重量%)		50.0	84.7	62.5	84.3	88.5	84.7	88.7	88.8	89.2	87.9	88.8	84.4
(B)成分100重量%に対する球状粉末量(重量%)		100.0	100.0	80.0	86.2	100.0	100.0	100.0	75.7	84.3	81.6	100	100
(B)成分100重量%に対する鱗片状粉末量(重量%)		0.0	0.0	20.0	13.8	0.0	0.0	0.0	0.0	2.1	18.4	0.0	0.0
(B)成分100重量%に対する破砕状粉末量(重量%)		0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	24.3	13.6	0.0	0.0	0.0
(B)成分100重量%に対する平均粒径1～3μm粉末量(重量%)		100.0	100.0	26.7	86.2	33.3	100.0	49.9	37.8	42.2	32.7	50.0	20.0
(B)成分100重量%に対する平均粒径4～20μm粉末量(重量%)		0.0	0.0	53.4	0.0	66.7	0.0	50.1	37.8	44.3	67.3	50.0	80.0
(B)成分100重量%に対する平均粒径20μm超粉末量(重量%)		0.0	0.0	20.0	13.8	0.0	0.0	0.0	24.3	13.6	0.0	0.0	0.0
(B)成分100重量部に対する(A)+(C)成分量(重量部)		100	18.0	60.0	18.6	13.0	18.0	12.9	12.8	12.3	13.8	12.6	18.5
熱伝導率(W/m・K)		0.8	2.6	1.2	3.5	4.3	2.5	4.2	4.0	5.4	4.8	4.1	3.1
印刷性		△	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
外観(平坦)性		○	○	△	△	△	○	○	△	△	△	○	△

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）成分：融点が４０～１００℃である樹脂および（Ｂ）成分：無機充填剤を含有し、（Ａ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものであることを特徴とする熱伝導性樹脂組成物。

[請求項2] （Ａ）成分が、官能基を有する炭素数１～１００の脂肪族炭化水素化合物である請求項１に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項3] （Ａ）成分が、炭素数１～１００の脂肪酸エステル又はアミドを含む請求項１又は２に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項4] （Ｂ）成分が、金属、金属酸化物、金属窒化物、及び金属炭化物からなる群より選択される１種以上を含む請求項１～３のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項5] （Ｂ）成分が、球状、鱗片状、又は破砕状である請求項１～４のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項6] さらに（Ｃ）成分：２５℃における粘度が１００Ｐａ・ｓ以下である液状樹脂を含有し、（Ｃ）成分が１５０℃にて１００時間大気下で保存した際の重量減少が１０％未満のものである請求項１～５のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項7] （Ｃ）成分がアクリル樹脂又は多塩基酸エステルを含有する請求項１～６のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項8] （Ｂ）成分を熱伝導性樹脂組成物１００重量％に対して５０～９０重量％含有する請求項１～７のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項9] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して球状粉末を５０重量％以上含有するものである請求項１～８のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項10] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して球状粉末を９０重量％以上含有するものである請求項１～９のいずれか１項に

記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項11] （Ｂ）成分が平均粒径５０μｍ以下の粉末である請求項１～１０のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項12] （Ｂ）成分が平均粒径２０μｍ以下の粉末である請求項１１に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項13] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有するものである請求項１～１２のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項14] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径１～３μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を９０重量％以上含有するものである請求項１～１３のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項15] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有するものである請求項１～１４のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項16] （Ｂ）成分が、（Ｂ）成分の合計量１００重量％に対して平均粒径４～２０μｍの粉末を４０重量％以上含有し、球状粉末を８０重量％超含有するものである請求項１～１５のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項17] 請求項１～１６のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物を含有するＴＩＭ。

[請求項18] 請求項１～１６のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物を含有する半導体モジュール用ＴＩＭ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/069368

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08K13/02(2006.01)i, *C08K3/00*(2006.01)i, *C08K5/10*(2006.01)i, *C08K5/20*(2006.01)i, *C08K7/00*(2006.01)i, *C08L101/00*(2006.01)i, *C09K5/06*(2006.01)i, *H01L23/36*(2006.01)i, *H01L23/373*(2006.01)i
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08K13/02, C08K3/00-3/40, C08K5/10-5/12, C08K5/20, C08L1/00-101/16, C09K5/02-5/14, H01L23/36, H01L23/373

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2016 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2008-214535 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 September 2008 (18.09.2008), claims; paragraphs [0010] to [0016], [0027] to [0028] (Family: none)	1,4,5,8-18 2,3,6,7
X A	JP 2004-161885 A (Idemitsu Technofine Co., Ltd., Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 10 June 2004 (10.06.2004), entire text (Family: none)	1,2,4,5,8-18 3,6,7
A	JP 3-101154 A (Toshiba Corp.), 25 April 1991 (25.04.1991), & US 5057457 A & EP 417787 A2 & DE 69029630 D & DE 69029630 T & KR 10-1994-0008334 B	1-18

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
26 August 2016 (26.08.16)	13 September 2016 (13.09.16)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/069368

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 7-157750 A (Mitsubishi Cable Industries, Ltd.), 20 June 1995 (20.06.1995), (Family: none)	1-18
A	JP 5-59352 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 09 March 1993 (09.03.1993), & EP 481564 A2 & DE 69107007 C & DE 69107007 D	1-18
A	JP 2002-234952 A (Fuji Polymer Industries Co., Ltd.), 23 August 2002 (23.08.2002), (Family: none)	1-18
A	JP 2013-189625 A (Nippon Steel & Sumikin Chemical Co., Ltd.), 26 September 2013 (26.09.2013), & CN 103254569 A & KR 10-2013-0094243 A & TW 201335260 A	1-18
A	JP 2010-195960 A (JSR Corp.), 09 September 2010 (09.09.2010), (Family: none)	1-18
A	JP 2006-312708 A (Polymatech Co., Ltd.), 16 November 2006 (16.11.2006), (Family: none)	1-18

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０６９３６８

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08K13/02(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08K5/20(2006.01)i, C08K7/00(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C09K5/06(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08K13/02, C08K3/00－3/40, C08K5/10－5/12, C08K5/20, C08L1/00－101/16, C09K5/02－5/14, H01L23/36, H01L23/373

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X A	JP 2008-214535 A (出光興産株式会社) 2008.09.18, 特許請求の範囲, [0010]-[0016],[0027]-[0028] (ファミリーなし)	1,4,5,8-18 2,3,6,7
X A	JP 2004-161885 A (出光テクノファイン株式会社, 出光興産株式会社) 2004.06.10, 全文 (ファミリーなし)	1,2,4,5,8-18 3,6,7
A	JP 3-101154 A (株式会社東芝) 1991.04.25 & US 5057457 A & EP 417787 A2 & DE 69029630 D & DE 69029630 T & KR 10-1994-0008334 B	1-18

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
２６．０８．２０１６	１３．０９．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　９５５３
内田　靖恵
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 7-157750 A（三菱電線工業株式会社）1995.06.20 （ファミリーなし）	1-18
A	JP 5-59352 A（松下電工株式会社）1993.03.09 & EP 481564 A2 & DE 69107007 C & DE 69107007 D	1-18
A	JP 2002-234952 A（富士高分子工業株式会社）2002.08.23 （ファミリーなし）	1-18
A	JP 2013-189625 A（新日鉄住金化学株式会社）2013.09.26 & CN 103254569 A & KR 10-2013-0094243 A & TW 201335260 A	1-18
A	JP 2010-195960 A（ＪＳＲ株式会社）2010.09.09 （ファミリーなし）	1-18
A	JP 2006-312708 A（ポリマテック株式会社）2006.11.16 （ファミリーなし）	1-18