

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-306718

(P2005-306718A)

(43) 公開日 平成17年11月4日(2005.11.4)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
CO1F 7/02	CO1F 7/02 E	4G076
CO8K 7/18	CO8K 7/18	4J002
CO8K 9/04	CO8K 9/04	5E315
CO8L 101/00	CO8L 101/00	5E322
HO1L 23/373	HO5K 1/03 61OR	5F036
	審査請求 未請求 請求項の数 38 OL	(全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2005-2299 (P2005-2299)	(71) 出願人	000002004 昭和電工株式会社 東京都港区芝大門1丁目13番9号
(22) 出願日	平成17年1月7日(2005.1.7)	(74) 代理人	100081086 弁理士 大家 邦久
(31) 優先権主張番号	特願2004-3377 (P2004-3377)	(74) 代理人	100117732 弁理士 小澤 信彦
(32) 優先日	平成16年1月8日(2004.1.8)	(74) 代理人	100121050 弁理士 林 篤史
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(72) 発明者	都築 宏 富山県富山市西宮町3番1号 昭和タイト ニウム株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願2004-85269 (P2004-85269)	(72) 発明者	小古井 久雄 富山県富山市西宮町3番1号 昭和タイト ニウム株式会社内
(32) 優先日	平成16年3月23日(2004.3.23)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 無機質粉体、およびこれを充填した樹脂組成物とその用途

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 電気絶縁性と放熱性能が要求される電子部品の回路基板において、熱伝導性を有し放熱部材として用いることが可能で、かつ、薄膜状絶縁性組成物成膜時であっても高耐電圧特性を有する樹脂組成物を提供すること、および、樹脂組成物に放熱性能を向上させ得るほど高充填でき、かつ、耐電圧特性の優れた薄膜状絶縁性樹脂組成物を調整することのできる、放熱部材用フィラーとして有用な熱伝導性無機質粉体を提供する。

【解決手段】 多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも0.2~2μmと2~63μmの粒度域に頻度ピークを有する粉体である無機質粉体、好ましくは、最大粒子径が63μm以下で、平均粒子径が4~30μmの範囲にあり、最頻径が2~35μmの範囲にある無機質粉体。

【選択図】 なし

- 【特許請求の範囲】
- 【請求項 1】
多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも $0.2 \sim 2 \mu\text{m}$ と $2 \sim 63 \mu\text{m}$ の粒度域に頻度ピークを有する粉体である無機質粉体。
- 【請求項 2】
最大粒子径が $63 \mu\text{m}$ 以下で、平均粒子径が $4 \sim 30 \mu\text{m}$ の範囲にあり、最頻径が $2 \sim 35 \mu\text{m}$ の範囲にある請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 3】
粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0 \sim 20$ 質量%で、粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の最頻径が $0.25 \sim 1.5 \mu\text{m}$ の範囲にある請求項 1 に記載の無機質粉体。 10
- 【請求項 4】
粒子径が $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44 \sim 90$ 質量%である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 5】
粒度域 $2 \sim 8 \mu\text{m}$ の粒子の割合が $0 \sim 15$ 質量%である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 6】
粒度域 $2 \sim 8 \mu\text{m}$ の粒子の割合が $32 \sim 45$ 質量%である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 7】
球形度が $0.68 \sim 0.95$ で、球状化率が $0.63 \sim 0.95$ である請求項 1 に記載の無機質粉体。 20
- 【請求項 8】
粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子の球形度が $0.5 \sim 0.95$ 、球状化率が $0 \sim 0.9$ である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 9】
粒子径が $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子の球形度が $0.7 \sim 0.95$ 、球状化率が $0.7 \sim 0.95$ である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 10】
無機質粉体の熱伝導性が、単結晶時において $30 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 11】 30
無機質粉体がアルミナ粉体である請求項 1 乃至 10 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 12】
アルミナ結晶相分率が $30 \sim 75$ 質量%の範囲にある請求項 11 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 13】
 $2 \mu\text{m}$ 未満の粒子のアルミナ結晶相分率が、 $90 \sim 100$ 質量%の範囲にある請求項 11 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 14】
 $8 \mu\text{m}$ 以上の粒子のアルミナ結晶相分率が、 $30 \sim 70$ 質量%の範囲にある請求項 11 に記載の無機質粉体。 40
- 【請求項 15】
金属 Al の含有量が、 0.05 質量%以下である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 16】
硫酸イオンの含有量が、 15 ppm 以下である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 17】
塩素イオンの含有量が、 15 ppm 以下である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 18】
 Fe_2O_3 の含有量が、 0.03 質量%以下である請求項 1 に記載の無機質粉体。
- 【請求項 19】
 50 nm 未満の粒子を実質的に含有していない請求項 1 に記載の無機質粉体。 50

【請求項 20】

シラン系カップリング剤及びチタネート系カップリング剤から選択される表面処理剤によって表面疎水化処理されている請求項 1 記載の無機質粉体。

【請求項 21】

請求項 1 乃至 20 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体が充填されている樹脂組成物。

【請求項 22】

無機質粉体が 50 ~ 90 質量% 充填されている請求項 21 に記載の樹脂組成物。

【請求項 23】

樹脂組成物が、膜厚 40 ~ 90 μm の薄膜状絶縁性樹脂組成物とした場合に、JIS C 2110 に規定された絶縁破壊電圧試験によって測定される絶縁破壊強度が 39 kV / mm 以上である請求項 21 または 22 に記載の樹脂組成物。 10

【請求項 24】

請求項 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した自動車搭載用回路基板。

【請求項 25】

請求項 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器搭載用回路基板。

【請求項 26】

請求項 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器内部設置型の放熱部材。 20

【請求項 27】

請求項 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子部品用の放熱部材。

【請求項 28】

シート状である請求項 26 または 27 に記載の放熱部材。

【請求項 29】

ペースト状またはゲル状である請求項 26 または 27 に記載の放熱部材。

【請求項 30】

アンダーフィル剤型の部材である請求項 26 または 27 に記載の放熱部材。

【請求項 31】

素子部の発熱箇所に塗布するタイプの放熱部材である請求項 26 または 27 に記載の放熱部材。 30

【請求項 32】

請求項 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物が、絶縁接着層を兼ねた放熱用部材として使用されている金属ベース回路基板、メタルコア型回路基板、またはそれら基板を用いた構造体。

【請求項 33】

請求項 26 乃至 31 のいずれか 1 項に記載の放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体。

【請求項 34】

請求項 26 乃至 31 のいずれか 1 項に記載の放熱部材が使用されている LED 回路基板。 40

【請求項 35】

請求項 32 または 34 に記載の回路基板、または請求項 32 または 33 に記載の構造体を使用した自動車。

【請求項 36】

請求項 32 または 34 に記載の回路基板、または請求項 32 または 33 に記載の構造体を使用した電気製品。

【請求項 37】

請求項 32 または 34 に記載の回路基板、または請求項 32 または 33 に記載の構造体 50

を使用した信号照明機。

【請求項38】

請求項32または34に記載の回路基板、または請求項32または33に記載の構造体を使用したディスプレイ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気絶縁性と放熱性能が要求される電子部品の回路基板等の用途において、放熱部材として有用な熱伝導性を有する樹脂組成物とその用途、および樹脂成分に熱伝導性フィラーとして充填される高熱伝導性を有する無機質粉体に関するものである。

10

【背景技術】

【0002】

近年、半導体素子等の電子部品を搭載した回路基板は、家電製品や自動車の電装用等様々な分野での電子制御装置に用いられているが、装置小型化への急速な進展に伴い回路基板への高集積化と高機能化要求が益々高まっている。その結果、回路上等で局所的に発生する発熱量は増大傾向にある。発熱、蓄熱は回路等の耐久性に対し悪影響を及ぼすため、回路基板には電気絶縁性等の電氣的信頼性に加え、より高い放熱性能が要求され、現在、回路基板本体や封止材、および絶縁接着層等の部材に至るまで、放熱性能の改良と伝熱・放熱方法の検討がなされている。

【0003】

20

放熱方法は、熱伝導性が高い金属製フィンや放熱板と、回路基板等を接して組み付けることで熱を伝達、放散させる方法が一般的である。しかし、両者の接点部で通電、短絡が発生すると回路が破壊されるため、両者間には電気絶縁性が高い公知の有機重合体組成物等からなる樹脂組成物層を挟み絶縁することが一般的である。しかし、有機重合体組成物のみでは一般的に熱伝導率が低く、放熱部材としての性能は低い。

【0004】

有機重合体組成物等からなる樹脂材料に熱伝導性を付加する方法としては、従来から高熱伝導性を有する無機質粉体を熱伝導性フィラーとして充填する技術が知られている。なお、無機質粉体は難燃性、電気絶縁性等の機能を付加するフィラーにもなる。ここで、特に球状の無機質粉体は充填性および流動性の点で優れることから、回路基板の放熱部材、半導体封止材の充填材料として既に多く実用されている。例えば、熱伝導率が高い球状酸化アルミニウム粉体は放熱フィラーとして使用され、球状シリカ粉体はその高い純度から半導体封止剤フィラーとして使用されている。

30

【0005】

球状無機質粉体を得る方法の例としては、原料となる無機質粉体、またはそのスラリーを高温火炎中に導入して熔融状態にし、表面張力により球状化する技術が知られている（例えば、特許文献1；特開2001-19425号公報）。あるいは、原料として金属が用いられることもあり、この場合には金属の高温酸化と熔融球状化が同時並行に起きることになる（例えば、特許文献2；特開平5-193908号公報）。

【0006】

40

球状状態が良好な、いわゆる高球形度の球状無機質粉体は、高充填性や、流動性の指標である樹脂コンパウンドに充填した時の粘度（以降、樹脂コンパウンド粘度と称する。）が低いため、空隙等の樹脂欠陥発生の可能性が少ない。この点が強みとなり、高価であっても樹脂コンパウンドの放熱性能向上が期待できるフィラーとして重用される。ところが、比較的安価な、低球形度あるいは破碎粉のように角がある無機質粉体は、樹脂コンパウンド粘度が比較的高くなり、特にコンパウンドが熱硬化、高粘度化する際の流動不良が著しく樹脂欠陥が発生し易い。樹脂欠陥が多く存在すると電氣的信頼性、耐電圧特性の指標となる絶縁破壊電圧に対する強度（以下、絶縁破壊強度と称する。）が低下する傾向があった。

【0007】

50

また、無機質粉体は一般的に表面が親水性であるため、コンパウンドとなるエポキシ樹脂に代表される有機重合体組成物やシリコン重合体組成物との親和性が低く、特に球状無機質粉体は表面が平滑であるため結合性、接着性が弱いため、界面破壊が生じ易く絶縁破壊強度は低下し易い。このような場合においても、シラン系カップリング剤等で粉体を表面処理し疎水化することで、樹脂成分との接着性を向上させる技術が一般的に知られている。(例えば、特許文献3；特開平5-335446号公報、特許文献4；特開2001-240771号公報、非特許文献1；日本ユニカー株式会社製NUCシランカップリング剤カタログ)

【0008】

回路基板の放熱部材に用いられる樹脂組成物には、有機重合組成物等が本来有する柔軟性、耐電圧特性を維持しつつ、高放熱性能を有することが求められる。高放熱性能を得るために熱伝導性の高い無機質粉体を高充填すると、界面破壊や樹脂欠陥の発生による耐電圧特性の低下、柔軟性低下につながることから、従来技術では流動性が良く(すなわち、樹脂コンパウンド粘度が低く)、高充填性を有する、高価な高球形度の球状無機質粉体を選択され重用されている。更に、分級・混合処理による特殊な粒度分布や粒子性状への制御、表面処理等の追加加工による接着性等の改善を実施した上で使用する技術が知られている(例えば、特許文献5；特開2001-139725号公報、特許文献6；特開2003-137627号公報)。

10

【0009】

すなわち、従来技術では、比較的低コストで入手、製造できる破碎粉や低球形度の粉体等、流動性が比較的良好くない(すなわち、樹脂コンパウンド粘度が高い)無機質粉体は高充填が難しく、更に樹脂欠陥等の発生により耐電圧特性が著しく低下するため使用することができず、その結果、放熱性能と高耐電圧特性を有する樹脂組成物を得ることはできなかった。

20

【0010】

【特許文献1】特開2001-19425号公報

【特許文献2】特開平5-193908号公報

【特許文献3】特開平5-335446号公報

【特許文献4】特開2001-240771号公報

【特許文献5】特開2001-139725号公報

【特許文献6】特開2003-137627号公報

30

【非特許文献1】日本ユニカー株式会社製NUCシランカップリング剤カタログ

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明では、樹脂材料中に放熱性能を向上させ得るほどに高充填でき、かつ、高耐電圧特性を有する薄膜状絶縁性樹脂組成物(以下、薄膜樹脂シートと称する)の成膜を可能にする熱伝導性無機質粉体を提供し、電気絶縁性と放熱性能が要求される回路基板等の放熱部材として用いることが可能な樹脂組成物を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者らは、上述の状況を鑑みて鋭意研究した結果、ある特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは予め表面疎水化処理が施された、熱伝導性無機質粉体を用いることにより、樹脂コンパウンド粘度が高くなるような低球形度の粉体であるにもかかわらず樹脂材料に高充填でき、高熱伝導性を発現し、かつ、薄膜樹脂シート成膜時において高い絶縁破壊強度が得られることを見出し本発明に至った。

40

【0013】

すなわち、本発明は、以下の各実施態様を含むものである。

1. 多峰性の頻度粒度分布を有し、少なくとも0.2~2 μ mと2~63 μ mの粒度域に頻度ピークを有する粉体である無機質粉体。

2. 最大粒子径が63 μ m以下で、平均粒子径が4~30 μ mの範囲にあり、最頻径が2

50

～ 35 μm の範囲にある前記 1 に記載の無機質粉体。

3 . 粒子径が 2 μm 未満の粒子の割合が 0 ~ 20 質量% で、粒子径が 2 μm 未満の粒子の最頻径が 0 . 25 ~ 1 . 5 μm の範囲にある前記 1 に記載の無機質粉体。

4 . 粒子径が 8 μm 以上の粒子の割合が 44 ~ 90 質量% である前記 1 に記載の無機質粉体。

5 . 粒度域 2 ~ 8 μm の粒子の割合が 0 ~ 15 質量% である前記 1 に記載の無機質粉体。

6 . 粒度域 2 ~ 8 μm の粒子の割合が 32 ~ 45 質量% である前記 1 に記載の無機質粉体。

7 . 球形度が 0 . 68 ~ 0 . 95 で、球状化率が 0 . 63 ~ 0 . 95 である前記 1 に記載の無機質粉体。

8 . 粒子径が 2 μm 未満の粒子の球形度が 0 . 5 ~ 0 . 95、球状化率が 0 ~ 0 . 9 である前記 1 に記載の無機質粉体。 10

9 . 粒子径が 8 μm 以上の粒子の球形度が 0 . 7 ~ 0 . 95、球状化率が 0 . 7 ~ 0 . 95 である前記 1 に記載の無機質粉体。

10 . 無機質粉体の熱伝導性が、単結晶時において 30 W / m · K 以上である前記 1 に記載の無機質粉体。

11 . 無機質粉体がアルミナ粉体である前記 1 乃至 10 に記載の無機質粉体。

12 . アルミナ結晶相分率が 30 ~ 75 質量% の範囲にある前記 11 に記載の無機質粉体。

13 . 2 μm 未満の粒子のアルミナ結晶相分率が、90 ~ 100 質量% の範囲にある前記 11 に記載の無機質粉体。 20

14 . 8 μm 以上の粒子のアルミナ結晶相分率が、30 ~ 70 質量% の範囲にある前記 11 に記載の無機質粉体。

15 . 金属 Al の含有量が、0 . 05 質量% 以下である前記 1 に記載の無機質粉体。

16 . 硫酸イオンの含有量が、15 ppm 以下である前記 1 に記載の無機質粉体。

17 . 塩素イオンの含有量が、15 ppm 以下である前記 1 に記載の無機質粉体。

18 . Fe_2O_3 の含有量が、0 . 03 質量% 以下である前記 1 に記載の無機質粉体。

19 . 50 nm 未満の粒子を実質的に含有していない前記 1 に記載の無機質粉体。

20 . シラン系カップリング剤及びチタネート系カップリング剤から選択される表面処理剤によって表面疎水化処理されている前記 1 に記載の無機質粉体。

21 . 前記 1 乃至 20 のいずれか 1 項に記載の無機質粉体が充填されている樹脂組成物。 30

22 . 無機質粉体が 50 ~ 90 質量% 充填されている前記 21 に記載の樹脂組成物。

23 . 樹脂組成物が、膜厚 40 ~ 90 μm の薄膜状絶縁性樹脂組成物とした場合に、JIS C 2110 に規定された絶縁破壊電圧試験によって測定される絶縁破壊強度が 39 kV / mm 以上である前記 21 または 22 に記載の樹脂組成物。

24 . 前記 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した自動車搭載用回路基板。

25 . 前記 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器搭載用回路基板。

26 . 前記 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子機器内部設置型の放熱部材。 40

27 . 前記 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物を使用した電子部品用の放熱部材。

28 . シート状である前記 26 または 27 に記載の放熱部材。

29 . ペースト状またはゲル状である前記 26 または 27 に記載の放熱部材。

30 . アンダーフィル剤型の部材である前記 26 または 27 に記載の放熱部材。

31 . 素子部の発熱箇所に塗布するタイプの放熱部材である前記 26 または 27 に記載の放熱部材。

32 . 前記 21 乃至 23 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物が、絶縁接着層を兼ねた放熱用部材として使用されている金属ベース回路基板、メタルコア型回路基板、またはそれら基板を用いた構造体。 50

33. 前記26乃至31のいずれか1項に記載の放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体。

34. 前記26乃至31のいずれか1項に記載の放熱部材が使用されているLED回路基板。

35. 前記32または34に記載の回路基板、または前記32または33に記載の構造体を使用した自動車。

36. 前記32または34に記載の回路基板、または前記32または33に記載の構造体を使用した電気製品。

37. 前記32または34に記載の回路基板、または前記32または33に記載の構造体を使用した信号照明機。

38. 前記32または34に記載の回路基板、または前記32または33に記載の構造体を使用したディスプレイ。

10

【発明の効果】

【0014】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、球形度・球状化率が低い場合においても、樹脂材料中に高密度で充填可能であるため、樹脂組成物の放熱性能・絶縁破壊強度を向上させることが可能である。

さらに、本発明の好ましい実施態様における無機質粉体を使用した樹脂薄膜シートは、高耐電圧特性が得られるため、熱伝導性、放熱特性、耐電圧特性に優れた樹脂組成物、樹脂薄膜シート、およびそれらを放熱部材として用いた回路基板および構造体を提供することが可能になる。

20

すなわち本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、好ましくは一定範囲内の不純物濃度に制御され、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂材料中に高充填できるという長所を有し、この無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、かつ、厚さ40~90 μ mの薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

【0015】

従って、本発明の好ましい実施態様における樹脂組成物を使用すれば、放熱特性および耐電圧特性に優れた自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材が得られる。この場合、当該電子部品用の放熱部材は、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよい。

30

また、本発明の好ましい実施態様における樹脂組成物を使用すれば、絶縁接着層等を兼ねた放熱用部材として、金属ベース回路基板、メタルコア型回路基板、およびそれらの構造体などに使用した場合においても優れた機能性を発揮する。

【0016】

さらに、本発明の好ましい実施態様における無機質粉体を充填した樹脂組成物を、ペースト状またはゲル状にし、LED等に見られる発熱性素子部を有する電子部品の放熱用封止材や放熱用アンダーフィル剤等として応用することにより、例えば自動車搭載型の室内照明用LED回路基板、メーター照明用LED回路基板およびそれらの構造体、その他パーソナルコンピュータ、DVD、カラープリンタ等の電子機器、TV等の家庭用電子機器、PDA、携帯電話等の移動型電子機器、屋外設置用途の大型フルカラーディスプレイ機材、信号照明機器、家庭照明機器、光通信機器、医療・計測機器用途に用いられるLED回路基板およびそれらの構造体などに使用した場合においても、熱伝導性、絶縁性の面で優れた機能性を発揮する。特に、LED素子を高密度集積した高輝度LED基板の放熱・冷却用途に適用すれば、優れた機能性を発揮するため、面発光標識で有用に使用できる。このように、本発明における放熱部材は、LED基板の輝度向上に貢献する。

40

【0017】

これらの放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体を形成することも可能であり、様々な電子機器類の高性能化

50

に貢献可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

以下、本発明の実施態様について詳細に説明する。

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、特定の粒度分布を有することにより、樹脂材料中への高充填が可能となる。

【0019】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、最大粒子径が $63\mu\text{m}$ 以下、かつ、平均粒子径が $4\sim 30\mu\text{m}$ であることが好ましく、より好ましくは $4\sim 16\mu\text{m}$ の範囲であり、最頻径が $2\sim 35\mu\text{m}$ が好ましく、より好ましくは $7\sim 20\mu\text{m}$ の範囲にあり、頻度粒度分布において多峰性（すなわち、2以上のピークを有する）粉体であることが好ましい。すなわち、頻度粒度分布において少なくとも $0.2\sim 2\mu\text{m}$ と $2\sim 63\mu\text{m}$ の粒度域にそれぞれピークを持つ多峰性を有していることが好ましい。球形度は $0.68\sim 0.95$ が好ましいが、より好ましくは $0.68\sim 0.80$ であり、かつ、球状化率は $0.63\sim 0.95$ が好適であって、より好ましくは $0.63\sim 0.77$ である。

10

多峰性とすることで、粗大粒子の空隙に微粒子がより多く滑り込み、最密充填が加速されると考えられ、さらに前記の様な粒度域に頻度ピークを有することで、最密充填が促進される。

【0020】

$0.2\sim 2\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分としては、無機質粉体を 100 質量%とした時、粒子径が $2\mu\text{m}$ 未満の粒子の割合が $0\sim 25$ 質量%であることが好ましく、より好ましくは $0\sim 11$ 質量%もしくは $13\sim 25$ 質量%で、最頻径が $0.25\sim 1.5\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。球形度は $0.5\sim 0.95$ が好適であって、より好ましくは $0.8\sim 0.85$ であり、球状化率は $0\sim 0.9$ が好適であって、より好ましくは $0\sim 0.5$ である。

20

【0021】

$2\sim 63\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子成分の特徴としては、粒子径が $8\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が $44\sim 90$ 質量%が好ましく、より好ましくは $48\sim 86$ 質量%である。球形度は $0.7\sim 0.95$ が好ましく、より好ましくは $0.7\sim 0.8$ 、更に好ましくは $0.7\sim 0.78$ であり、球状化率は $0.7\sim 0.9$ が好ましく、より好ましくは $0.7\sim 0.75$ である。

30

【0022】

更に $2\sim 8\mu\text{m}$ の粒度域に含まれる粒子の割合は $0\sim 15$ 質量%もしくは $32\sim 45$ 質量%が好ましく、より好ましくは $4\sim 15$ 質量%もしくは $34\sim 45$ 質量%である。

無機質粉体をこのような粒度分布となる様に混合等することにより、粉体の球形度が低くても、充填度の高い無機質粉体とすることが可能である。

【0023】

無機質粉体の例としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、結晶性シリカ、マグネシア、窒化ホウ素、窒化ケイ素、ベリリア、炭化ケイ素、炭化ホウ素、炭化チタン、ダイヤモンド等が使用可能であるが、好ましくは、熱伝導性（熱伝導率）および絶縁性（体積固有抵抗値）を両立する無機質粉体を使用する。特に好ましくは、単結晶の場合における熱伝導率が $30\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ 以上で、体積固有抵抗値 $1\times 10^{14}\cdot\text{cm}$ 以上である無機質粉体を使用する。

40

例えば、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、マグネシア、窒化ホウ素、ベリリア等が特に好ましい無機質粉体として採用可能である。

【0024】

なお、耐湿性や化学的安定性、使用安全性を考慮すると、本発明の無機質粉体としては、酸化アルミニウム、窒化アルミニウムが最も好ましいが、経済性を考慮した場合には酸化アルミニウムが好ましい。無機質粉体は、単体でも混合体でも使用が可能である。

【0025】

50

酸化アルミニウム粉体としては、バイヤー法水酸化アルミニウムを焼結、または電融して得られる酸化アルミニウム粉体を原料として火炎熔融法の球状化工程を経由した球状酸化アルミニウム粉体や、バイヤー法水酸化アルミニウムから製造された低ソーダ微粒酸化アルミニウム粉体、アンモニア明礬熱分解法やアルミニウムアルコキシド加水分解法、アルミニウム水中放電法、あるいは他の方法により製造された高純度微粒酸化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

【0026】

窒化アルミニウム粉体としては、直接窒化法や還元窒化法等の方法により製造された窒化アルミニウム粉体が好ましいが、特にこれらには限定されない。

なお、これらの酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムは、単体でも混合体でも使用可能である。さらに、様々な製造方法で得られた酸化アルミニウムおよび窒化アルミニウムを複数組み合わせることも可能である。

【0027】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、X線回折分析によって測定されるアルミナ結晶相分率が30～75質量%のアルミナ粉体が好ましく、より好ましくは30～67質量%の範囲にあるアルミナ粉体である。

【0028】

更に本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、粒度域2μm未満の粉体のアルミナ結晶相分率が90～100質量%のアルミナ粉体が好ましく、より好ましくは95～99質量%の範囲であり、かつ、粒度域8μm以上の粉体のアルミナ結晶相分率が30～70質量%が好ましく、より好ましくは35～60質量%の範囲であるアルミナ粉体である。

アルミナ結晶化率をこの様な範囲に調整することで、熱伝導度の高い無機質粉体(アルミナ粉体)とすることが可能となる。

【0029】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体の粒度分布は公知の粒度分布測定装置を使用しても求めることができる。例えば、レーザー回折/散乱方式の粒度測定装置を用いることが好ましく、粒度分布測定装置としては、例えばマイクロトラックHRA(日機装(株)社製)やSALD-2000J(株)島津製作所製)で測定することができる。なお、水の屈折率は1.33を用い、例えば無機質粉体が酸化アルミニウム粉体である場合には粉体の屈折率として1.77～1.8の範囲の値を用いるとよい。

【0030】

本発明でいう最大粒子径とは無機質粉体の累積粒度分布において累積値100%粒子径のことであり、平均粒子径とはメジアン径のことであり、無機質粉体の累積粒度分布において累積値50%粒子径のことであり、また、最頻径とは無機質粉体の頻度粒度分布におけるピークのうち最も高い頻度値を示す粒子径のことであり、

【0031】

本発明でいう球形度とは平均球形度を示しており、次の方法にて求めることができる。実体顕微鏡や走査型電子顕微鏡等にて撮影した粒子像を画像解析装置などに取り込み、写真から任意の粒子の投影面積(a)と輪郭周長L(a)を計測し、L(a)と同一の輪郭周長を持つ真円の面積を(b)とした場合、

$$(b) = \pi \times (L(a) / 2)^2$$

と表すことができる。従って、球形度は以下の式で算出することができる。

$$\text{球形度} = (a) / (b) = (a) \times 4 / (L(a))^2$$

このようにして、ある一定個数の粒子の球形度を求め、平均値を平均球形度とすることができるが、この際、200個以上の粒子を使用して算出することが好ましい。

【0032】

なお、上記以外の球形度の測定方法としては、粒子像分析装置、例えば「FPIA-2100」(シスメックス(株)社製)などにて定量的に自動計測された個々の粒子の円形度から、以下の式により換算して球形度を求めることもできる。

10

20

30

40

50

球形度 = (円形度)²

【0033】

本発明でいう球状化率とは、いわゆる球形度分布における球形度1.0の個数頻度割合である。これは前述の粒子像分析装置などで定量的に自動計測された粒子の円形度の個数頻度積算から求めることができる。

【0034】

なお、上記以外に球状化率を求める方法として、走査型電子顕微鏡にて粉体粒子の大きさに合わせた所定倍率(150~1000倍の任意の倍率)で撮影した1視野中において、5μm以上の粒子全個数と未球状粒子個数を計数し、以下の式で算出することもできる。

球形化率 = (全個数 - 未球状粒子個数) / 全個数

なお、未球状粒子の計数方法については、予め用意した判断標本を用い比較する目視法や公知の画像解析装置を用いた計数法等、何れの方法を用いても良い。

【0035】

無機質粉体(アルミナ粉体)におけるアルミナ結晶相分率の測定は特に限定されず、公知の粉末X線回折装置で測定することができ、CuK線によりスリット0.3mm、スキャンスピード1度/分、スキャン範囲2θ = 65~70度の条件でX線回折分析を実施し、得られた2θ = 68.2度のピーク(アルミナ)高さをA、2θ = 67.3度のピーク(中間アルミナ)高さをB、バックグラウンドとして2θ = 69.5度のベースラインの値をCとして、

アルミナ結晶相分率 = (A - C) / ((A - C) + (B - C)) × 100

で求めることができる。

【0036】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体中に含有される金属アルミニウム成分は、濃度が0.05質量%以下が好ましく、より好ましくは0~0.01質量%以下である。粉体中に金属アルミニウム成分が多く含まれる無機質粉体を、例えば絶縁層の放熱フィラーとして使用した場合、高い電圧が加わった際に回路銅箔と基板の間での電流短絡(絶縁破壊)が生じ易くなる可能性が高くなり、回路または装置を破壊する危険性が大きくなるためである。

【0037】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体中に含有される金属アルミニウム成分の濃度測定方法は特に限定されず、公知の無機分析法であればいずれによっても測定できるが、無機質粉体を塩酸によって酸加熱抽出処理した後、ろ液中に含まれる塩酸可溶成分をICP(高周波誘導結合プラズマ)発光分光分析装置にて測定することが好ましい。分析装置は例えばICPS-7500((株)島津製作所製)を用いて測定することができる。

【0038】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、粉体中に含有する硫酸イオンの濃度が15ppm以下であることが好ましく、より好ましくは5ppm以下である。例えば、フィラーとしてシランカップリング剤で表面処理された無機質粉体を使用する場合やシリコン系材料を絶縁樹脂化合物として使用する場合、粉体表面上のシラノール基周辺やシリコン樹脂自体にシロキサン結合が存在するが、粉体中の硫酸イオンの含有濃度が高いほど、その酸成分によってシロキサン結合の分断が助長され、低分子シロキサンのガスが発生し易くなるためである。シロキサン結合の分断によって、樹脂組成物自体の柔軟性低下や粒子との結合界面の強度低下が生じる場合があり、さらに低分子シロキサンは機器内等の高温かつ密閉環境下においては揮散し、部品や接点端子表面等にシリカ結晶として付着再結晶化する場合がある。結果としてこの結晶が電気絶縁物となり接点不良等の問題を引き起こす可能性が高まるため、含有する硫酸イオンはできる限り少ないことが望ましい。

【0039】

10

20

30

40

50

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、粉体中に含有する塩素イオンの濃度が15ppm以下であることが好ましく、より好ましくは10ppm以下である。塩素イオンについても前述の硫酸イオンと同様に、樹脂組成物中にあるシロキサン結合の分断による樹脂特性低下や回路接点不良等を生じる場合があり、そしてその酸成分による絶縁層樹脂の腐食破損の可能性が考えられ、絶縁樹脂化合物および回路基板の信頼性を確保する意味では、含有塩素イオン濃度もできる限り低いことが望ましい。

【0040】

本発明における無機質粉体中に含有する硫酸イオンと塩素イオンの濃度測定方法は特に限定されず、微量無機陰イオン・陽イオン類、有機酸の濃度測定に有効な公知の分離分析法であればいずれによっても測定できるが、無機質粉体を純水による煮沸加熱抽出処理した後、溶液中の水可溶成分をイオンクロマトグラフィーにて測定することが好ましい。分析装置は例えばShodex（昭和電工（株）社製）を用いて測定することができる。

10

【0041】

硫酸イオンと塩素イオンの存在形態は特に限定されず、イオンでない状態で存在するものもあると推測されるが、本発明における硫酸イオンおよび塩素イオンは、無機質粉体の純水による煮沸加熱によって抽出され、イオンクロマトグラフィーによって硫酸イオンあるいは塩素イオンとして検出される成分として定義することが可能である。

【0042】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、粉体中に含有する Fe_2O_3 成分の濃度が0.03質量%以下が好ましく、より好ましくは0.005~0.015質量%である。粉体中に存在する Fe_2O_3 成分の含有濃度が高いほど、前述の金属Alと同様に回路銅箔と基板の間での電流短絡が生じる可能性が高くなることから、回路基板の高信頼性を確保するためにはできるだけ低濃度であることが望ましい。

20

【0043】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体中に含有する Fe_2O_3 成分の濃度測定方法は特に限定されず公知の無機分析法であればいずれによっても測定できるが、無機質粉体試料に燐酸を加えた後、マイクロウェーブ酸分解装置で分解処理した溶液に含まれる成分をICP発光分光分析装置にて測定することが好ましい。分析装置は、金属アルミニウム成分と同様に、例えばICPS-7500（（株）島津製作所製）を用いて測定することができる。

30

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、50nm未満の粒子を実質的に含有しないことが好ましい。50nm未満の微粒子が必要以上に存在すると無機質粉体を充填した際、樹脂コンパウンドの粘度が著しく増粘化するため、充填度の高い無機質粉体としての特性を損なう場合がある。その意味から本発明の好ましい実施態様における無機質粉体には、このような微粒子が含有しないことが好ましい。

【0044】

無機質粉体中に50nm未満の粒子を実質的に含有しないこととは、走査型電子顕微鏡により倍率50,000倍で撮影した任意の100視野以上の写真中において、50nm未満の粒子個数を数え、写真1視野あたりの平均値として換算した値が50個未満程度であることを意味する。50nm未満の粒子はより少ない方が好ましいが、平均粒子数50個以上となると、本発明の効果が急激に失われるということではなく、この程度の個数ならば間違いなく発明の効果が発現されるという値である。

40

【0045】

本発明の好ましい実施態様で用いる無機質粉体はシラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤による表面疎水化処理を実施した粉体であることが好ましく、表面疎水化処理の実施方法としては特に限定されないが、せん断力のある攪拌ミキサー等を用いた乾式法、水系または有機溶剤系等で分散処理する湿式スラリー法、流体ノズルを用いたスプレー法といった公知の方法が挙げられる。

【0046】

なお、これらの表面疎水化処理実施に際しては、攪拌力を伴う方法の場合には粉体の形

50

状破壊等が生じないように注意を払い、攪拌時間等の条件については表面疎水化処理を施す無機質粉体の粒度、シラン系カップリング剤やチタネート系カップリング剤の種類、および粉体の目標特性に応じて適宜決定すれば良い。

【0047】

表面疎水化処理に使用するシラン系カップリング剤については特に限定されないが、例えば - (3, 4 - エポキシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシ系シラン、 - アミノプロピルトリエトキシシラン、 - アミノプロピルトリメトキシシラン、N - (- アミノエチル) - - アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ系シラン、ウレイドプロピルトリエトキシシランが好ましく、これらは単独、あるいは複数で用いることができる。絶縁層等を構成する樹脂成分と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

10

【0048】

チタネート系カップリング剤についても同様に特に限定されないが、例えばテトラ (2, 2 - ジアリロキシメチル - 1 - ブチル) - ビス (ジトリデシル - フォスファイト) チタネート、テトラオクチル - ビス (ジトリデシル - フォスファイト) チタネート、テトライソプロピル - ビス (ジトリデシル - フォスファイト) チタネート、ビス (ジオクチルピロフォスフェート) - オキシアセテートチタネート、イソプロピルトリ (N - アミノエチル・アミノエチル) チタネート、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリ - i - ドデシルベンゼン - スルフォニルチタネート、イソプロピルトリ - n - ドデシルベンゼン - スルフォニルチタネート、イソプロピル - トリ (ジオクチルピロ - ジオクチルピロ - フォスフェート) チタネート、ビス (ジオクチルピロフォスフェート) - エチレンチタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、ジクミルフェニルオキシアセテートチタネート等が好ましく、絶縁層等を構成する樹脂成分と無機質粉体の接着性、分散性を考慮して選定すれば良い。

20

【0049】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体の充填された樹脂組成物のマトリックスとして用いられる有機重合体 (樹脂) の具体例としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、シリコン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレンなどのポリオレフィン、メラミン樹脂、ユリア樹脂、フェノール樹脂、ポリエチレンテレフタレート、不飽和ポリエステルなどのポリエステル、ナイロン6、ナイロン66、アラミドなどのポリアミド、ポリブタジエン、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレンオキサイド、ポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、ビニルアセタール樹脂、ポリアセテート、ABS樹脂、酢酸ビニル樹脂、セルロースおよびレーヨンその他のセルロース誘導体、ポリウレタン、ポリカーボネート、尿素樹脂、フッ素樹脂、ポリフッ化ビニリデン、セルロイド、キチン、澱粉シート、アクリル樹脂、アルキド樹脂等といった公知の樹脂、およびこれらの混合物が好ましいが、特にこれらに限定されない。なお、これらは単独、あるいは複数で用いることも可能である。

30

【0050】

この中で特に、金属板や金属箔と接着力が比較的強く、無機質粉体との親和性が比較的高いエポキシ樹脂やポリイミド樹脂を用いることが好ましい。また、前述の樹脂組成物には、必要に応じて硬化促進剤等を用いることもできる。

40

【0051】

硬化促進剤については、使用する樹脂と反応して硬化させるものであれば特に限定されないが、例えばエポキシ樹脂と反応して硬化させる公知の促進剤としては、フェノール、クレゾール、イミダゾール、キシレノール、レゾルシノール、クロロフェノール、t - ブチルフェノール、ノニルフェノール、イソプロピルフェノール、ビスフェノールAやビスフェノールS等のビスフェノール化合物、無水マレイン酸等の酸無水物等が好ましく、使用する樹脂材料との反応性を考慮して選定すれば良い。

【0052】

本発明における樹脂組成物の混練・充填方法としては、特に限定されないが、遠心式混

50

鍊機、公転自転式混鍊機、ロールミル、バンバリーミキサー、ニーダー等を用いて均一混鍊することが好ましく、脱泡効果を付加した装置を用いて樹脂組成物中の気泡を除去しながら混鍊することがより好ましい。

【0053】

本発明の好ましい実施態様における樹脂組成物の成膜方法は特に制限されるものではないが、ドクターブレード法や、樹脂コンパウンド粘度によっては押出し法、プレス法、カレンダーロール法等を用いることが好ましい。

【0054】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体の流動性を示す指標である樹脂コンパウンド粘度の評価、および粉体を充填し薄膜シートに成形した樹脂組成物の耐電圧特性評価は、実施例に記載する評価方法により行うことができる。

10

【0055】

本発明の好ましい実施態様における無機質粉体は、特定の粒度分布を有し、さらに好ましくは、表面疎水化処理を施した粉体である効果により、球形度が低く樹脂コンパウンド粘度が高くなる粉体であっても樹脂成分中に高充填できるという長所を有する。このような無機質粉体を成分の一つとして用いることで、熱伝導性に優れ、かつ、厚さ40～90μmの薄膜樹脂シート成膜時において、優れた耐電圧特性を示す樹脂組成物が得られる。

【0056】

さらに、本発明の好ましい実施態様における無機粉体を使用した樹脂組成物を使用すれば、公知の方法により自動車搭載用回路基板、電子機器搭載用回路基板、電子機器内部の放熱用部材、電子部品用の放熱部材とすることが可能となる。さらに、当該電子部品用の放熱部材は、絶縁接着層を兼ねることができるシート状部材であってもよく、金属ベース回路基板、またはメタルコア型回路基板、およびそれらの構造体とすることも可能である（例えば、電子技術1985年12月臨時増刊号，39～50頁、サーキットテクノロジー，Vol.5、No.2，96～103頁（1990））。

20

【0057】

また、公知の方法を採用して、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体とすることも可能である。

さらに、本発明の好ましい実施態様における無機質粉体を充填した樹脂組成物をペースト状またはゲル状にし、LED等に見られる発熱性素子部を有する電子部品の放熱用封止材や放熱用アンダーフィル剤として応用することで、LED回路基板およびそれらの構造体とすることも可能である。

30

【0058】

この場合、例えば自動車搭載型の室内照明用LED回路基板、メーター照明用LED回路基板およびそれらの構造体、その他パーソナルコンピュータ、DVD、カラープリンタ等の電子機器、TV等の家庭用電子機器、PDA、携帯電話等の移動型電子機器、屋外設置用途の大型フルカラーディスプレイ機材、信号照明機器、家庭照明機器、光通信機器、医療・計測機器用途に用いられるLED回路基板およびそれらの構造体などに使用すれば、熱伝導性、絶縁性の面で優れた機能性を発揮し、電子機器類の高性能化に有用である。特に、LED素子を高密度集積した高輝度LED基板の放熱・冷却用途に適用すれば、優れた機能性を発揮するため、面発光標識で有効に使用できる。このように、本発明の好ましい実施態様における放熱部材は、LED基板の輝度向上に貢献可能である。

40

【0059】

また、本発明の好ましい実施態様における放熱部材を用いて、発熱性電子部品と放熱金属部材が接着されている放熱金属部材一体型電子部品の構造体を形成することも可能であり、様々な電子機器類の高性能化に貢献可能である。

【実施例】

【0060】

以下、実施例、比較例によって本発明について具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

50

【 0 0 6 1 】

実施例 1 ~ 8 :

シランカップリング剤として - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (A - 1 8 7 ; 日本ユニカー社製) を用いて、予め表面疎水化処理を施した後、粒度分布条件を表 1 の如く調整した酸化アルミニウム粉体 A、B、C、D、E、F、G、H を準備した。

所定条件にて樹脂組成物に混練充填後、ドクターブレード法により、乾燥硬化後の膜厚が約 6 0 μ m 以下になるように成膜した。

所定の乾燥条件にて乾燥硬化した薄膜樹脂シートについて、各々の絶縁破壊強度を測定した。絶縁破壊強度は J I S C 2 1 1 0 に規定された絶縁破壊電圧試験方法に基づき測定した。表 1 に記載の酸化アルミニウム粉体について樹脂コンパウンド粘度評価としてエポキシ樹脂粘度を測定した。 10

表 1 に示した結果の通り、平均球形度が 0 . 8 9 未満の球形度粉体の場合、エポキシ樹脂粘度が 1 0 0 0 ~ 1 4 0 0 P の粘性となり、膜厚 4 5 ~ 5 5 μ m において絶縁破壊強度 6 7 ~ 9 3 k V / m m を得ることができたが (実施例 5 ~ 8)、球形度が 0 . 8 1 未満の低球形度粉体で、エポキシ樹脂粘度が 5 0 0 0 P 以上になるほど粘性が高くなった場合においても、膜厚 4 4 ~ 5 3 μ m において絶縁破壊強度 3 9 ~ 7 8 k V / m m を得ることができた (実施例 1 ~ 4)。

【 0 0 6 2 】

なお、薄膜樹脂シート作成における粉体と樹脂成分の混練・充填条件、成膜・乾燥条件、シート耐電圧測定方法、およびエポキシ樹脂粘度測定方法を以下に示す。 20

【 0 0 6 3 】

(1) 粉体と樹脂成分の混練・充填条件

粉体 : 2 5 g
樹脂 : エポキシ樹脂化合物 1 0 g
硬化剤 : イミダゾール 0 . 1 g

上記混合物を公転自転混和方式脱泡混練器 ((株) シンキー社製 A R - 2 5 0) を用いて、混練時間 5 分、脱泡時間 1 分の条件で混練した。

【 0 0 6 4 】

(2) 成膜・乾燥条件

前記混練スラリーを自動フィルム塗布器 ((有) セプロ社製) とブレードエッジ (7 5 μ m) を用いて、ドクターブレード法にて成膜後、直ちに定温恒温乾燥器にて 4 0 ~ 5 0 で 3 0 以上乾燥後、1 2 0 で 1 5 分、1 8 0 で 3 0 分、の 3 段階に分けて乾燥した。 30

【 0 0 6 5 】

(3) 絶縁破壊強度測定方法

乾燥して得た薄膜樹脂シートを、耐電圧試験器 (菊水電子工業 (株) 製 T O S - 8 8 7 0 A 型) を用い、印加電圧 A C 5 k V で、J I S C 2 1 1 0 に記載の絶縁破壊電圧試験方法に準拠した方法にて測定した。

【 0 0 6 6 】

(4) エポキシ樹脂粘度測定方法 40

粉体 2 5 0 質量部、エポキシ樹脂 (旭化成 (株) 社製エポキシ樹脂 A E R - 2 5 0) 1 0 0 質量部を混練器にて混練し、恒温水槽にて 2 5 に調整した後、B H 型粘度計にて粘度を測定した。

(5) 金属アルミニウム成分の濃度測定

無機質粉体を塩酸によって酸加熱抽出処理した後、ろ液中に含まれる塩酸可溶成分を I C P (高周波誘導結合プラズマ) 発光分光分析装置にて測定した。分析装置は I C P S - 7 5 0 0 ((株) 島津製作所製) を用いた。

(6) 硫酸イオンおよび塩素イオンの濃度測定

無機質粉体を純水による煮沸加熱抽出処理した後、溶液中の水可溶成分をイオンクロマトグラフィーにて測定した。分析装置は S h o d e x (昭和電工 (株) 社製) を用いた。 50

(7) Fe_2O_3 成分の濃度測定

無機質粉体試料に燐酸を加えた後、マイクロウェーブ酸分解装置で分解処理した溶液中に含まれる成分をICP発光分光分析装置にて測定した。分析装置は、金属アルミニウム成分と同様に、ICPS-7500（（株）島津製作所製）を用いて測定した。

【0067】

比較例1～4：

表2に記載の酸化アルミニウム粉体I、J、K、Lを、実施例と同様の手順、条件にて樹脂成分に充填後、薄膜樹脂シートを成膜して絶縁破壊強度を測定すると共に、粉体各々についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表2に示した結果の通り、何れも膜厚47～50 μm で絶縁破壊強度28～32kV/mmであった。 10

【0068】

参考例1：

酸化アルミニウム粉体が非常に高い球形度を有する場合の例として、表3に記載の酸化アルミニウム粉体I（アドマテックス社製、球状酸化アルミニウム「アドマファイン（登録商標）AO-502」を20質量%、「アドマファイン（登録商標）AO-509」を80質量%の割合で混合した粉体）を準備した。

実施例と同様の方法で薄膜樹脂シートを成膜した後、絶縁破壊強度を測定し、粉体についてエポキシ樹脂粘度を測定した。

表3に示した通り、市販されている高球形度の粉体の場合には、エポキシ樹脂粘度は1080Pと低く、膜厚55 μm で絶縁破壊強度39kV/mmが得られることを確認した 20

。【0069】

【 表 1 】

表 1

粉体名	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
8 μ m以上の粒子の割合	52.1	52.1	55.2	55.2	85.5	80.7	76.0	71.2
球形状	0.78	0.78	0.78	0.78	0.89	0.89	0.89	0.89
球形状化率	0.75	0.75	0.75	0.75	0.90	0.90	0.90	0.90
α 7 μ m以上結晶分率	40	40	40	40	55	55	55	55
2 μ m未満の粒子の割合	10.3	5.4	5.3	10.2	9.9	14.9	19.1	23.9
球形状	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70	0.70
球形状化率	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
α 7 μ m以上結晶分率	99	99	99	99	99	99	99	99
2 μ m未満の領域での最頻径	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34	0.34
2~8 μ mの粒子の割合	37.6	42.5	39.5	34.6	4.6	4.4	4.9	4.9
分布の峰数	2	2	2	2	2	2	2	2
最大粒子径	62.2	62.2	62.2	62.2	31.1	31.1	31.1	31.1
平均粒子径	8.2	9.5	9.3	9.2	9.6	9.1	8.6	8.1
最頻径	14.3	14.3	14.3	14.3	11.0	11.0	11.0	11.0
球形状化率(平均)	0.79	0.78	0.78	0.77	0.87	0.88	0.85	0.84
球形状化率(平均)	0.69	0.68	0.72	0.68	0.81	0.81	0.72	0.68
α 7 μ m以上結晶分率	43	44	41	46	59	62	64	66
金属Al濃度	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
SO ₄ ⁻ イオン濃度	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Cl ⁻ イオン濃度	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Fe ₂ O ₃ 濃度	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
シート膜厚	47	48	44	53	45	47	52	55
絶縁破壊強度	45	39	41	78	83	93	80	67
エポキシ樹脂粘度	>5000	>5000	>5000	>5000	1240	1390	1010	1060

【 0 0 7 0 】

10

20

30

40

【表 2】

表 2

粉体名			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	
			I	J	K	L	
8 μm 以上の粒子の	割合	mass%	42.9	42.9	49.0	49.0	
"	球形度	-	0.78	0.78	0.78	0.78	
"	球状化率	-	0.75	0.75	0.75	0.75	
"	α アルミナ結晶分率	mass%	40	40	40	40	
2 μm 未満の粒子の	割合	mass%	20.2	10.5	20.1	0.6	
"	球形度	-	0.70	0.70	0.70	0.95	
"	球状化率	-	0.10	0.10	0.10	0.90	
"	α アルミナ結晶分率	mass%	99	99	99	-	
2 μm 未満の領域での	最頻径	μm	0.34	0.34	0.34	-	
2~8 μm の粒子の	割合	mass%	36.9	46.6	30.9	50.4	
分布の峰数			2	2	2	1	
最大粒子径			μm	62.2	62.2	62.2	62.2
平均粒子径			μm	7.3	7.6	7.9	8.5
最頻径			μm	14.27	14.27	14.27	14.27
球形度(平均)			-	0.78	0.81	0.76	0.81
球状化率(平均)			-	0.62	0.71	0.60	0.78
α アルミナ結晶分率			mass%	49	40	52	34
金属Al濃度			mass%	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
SO ₄ ²⁻ イオン濃度			ppm	<1	<1	<1	<1
Cl ⁻ イオン濃度			ppm	<5	<5	<5	<5
Fe ₂ O ₃ 濃度			mass%	0.01	0.01	0.01	0.01
シート膜厚			μm	50	50	49	47
絶縁破壊強度			kV/mm	28	29	30	32
エポキシ樹脂粘度			P	>5000	4330	>5000	3340

10

20

【 0 0 7 1 】

【表 3】

表 3

粉体名			参考例1	
			M	
8 μm 以上の粒子の	割合	mass%	50.8	
"	球形度	-	0.95	
"	球状化率	-	0.95	
"	α アルミナ結晶分率	mass%	38	
2 μm 未満の粒子の	割合	mass%	33.0	
"	球形度	-	0.95	
"	球状化率	-	0.95	
"	α アルミナ結晶分率	mass%	5	
2 μm 未満の領域での	最頻径	μm	0.34	
2~8 μm の粒子の	割合	mass%	16.2	
分布の峰数			2	
最大粒子径			μm	88.0
平均粒子径			μm	9.1
最頻径			μm	20.17
球形度(平均)			-	0.95
球状化率(平均)			-	0.95
α アルミナ結晶分率			mass%	31
金属Al濃度			mass%	0.18
SO ₄ ²⁻ イオン濃度			ppm	18
Cl ⁻ イオン濃度			ppm	<5
Fe ₂ O ₃ 濃度			mass%	0.09
シート膜厚			μm	55
絶縁破壊強度			kV/mm	39
エポキシ樹脂粘度			P	1020

30

40

50

フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード(参考)
H 0 5 K 1/03	H 0 5 K 1/05	A
H 0 5 K 1/05	H 0 5 K 7/20	D
H 0 5 K 7/20	H 0 1 L 23/36	M

(72)発明者 田中 淳

東京都港区芝大門一丁目13番9号 昭和電工株式会社内

Fターム(参考) 4G076 AA02 BC08 BF06 CA02 CA26 CA36 CA40 FA02
4J002 AB051 AC031 BB021 BB111 BC021 BD031 BD101 CC031 CC181 CC211
CD001 CF061 CG001 CH071 CK021 CL001 CM041 CP031 DE076 DE146
DF016 DJ006 DJ016 FA086 FB096 FB166 FD206 GN00 GQ00 GQ05
5E315 AA01 BB01 BB11 BB18 GG01
5E322 AA11 AB06 EA10 FA05
5F036 AA01 BB08 BB21 BD21