



(21)申請案號：107103331

(22)申請日：中華民國 107 (2018) 年 01 月 30 日

(51)Int. Cl. : C08L101/00 (2006.01)  
 C08J5/18 (2006.01)  
 H01L23/36 (2006.01)

C08K3/38 (2006.01)  
 B32B27/18 (2006.01)

(30)優先權：2017/01/30 日本

2017-014013

(71)申請人：日商積水化學工業股份有限公司(日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)  
日本(72)發明人：川原悠子 KAWAHARA, YUKO (JP)；大鷲圭吾 OOWASHI, KEIGO (JP)；足羽剛  
兎 ASHIBA, KOUJI (JP)；杉本匡隆 SUGIMOTO, MASATAKA (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：9 項 圖式數：3 共 50 頁

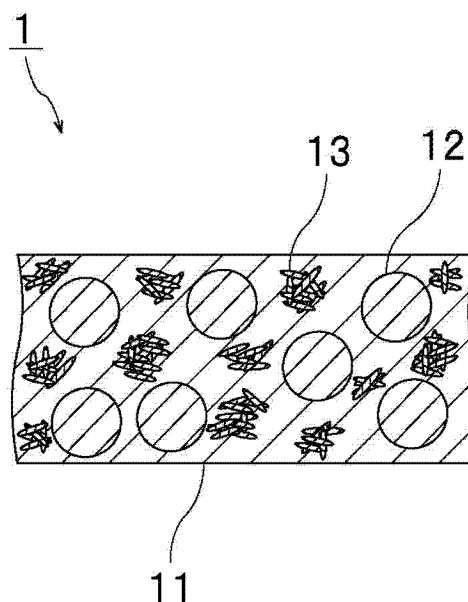
## (54)名稱

樹脂材料及積層體

## (57)摘要

本發明提供一種能夠有效地提高絕緣性與導熱性、進而能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均、進而能夠有效地提高接著性之樹脂材料。本發明之樹脂材料含有第 1 無機粒子、第 2 無機粒子、及黏合劑樹脂，且上述第 1 無機粒子之壓縮 10% 時之壓縮強度相對於上述第 2 無機粒子之壓縮 10% 時之壓縮強度之比為 2.5 以上，上述第 2 無機粒子之壓縮 10% 時之壓縮強度為  $1.5 \text{ N/mm}^2$  以下，構成上述第 2 無機粒子之一次粒子之縱橫比為 7 以下。

指定代表圖：



符號簡單說明：

1 . . . 樹脂片材(樹脂材料)

11 . . . 黏合劑樹脂

12 . . . 第 1 無機粒子

13 . . . 第 2 無機粒子

【圖1】

## 【發明說明書】

### 【中文發明名稱】

樹脂材料及積層體

### 【技術領域】

本發明係關於一種含有無機粒子與黏合劑樹脂之樹脂材料。又，本發明係關於一種使用上述樹脂材料之積層體。

### 【先前技術】

近年來，正進行電子及電氣設備之小型化及高性能化，電子零件之安裝密度變高。因此，於狹窄之空間中如何將電子零件產生之熱散出成為問題。電子零件產生之熱直接關係到電子及電氣設備之可靠性，因此所產生之熱之有效率之放散成為緊急之課題。

作為解決上述課題之一方法，可列舉安裝功率半導體裝置等之散熱基板使用具有較高之導熱性之陶瓷基板之方法。作為此種陶瓷基板，可列舉氧化鋁基板及氮化鋁基板等。

然而，於上述使用陶瓷基板之方法中，存在如下課題：多層化較困難，加工性較差，成本非常高。進而，由於上述陶瓷基板與銅電路之線膨脹係數之差較大，因此亦存在於冷熱循環時銅電路容易剝落之課題。

因此，使用線膨脹係數較低之氮化硼、尤其是六方晶氮化硼之樹脂組合物作為散熱材料而受到關注。六方晶氮化硼之結晶結構係類似於石墨之六角網狀之層狀結構，六方晶氮化硼之粒子形狀為鱗片狀。因此，已知六方晶氮化硼具有面方向之導熱率高於厚度方向之導熱率且導熱率具有異向性之性質。

作為降低六方晶氮化硼之導熱率之異向性、提高厚度方向之導熱率

之方法，提出有使用使六方晶氮化硼之一次粒子凝集而成之二次凝集粒子(氮化硼凝集粒子)。下述之專利文獻1~3中揭示有使用氮化硼凝集粒子之樹脂組合物。

下述之專利文獻1中揭示有於熱硬化性樹脂中含有無機填充材之熱硬化性樹脂組合物。上述無機填充材以40：60~98：2之體積比含有包含平均長徑為8 μm以下之氮化硼之一次粒子之二次凝集體(A)、與包含平均長徑超過8 μm且為20 μm以下之氮化硼之一次粒子之二次凝集體(B)。上述無機填充材之含量為40體積%以上且80體積%以下。

下述之專利文獻2中揭示有含有具有不同之壓縮破壞強度之2種填料(其中上述2種填料為同一物質之情形除外)與硬化性樹脂(C)之硬化性散熱組合物。上述2種填料之壓縮破壞強度比(壓縮破壞強度較大之填料(A)之壓縮破壞強度/壓縮破壞強度較小之填料(B)之壓縮破壞強度)為5以上且1500以下。上述填料(B)為六方晶氮化硼凝集粒。

下述之專利文獻3中揭示有含有熱硬化性樹脂及無機填充劑之熱硬化性樹脂組合物。上述無機填充劑含有由具有10以上且20以下之縱橫比之氮化硼的一次粒子形成之二次粒子(A)、與由具有2以上且9以下之縱橫比之氮化硼的一次粒子形成之二次粒子(B)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻1]日本專利特開2011-6586號公報

[專利文獻2]WO2013/145961A1

[專利文獻3]WO2014/199650A1

**【發明內容】**

### [發明所欲解決之問題]

於如專利文獻1~3所記載之使用先前之氮化硼凝集粒子之硬化性組合物中，為了維持氮化硼凝集粒子之導熱率之等向性，於片材成形等之加壓時，需要避免加壓導致氮化硼凝集粒子崩解等。因此，存在氮化硼凝集粒子間殘存空隙之情況。結果，雖然可提高厚度方向之導熱性，但存在絕緣性降低之情況。

又，於使用先前之氮化硼凝集粒子之硬化性組合物中，若為了消除氮化硼凝集粒子間之空隙而進行片材成形等之加壓，則存在氮化硼凝集粒子變形或崩解而失去氮化硼凝集粒子之導熱性之等向性的情況。結果存在加壓方向(厚度方向)之導熱率降低之情況。於使用先前之氮化硼凝集粒子之硬化性組合物中，同時實現較高之絕緣性與較高之導熱性存在限度。

又，於使用先前之氮化硼凝集粒子之硬化性組合物中，難以將氮化硼凝集粒子間之空隙完全消除，而存在絕緣破壞強度產生不均之情況。

又，於使用先前之氮化硼凝集粒子之硬化性組合物中，於氮化硼凝集粒子間容易形成空隙，而存在於被接著體附近形成空隙，由此導致接著性降低之情況。

本發明之目的在於提供一種能夠有效地提高絕緣性與導熱性、進而能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均、進而能夠有效地提高接著性之樹脂材料。又，本發明之目的在於提供一種使用上述樹脂材料之積層體。

### [解決問題之技術手段]

根據本發明之較廣態樣，提供一種樹脂材料，其含有第1無機粒子、第2無機粒子、及黏合劑樹脂，且上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比為2.5以上，上述

第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為 $1.5 \text{ N/mm}^2$ 以下，構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述第2無機粒子之空隙率為35%以上。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度超過 $2 \text{ N/mm}^2$ ，上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度超過 $4 \text{ N/mm}^2$ ，上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度超過 $4.2 \text{ N/mm}^2$ ，上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度為 $3 \text{ N/mm}^2$ 以下，上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度為 $5 \text{ N/mm}^2$ 以下。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述第2無機粒子之粒徑為 $10 \mu\text{m}$ 以上且 $50 \mu\text{m}$ 以下。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度與上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之差的絕對值為 $1 \text{ N/mm}^2$ 以上。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述第1無機粒子與上述第2無機粒子分別為氮化硼凝集粒子。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，於樹脂材料100體積%中，上述第1無機粒子與上述第2無機粒子之合計含量為20體積%以上且80體積%以下。

於本發明之樹脂材料之某特定態樣中，上述樹脂材料為樹脂片材。

根據本發明之較廣態樣，提供一種積層體，其具備導熱體、積層於上述導熱體之一表面之絕緣層、及積層於上述絕緣層之與上述導熱體為相反側之表面之導電層，且上述絕緣層之材料為上述樹脂材料。

### [發明之效果]

本發明之樹脂材料含有第1無機粒子、第2無機粒子、及黏合劑樹脂。於本發明之樹脂材料中，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比為2.5以上。於本發明之樹脂材料中，上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下。於本發明之樹脂材料中，構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下。於本發明之樹脂材料中，由於具備上述構成，因此能夠有效地提高絕緣性與導熱性，進而能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均，進而能夠有效地提高接著性。

### 【圖式簡單說明】

圖1係模式性地表示本發明之一實施形態之樹脂片材的剖視圖。

圖2係模式性地表示使用本發明之一實施形態之樹脂材料所獲得之積層體之剖視圖。

圖3係表示本發明之細孔容積差與細孔徑之關係之一例的圖。

### 【實施方式】

以下，對本發明進行詳細說明。

#### (樹脂材料)

本發明之樹脂材料含有第1無機粒子、第2無機粒子、及黏合劑樹脂。

於本發明之樹脂材料中，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比為2.5以上。

於本發明之樹脂材料中，上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下。於本發明之樹脂材料中，構成上述第2無機粒子之一

次粒子之縱橫比為7以下。

於本發明之樹脂材料中，由於具備上述構成，因此能夠有效地提高絕緣性與導熱性，進而能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均，進而能夠有效地提高接著性。

於藉由加壓等對本發明之樹脂材料賦予壓縮力之情形時，例如上述第1無機粒子不會過度地變形或崩解，上述第2無機粒子會適度地變形或崩解。因此，可藉由經適度地變形或崩解之上述第2無機粒子填埋存在於上述第1無機粒子間之空隙，而能夠有效地提高絕緣性。進而，可藉由上述第1無機粒子控制經適度地變形或崩解之上述第2無機粒子之配向，而能夠有效地提高導熱性。又，由於上述第1無機粒子未過度地變形或崩解，因此能夠有效地提高導熱性。

上述第1無機粒子之壓縮強度(硬度)與上述第2無機粒子之壓縮強度(硬度)相比相對較高。上述第2無機粒子之壓縮強度(硬度)與上述第1無機粒子之壓縮強度(硬度)相比相對較低。因此，於藉由加壓等賦予壓縮力之情形時，例如，上述第1無機粒子不會過度地變形或崩解，上述第2無機粒子會適度地變形或崩解。又，使上述第2無機粒子產生變形或崩解之加壓壓力低於使上述第1無機粒子產生變形或崩解之加壓壓力。

例如，氮化硼粒子等作為具有較高之導熱性之無機粒子而為人所知。若使用含有較脆之無機粒子之樹脂材料，藉由片材成形等進行加壓，則加壓導致無機粒子變形或崩解，無機粒子沿面方向進行配向。若無機粒子沿面方向進行配向，則能夠提高面方向之導熱性，但無法提高厚度方向(加壓方向)之導熱性。若使用含有較硬之無機粒子之樹脂材料，並藉由片材成形等進行加壓，則無機粒子不易因加壓而變形或崩解，能夠提高面方

向及厚度方向之導熱性，但於無機粒子間會殘存空隙，絕緣性變差。

於本發明之樹脂材料中，使用壓縮強度不同之2種無機粒子，第1無機粒子較硬，第2無機粒子較脆，因此若藉由加壓等賦予壓縮力，則第2無機粒子會於第1無機粒子之周圍適度地變形或崩解。又，壓縮後之第2無機粒子可填埋存在於第1無機粒子間之空隙，而能夠有效地提高絕緣性。進而，藉由上述第1無機粒子，可控制經適度地變形或崩解之上述第2無機粒子之配向。結果不僅於面方向，而且於厚度方向亦能夠有效地提高導熱性。

又，於本發明之樹脂材料中，由於構成第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下，故而壓縮後之第2無機粒子及構成第2無機粒子之一次粒子會適度地變形或崩解，因此能夠無間隙地填埋存在於第1無機粒子間之空隙。因產生空隙，導致存在產生局部放電(內部放電)，絕緣破壞強度降低之情況。於本發明之樹脂材料中，由於具備上述構成，因此能夠抑制局部放電(內部放電)之產生，能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均。藉由上述第2無機粒子充分脆，而能夠有效地提高絕緣性，能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均。又，藉由上述第2無機粒子充分脆，而能夠無間隙地填埋存在於第1無機粒子間之空隙，因此能夠有效地提高長期絕緣可靠性。

又，於本發明之樹脂材料中，若藉由加壓等賦予壓縮力，則壓縮後之第2無機粒子及構成第2無機粒子之一次粒子會適度地變形或崩解，因此能夠填埋存在於無機粒子間之空隙，而能夠有效地抑制空隙之形成。進而，由於亦可有效地抑制被接著體附近之空隙之形成，因此能夠有效地提高與被接著體之間之接著性。又，由於構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比相對較小，於構成上述第2無機粒子之一次粒子之短邊方向官能

基相對較多地存在，因此能夠有效地提高接著性。又，由於上述第1無機粒子之壓縮強度(硬度)相對較高，亦不易引起伴隨剝離之粒子之崩解，因此能夠有效地提高接著性。

為了獲得此種效果，使用滿足特定之壓縮強度及特定之縱橫比之關係之第1無機粒子及第2無機粒子大有助益。

(第1無機粒子及第2無機粒子)

於本發明之樹脂材料中，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比(第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度)為2.5以上。就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述比(第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度)較佳為2.7以上。上述比之上限並無特別限定。上述比(第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度)可為15以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度之比(第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度)較佳為2以上，更佳為2.5以上。上述比之上限並無特別限定。上述比(第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度)可為10以下。

上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度之比(第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度)較佳為1.1以上，更佳為1.5以上。上述比之上限並無特別限定。上述比(第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度/

第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度)可為8以下。若上述比(第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度)為上述下限以上及上述上限以下，則能夠更有效地提高絕緣性與導熱性。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度較佳為超過2 N/mm<sup>2</sup>，更佳為2.3 N/mm<sup>2</sup>以上。上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之上限並無特別限定。上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度可為8 N/mm<sup>2</sup>以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度較佳為超過4 N/mm<sup>2</sup>，更佳為4.2 N/mm<sup>2</sup>以上。上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度之上限並無特別限定。上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度可為10 N/mm<sup>2</sup>以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度較佳為超過4.2 N/mm<sup>2</sup>，更佳為4.4 N/mm<sup>2</sup>以上。上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度之上限並無特別限定。上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度可為12 N/mm<sup>2</sup>以下。

於本發明之樹脂材料中，上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下。就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度較佳為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為1.2 N/mm<sup>2</sup>以下。上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之下限並無特別限定。上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度可為0.1 N/mm<sup>2</sup>以上。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度較佳為3 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為2 N/mm<sup>2</sup>以下。上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度之下限並無特別限定。上述第2無機粒

子之壓縮20%時之壓縮強度可為0.5 N/mm<sup>2</sup>以上。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度較佳為5 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為3 N/mm<sup>2</sup>以下。上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度之下限並無特別限定。上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度可為1 N/mm<sup>2</sup>以上。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度與上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之差的絕對值較佳為1 N/mm<sup>2</sup>以上，更佳為1.4 N/mm<sup>2</sup>以上，且較佳為8 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為5 N/mm<sup>2</sup>以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度與上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度之差的絕對值較佳為2 N/mm<sup>2</sup>以上，更佳為2.5 N/mm<sup>2</sup>以上，且較佳為10 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為7 N/mm<sup>2</sup>以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度與上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度之差的絕對值較佳為1 N/mm<sup>2</sup>以上，更佳為1.5 N/mm<sup>2</sup>以上，且較佳為10 N/mm<sup>2</sup>以下，更佳為7 N/mm<sup>2</sup>以下。

上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之各壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度可以如下方式進行測定。

使用微小壓縮試驗機，以金剛石製之角柱作為壓縮構件，使該壓縮構件之平滑端面朝向無機粒子落下而將無機粒子壓縮。作為測定結果，可獲得壓縮荷重值與壓縮位移之關係，對於壓縮荷重值，使用利用無機粒子之粒徑算出之平均剖面面積算出每單位面積之壓縮荷重值，以此作為壓縮

強度。又，根據壓縮位移與無機粒子之粒徑，算出壓縮率，而獲得壓縮強度與壓縮率之關係。使用顯微鏡觀察所測定之無機粒子，選出具有粒徑 $\pm 10\%$ 之粒徑之無機粒子進行測定。又，各壓縮率下之壓縮強度係作為將20次測定結果進行平均所獲得之平均壓縮強度而算出。作為上述微小壓縮試驗機，例如使用Fischer Instruments公司製造之「微小壓縮試驗機HM2000」等。又，壓縮率可藉由(壓縮率 = 壓縮位移 $\div$ 平均粒徑 $\times 100$ )而算出。

上述壓縮強度可使用調配於樹脂材料中之前之無機粒子進行測定，亦可從樹脂材料中去除黏合劑樹脂，使用回收之無機粒子進行測定。作為從樹脂材料中去除黏合劑樹脂之方法，可列舉於 $600^{\circ}\text{C}$ 之高溫下將樹脂材料加熱處理5小時之方法等。從樹脂材料中去除黏合劑樹脂之方法可為上述方法，亦可為其他方法。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之空隙率較佳為 $10\%$ 以上，更佳為 $14\%$ 以上，且較佳為 $60\%$ 以下，更佳為 $50\%$ 以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之空隙率較佳為 $35\%$ 以上，更佳為 $39\%$ 以上，且較佳為 $60\%$ 以下，更佳為 $55\%$ 以下。

上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之空隙率可以如下方式進行測定。再者，上述空隙率亦包括於無機粒子中填充有黏合劑樹脂之部分。

上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之空隙率係使用水銀測孔儀，藉由汞滲法測定細孔容積分佈，於所獲得之結果中，以具有細孔徑超過 $0\ \mu\text{m}$ 且為 $5\ \mu\text{m}$ 以下之細孔徑之細孔的體積之和作為無機粒子內之空隙，基

於該值而算出之值。又，於細孔容積差與細孔徑之關係中(參照圖3)，於本發明所使用之無機粒子中，由於在5  $\mu\text{m}$ 附近細孔容積有一次接近0，因此認為5  $\mu\text{m}$ 以下之細孔徑表示無機粒子內部之細孔。因此，將具有超過0  $\mu\text{m}$ 且為5  $\mu\text{m}$ 以下之細孔徑之細孔的體積之和作為用以算出空隙率之基準。另一方面，關於超過5  $\mu\text{m}$ 之細孔徑，認為其表示無機粒子間之細孔。其與無機粒子之剖面資料亦不矛盾。

上述空隙率可使用調配於樹脂材料中之前之無機粒子進行測定，亦可從樹脂材料中去除黏合劑樹脂，使用回收之無機粒子進行測定。作為從樹脂材料中去除黏合劑樹脂之方法，可列舉於600 $^{\circ}\text{C}$ 之高溫下將樹脂材料加熱處理5小時之方法等。從樹脂材料中去除黏合劑樹脂之方法可為上述方法，亦可為其他方法。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之粒徑較佳為20  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為25  $\mu\text{m}$ 以上，且較佳為120  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為100  $\mu\text{m}$ 以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之粒徑較佳為10  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為20  $\mu\text{m}$ 以上，且較佳為50  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為45  $\mu\text{m}$ 以下。

上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之粒徑較佳為將以體積基準計之粒徑進行平均而獲得之平均粒徑。上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之粒徑可使用堀場製作所公司製造之「雷射繞射式粒度分佈測定裝置」進行測定。上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之粒徑較佳為採集3 g之各無機粒子，將其中所含之各無機粒子之粒徑進行平均而算出。關於平均粒徑之算出方法，於第1無機粒子及第2無機粒子之各粒子中，較佳為採用累

積體積為50%時之無機粒子之粒徑(d50)作為平均粒徑。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之縱橫比較佳為3以下，更佳為2以下。上述第1無機粒子之縱橫比之下限並無特別限定。上述第1無機粒子之縱橫比可為1以上。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之縱橫比較佳為3以下，更佳為2以下。上述第2無機粒子之縱橫比之下限並無特別限定。上述第2無機粒子之縱橫比可為1以上。

第1無機粒子及第2無機粒子之縱橫比表示長徑/短徑。第1無機粒子及第2無機粒子之縱橫比較佳為將複數個各無機粒子之縱橫比進行平均而獲得之平均縱橫比。第1無機粒子及第2無機粒子之平均縱橫比可藉由利用電子顯微鏡或光學顯微鏡觀察任意地選擇之50個各無機粒子，算出各無機粒子之長徑/短徑之平均值而求出。

就更有效地提高導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子之導熱率較佳為5 W/m · K以上，更佳為10 W/m · K以上。上述第1無機粒子之導熱率之上限並無特別限定。上述第1無機粒子之導熱率可為1000 W/m · K以下。

就更有效地提高導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子之導熱率較佳為5 W/m · K以上，更佳為10 W/m · K以上。上述第2無機粒子之導熱率之上限並無特別限定。上述第2無機粒子之導熱率可為1000 W/m · K以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，於樹脂材料100體積%中，上述第1無機粒子與上述第2無機粒子之合計含量較佳為20體積%以上，更佳為45體積%以上，且較佳為80體積%以下，更佳為70體積%以

下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子較佳為氮化硼凝集粒子，上述第2無機粒子較佳為氮化硼凝集粒子。上述氮化硼凝集粒子較佳為使氮化硼之一次粒子凝集而成之二次粒子。上述第1無機粒子之一次粒子較佳為氮化硼，上述第2無機粒子之一次粒子較佳為氮化硼。

作為上述氮化硼凝集粒子之製造方法，並無特別限定，可列舉噴霧乾燥方法及流動層造粒方法等。氮化硼凝集粒子之製造方法較佳為噴霧乾燥(spray-dry)方法。噴霧乾燥方法可根據噴霧方式而分類為二流體噴嘴方式、圓盤方式(亦稱為旋轉方式)、及超音波噴嘴方式等，可應用該等方式中之任一種。就可更容易地控制總細孔容積之觀點而言，較佳為超音波噴嘴方式。

上述氮化硼凝集粒子較佳為以氮化硼之一次粒子作為材料而製造。作為成為氮化硼凝集粒子之材料之氮化硼，並無特別限定，可列舉：六方晶氮化硼、立方晶氮化硼、硼化合物與氨之藉由還原氮化法所製作之氮化硼、由硼化合物與三聚氰胺等含氮化合物製作之氮化硼、及由硼氫化鈉與氯化銨製作之氮化硼等。就更有效地提高氮化硼凝集粒子之導熱性之觀點而言，成為氮化硼凝集粒子之材料之氮化硼較佳為六方晶氮化硼。

又，作為氮化硼凝集粒子之製造方法，未必需要造粒步驟。可為藉由氮化硼之一次粒子伴隨氮化硼之結晶生長而自然集結所形成之氮化硼凝集粒子。又，為了使氮化硼凝集粒子之粒徑一致，亦可為經粉碎之氮化硼凝集粒子。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第1無機粒子可包

含上述壓縮強度為上述範圍且粒徑不同之2種以上之無機粒子。就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述第2無機粒子可包含上述壓縮強度為上述範圍、構成無機粒子之一次粒子之縱橫比為下文所述之範圍、且粒徑不同之2種以上之無機粒子。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述樹脂材料中除了上述第1無機粒子及上述第2無機粒子以外，可含有並非上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之第3無機粒子。就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，上述樹脂材料較佳為含有上述第3無機粒子。

上述第3無機粒子較佳為凝集粒子。上述第3無機粒子較佳為使氮化硼之一次粒子凝集而成之二次粒子。

構成第1無機粒子及第2無機粒子之一次粒子：

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，構成上述第1無機粒子之一次粒子之平均長徑較佳為2  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為3  $\mu\text{m}$ 以上，且較佳為20  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為16  $\mu\text{m}$ 以下。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點、及更有效地抑制絕緣破壞強度之不均之觀點而言，構成上述第2無機粒子之一次粒子之平均長徑較佳為3  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為4  $\mu\text{m}$ 以上，且較佳為15  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為10  $\mu\text{m}$ 以下。

構成上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之一次粒子之平均長徑可以如下方式算出。

對從將構成上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之一次粒子與熱硬化性樹脂等加以混合而製作之積層體或利用加壓等之熱硬化後之積層體剖面之電子顯微鏡圖像中任意地選擇之50個構成各無機粒子之一次粒子之長

徑進行測定，並算出平均值。

就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，構成上述第1無機粒子之一次粒子之縱橫比較佳為3以上，更佳為5以上，且較佳為20以下，更佳為15以下。

於本發明之樹脂材料中，構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下。就更有效地提高絕緣性與導熱性之觀點、及更有效地抑制絕緣破壞強度之不均之觀點而言，構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比較佳為6.5以下，更佳為6以下。構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比之下限並無特別限定。構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比可為3以上。

構成上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比表示長徑/短徑。構成上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比可以如下方式算出。

對從將構成上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之一次粒子與熱硬化性樹脂等加以混合而製作之積層體或利用加壓等之熱硬化後之積層體剖面之電子顯微鏡圖像中任意地選擇之50個構成各無機粒子之一次粒子之長徑/短徑進行測定，並算出平均值。

就更有效地提高絕緣性及導熱性之觀點而言，於構成上述第1氮化硼凝集粒子及上述第2氮化硼凝集粒子之一次粒子中，無需一次粒子全部為鱗片狀之粒子，亦可含有至少1個以上之彎曲形狀之粒子。關於彎曲形狀之粒子，於彎曲部位分為2個粒子，對各粒子測定長徑/短徑，以長徑較長之粒子之長徑/短徑作為彎曲形狀之粒子之長徑/短徑。根據所獲得之長徑/短徑之值算出縱橫比。

於積層體剖面之電子顯微鏡圖像中，可相對較明確地確認積層體中之構成上述第2無機粒子之一次粒子之形狀、及壓縮強度較大且不易因加壓等而變形之上述第1無機粒子之形狀。因此，使用壓縮強度較大之粒子與縱橫比及壓縮強度較小之粒子可根據積層體剖面之電子顯微鏡圖像而判斷出。

#### (黏合劑樹脂)

本發明之樹脂材料含有黏合劑樹脂。上述黏合劑樹脂並無特別限定。作為上述黏合劑樹脂，可使用公知之絕緣性之樹脂。上述黏合劑樹脂較佳為含有熱塑性成分(熱塑性化合物)或硬化性成分，更佳為含有硬化性成分。作為上述硬化性成分，可列舉熱硬化性成分及光硬化性成分。上述熱硬化性成分較佳為含有熱硬化性化合物及熱硬化劑。上述光硬化性成分較佳為含有光硬化性化合物及光聚合起始劑。上述黏合劑樹脂較佳為含有熱硬化性成分。上述黏合劑樹脂可僅使用1種，亦可併用2種以上。

「(甲基)丙烯醯基」表示丙烯醯基與甲基丙烯醯基。「(甲基)丙烯酸基」表示丙烯酸基與甲基丙烯酸基。「(甲基)丙烯酸酯」表示丙烯酸酯與甲基丙烯酸酯。

#### (熱硬化性成分：熱硬化性化合物)

作為上述熱硬化性化合物，可列舉：苯乙烯化合物、苯氧基化合物、氧雜環丁烷化合物、環氧化合物、環硫化合物、(甲基)丙烯酸系化合物、酚系化合物、胺基化合物、不飽和聚酯化合物、聚胺基甲酸酯化合物、聚矽氧化合物及聚醯亞胺化合物等。上述熱硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

作為上述熱硬化性化合物，可使用(A1)具有分子量未達10000之熱硬

化性化合物(有時僅記載為(A1)熱硬化性化合物)，亦可使用(A2)具有分子量10000以上之熱硬化性化合物(有時僅記載為(A2)熱硬化性化合物)，亦可使用(A1)熱硬化性化合物與(A2)熱硬化性化合物之兩者。

於樹脂材料100體積%中，上述熱硬化性化合物之含量較佳為10體積%以上，更佳為20體積%以上，且較佳為90體積%以下，更佳為80體積%以下。若上述熱硬化性化合物之含量為上述下限以上，則硬化物之接著性及耐熱性變得更高。若上述熱硬化性化合物之含量為上述上限以下，則樹脂材料之塗佈性變得更高。

(A1)具有分子量未達10000之熱硬化性化合物：

作為(A1)熱硬化性化合物，可列舉具有環狀醚基之熱硬化性化合物。作為上述環狀醚基，可列舉環氧基及氧雜環丁基等。上述具有環狀醚基之熱硬化性化合物較佳為具有環氧基或氧雜環丁基之熱硬化性化合物。

(A1)熱硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

(A1)熱硬化性化合物可含有(A1a)具有環氧基之熱硬化性化合物(有時僅記載為(A1a)熱硬化性化合物)，亦可含有(A1b)具有氧雜環丁基之熱硬化性化合物(有時僅記載為(A1b)熱硬化性化合物)。

就更有效地提高硬化物之耐熱性及耐濕性之觀點而言，(A1)熱硬化性化合物較佳為具有芳香族骨架。

作為上述芳香族骨架，並無特別限定，可列舉：萘骨架、蒽骨架、聯苯骨架、蔥骨架、芘骨架、吡啶骨架、金剛烷骨架及雙酚A型骨架等。就更有效地提高硬化物之耐冷熱循環特性及耐熱性之觀點而言，上述芳香族骨架較佳為聯苯骨架或蒽骨架。

作為(A1a)熱硬化性化合物，可列舉：具有雙酚骨架之環氧單體、具

有二環戊二烯骨架之環氧單體、具有萘骨架之環氧單體、具有金剛烷骨架之環氧單體、具有蒽骨架之環氧單體、具有聯苯骨架之環氧單體、具有雙(縮水甘油氧基苯基)甲烷骨架之環氧單體、具有吡啶骨架之環氧單體、具有蒽骨架之環氧單體、及具有芘骨架之環氧單體等。亦可使用該等之氯化物或改性物。(A1a)熱硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

作為上述具有雙酚骨架之環氧單體，例如可列舉具有雙酚A型、雙酚F型或雙酚S型之雙酚骨架之環氧單體等。

作為上述具有二環戊二烯骨架之環氧單體，可列舉：二氧化二環戊二烯、及具有二環戊二烯骨架之苯酚酚醛清漆環氧單體等。

作為上述具有萘骨架之環氧單體，可列舉：1-縮水甘油基萘、2-縮水甘油基萘、1,2-二縮水甘油基萘、1,5-二縮水甘油基萘、1,6-二縮水甘油基萘、1,7-二縮水甘油基萘、2,7-二縮水甘油基萘、三縮水甘油基萘、及1,2,5,6-四縮水甘油基萘等。

作為上述具有金剛烷骨架之環氧單體，可列舉：1,3-雙(4-縮水甘油氧基苯基)金剛烷、及2,2-雙(4-縮水甘油氧基苯基)金剛烷等。

作為上述具有蒽骨架之環氧單體，可列舉：9,9-雙(4-縮水甘油氧基苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3-甲基苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3-氯苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3-溴苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3-氟苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3-甲氧基苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3,5-二甲基苯基)蒽、9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3,5-二氯苯基)蒽、及9,9-雙(4-縮水甘油氧基-3,5-二溴苯基)蒽等。

作為上述具有聯苯骨架之環氧單體，可列舉：4,4'-二縮水甘油基聯苯、及4,4'-二縮水甘油基-3,3',5,5'-四甲基聯苯等。

作為上述具有雙(縮水甘油氧基萘基)甲烷骨架之環氧單體，可列舉：

1,1'-雙(2,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,8'-雙(2,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,1'-雙(3,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,8'-雙(3,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,1'-雙(3,5-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,8'-雙(3,5-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,2'-雙(2,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、1,2'-雙(3,7-縮水甘油氧基萘基)甲烷、及1,2'-雙(3,5-縮水甘油氧基萘基)甲烷等。

作為上述具有吡啶骨架之環氧單體，可列舉：1,3,4,5,6,8-六甲基-2,7-雙(環氧乙烷基甲氧基)-9-苯基-9H-吡啶等。

作為(A1b)熱硬化性化合物之具體例，例如可列舉：4,4'-雙[(3-乙基-3-氧雜環丁基)甲氧基甲基]聯苯、1,4-苯二羧酸雙[(3-乙基-3-氧雜環丁基)甲基]酯、1,4-雙[(3-乙基-3-氧雜環丁基)甲氧基甲基]苯、及氧雜環丁烷改性苯酚酚醛清漆等。(A1b)熱硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

就使硬化物之耐熱性更良好之觀點而言，(A1)熱硬化性化合物較佳為含有具有2個以上環狀醚基之熱硬化性化合物。

就使硬化物之耐熱性更良好之觀點而言，於(A1)熱硬化性化合物100重量%中，具有2個以上環狀醚基之熱硬化性化合物之含量較佳為70重量%以上，更佳為80重量%以上，且較佳為100重量%以下。於(A1)熱硬化性化合物100重量%中，具有2個以上環狀醚基之熱硬化性化合物之含量可為10重量%以上且100重量%以下。又，亦可(A1)熱硬化性化合物之整體為具有2個以上環狀醚基之熱硬化性化合物。

(A1)熱硬化性化合物之分子量未達10000。(A1)熱硬化性化合物之分子量較佳為200以上，且較佳為1200以下，更佳為600以下，進而較佳為

550以下。若(A1)熱硬化性化合物之分子量為上述下限以上，則硬化物之表面之黏著性變低，樹脂材料之處理性變得更高。若(A1)熱硬化性化合物之分子量為上述上限以下，則硬化物之接著性變得更高。進而，硬化物不易變硬且變脆，硬化物之接著性變得更高。

再者，於本說明書中，所謂(A1)熱硬化性化合物之分子量，於(A1)熱硬化性化合物並非聚合物之情形、及可特定出(A1)熱硬化性化合物之結構式之情形時，意指可由該結構式算出之分子量，於(A1)熱硬化性化合物為聚合物之情形時，意指重量平均分子量。上述重量平均分子量係藉由凝膠滲透層析法(GPC)測得之以聚苯乙烯換算計之重量平均分子量。於凝膠滲透層析法(GPC)測定中，作為溶離液，較佳為使用四氫呋喃。

於樹脂材料100體積%中，(A1)熱硬化性化合物之含量較佳為10體積%以上，更佳為20體積%以上，且較佳為90體積%以下，更佳為80體積%以下。若(A1)熱硬化性化合物之含量為上述下限以上，則硬化物之接著性及耐熱性變得更高。若(A1)熱硬化性化合物之含量為上述上限以下，則樹脂材料之塗佈性變得更高。

(A2)具有分子量10000以上之熱硬化性化合物：

(A2)熱硬化性化合物係分子量為10000以上之熱硬化性化合物。由於(A2)熱硬化性化合物之分子量為10000以上，因此(A2)熱硬化性化合物通常為聚合物，上述分子量通常意指重量平均分子量。

就更有效地提高硬化物之耐熱性及耐濕性之觀點而言，(A2)熱硬化性化合物較佳為具有芳香族骨架。於(A2)熱硬化性化合物為聚合物，且(A2)熱硬化性化合物具有芳香族骨架之情形時，(A2)熱硬化性化合物於聚合物整體之任一部分具有芳香族骨架即可，可於主鏈骨架內具有，亦可於

側鏈中具有。就使硬化物之耐熱性更高、且使硬化物之耐濕性更高之觀點而言，(A2)熱硬化性化合物較佳為於主鏈骨架內具有芳香族骨架。(A2)熱硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

作為上述芳香族骨架，並無特別限定，可列舉：萘骨架、萸骨架、聯苯骨架、蔥骨架、芘骨架、吡啶骨架、金剛烷骨架及雙酚A型骨架等。就更有效地提高硬化物之耐冷熱循環特性及耐熱性之觀點而言，上述芳香族骨架較佳為聯苯骨架或萸骨架。

作為(A2)熱硬化性化合物，並無特別限定，可列舉：苯乙烯樹脂、苯氧基樹脂、氧雜環丁烷樹脂、環氧樹脂、環硫化合物、(甲基)丙烯酸系樹脂、酚系樹脂、胺基樹脂、不飽和聚酯樹脂、聚胺基甲酸酯樹脂、聚矽氧樹脂及聚醯亞胺樹脂等。

就抑制硬化物之氧化劣化，進一步提高硬化物之耐冷熱循環特性及耐熱性，進而進一步降低硬化物之吸水率之觀點而言，(A2)熱硬化性化合物較佳為苯乙烯樹脂、苯氧基樹脂或環氧樹脂，更佳為苯氧基樹脂或環氧樹脂，進而較佳為苯氧基樹脂。尤其是藉由使用苯氧基樹脂或環氧樹脂，硬化物之耐熱性變得更高。又，藉由使用苯氧基樹脂，硬化物之彈性模數變得更低，且硬化物之耐冷熱循環特性變得更高。再者，(A2)熱硬化性化合物亦可不具有環氧基等環狀醚基。

作為上述苯乙烯樹脂，具體而言，可使用苯乙烯系單體之均聚物、及苯乙烯系單體與丙烯酸系單體之共聚物等。較佳為具有苯乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯之結構之苯乙烯聚合物。

作為上述苯乙烯系單體，例如可列舉：苯乙烯、鄰甲基苯乙烯、間甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯、對甲氧基苯乙烯、對苯基苯乙烯、對氯苯乙

烯、對乙基苯乙烯、對正丁基苯乙烯、對第三丁基苯乙烯、對正己基苯乙烯、對正辛基苯乙烯、對正壬基苯乙烯、對正癸基苯乙烯、對正十二烷基苯乙烯、2,4-二甲基苯乙烯及3,4-二氯苯乙烯等。

具體而言，上述苯氧基樹脂例如為使表鹵醇與二元酚系化合物進行反應所獲得之樹脂、或使二元環氧化合物與二元酚系化合物進行反應所獲得之樹脂。

上述苯氧基樹脂較佳為具有雙酚A型骨架、雙酚F型骨架、雙酚A/F混合型骨架、萘骨架、萘骨架、聯苯骨架、蔥骨架、芘骨架、吡啶骨架、金剛烷骨架或二環戊二烯骨架。上述苯氧基樹脂更佳為具有雙酚A型骨架、雙酚F型骨架、雙酚A/F混合型骨架、萘骨架、萘骨架或聯苯骨架，進而較佳為具有萘骨架及聯苯骨架中之至少1種骨架。藉由使用具有該等較佳之骨架之苯氧基樹脂，硬化物之耐熱性進一步變得更高。

上述環氧樹脂係上述苯氧基樹脂以外之環氧樹脂。作為上述環氧樹脂，可列舉：含苯乙烯骨架之環氧樹脂、雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、雙酚S型環氧樹脂、苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、聯苯酚型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、苯酚芳烷基型環氧樹脂、萘酚芳烷基型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、蔥型環氧樹脂、具有金剛烷骨架之環氧樹脂、具有三環癸烷骨架之環氧樹脂、及骨架具有三吡核之環氧樹脂等。

(A2)熱硬化性化合物之分子量為10000以上。(A2)熱硬化性化合物之分子量較佳為30000以上，更佳為40000以上，且較佳為1000000以下，更佳為250000以下。若(A2)熱硬化性化合物之分子量為上述下限以上，則硬化物不易熱劣化。若(A2)熱硬化性化合物之分子量為上述上限以下，則

(A2)熱硬化性化合物與其他成分之相容性變高。其結果為，硬化物之耐熱性變得更高。

於樹脂材料100體積%中，(A2)熱硬化性化合物之含量較佳為20體積%以上，更佳為30體積%以上，且較佳為60體積%以下，更佳為50體積%以下。若(A2)熱硬化性化合物之含量為上述下限以上，則樹脂材料之處理性變得更良好。若(A2)熱硬化性化合物之含量為上述上限以下，則樹脂材料之塗佈性變得更高。

(熱硬化性成分：熱硬化劑)

上述熱硬化劑並無特別限定。作為上述熱硬化劑，可適當使用能夠使上述熱硬化性化合物硬化之熱硬化劑。又，於本說明書中，熱硬化劑中含有硬化觸媒。熱硬化劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

就更有效地提高硬化物之耐熱性之觀點而言，上述熱硬化劑較佳為具有芳香族骨架或脂環式骨架。上述熱硬化劑較佳為含有胺硬化劑(胺化合物)、咪唑硬化劑、酚系硬化劑(酚系化合物)或酸酐硬化劑(酸酐)，更佳為含有胺硬化劑。上述酸酐硬化劑較佳為含有具有芳香族骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物，或者含有具有脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物。

作為上述胺硬化劑，可列舉：雙氰胺、咪唑化合物、二胺基二苯基甲烷及二胺基二苯基砜等。就更有效地提高硬化物之接著性之觀點而言，上述胺硬化劑更佳為雙氰胺或咪唑化合物。就更有效地提高樹脂材料之儲藏穩定性之觀點而言，熱硬化劑較佳為含有熔點為180°C以上之硬化劑，更佳為含有熔點為180°C以上之胺硬化劑。

作為上述咪唑硬化劑，可列舉：2-十一烷基咪唑、2-十七烷基咪唑、

2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、1-苄基-2-甲基咪唑、1-苄基-2-苯基咪唑、1,2-二甲基咪唑、1-氰基乙基-2-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-十一烷基咪唑、1-氰基乙基-2-苯基咪唑、1-氰基乙基-2-十一烷基咪唑鎧偏苯三酸鹽、1-氰基乙基-2-苯基咪唑鎧偏苯三酸鹽、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-十一烷基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-乙基-4'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡異三聚氰酸加成物、2-苯基咪唑異三聚氰酸加成物、2-甲基咪唑異三聚氰酸加成物、2-苯基-4,5-二羥基甲基咪唑及2-苯基-4-甲基-5-二羥基甲基咪唑等。

作為上述酚系硬化劑，可列舉：苯酚酚醛清漆、鄰甲酚酚醛清漆、對甲酚酚醛清漆、第三丁基苯酚酚醛清漆、二環戊二烯甲酚、聚對乙炔基苯酚、雙酚A型酚醛清漆、苯二甲基改性酚醛清漆、十氫萘改性酚醛清漆、聚(二鄰羥基苯基)甲烷、聚(二間羥基苯基)甲烷、及聚(二對羥基苯基)甲烷等。就更有效地提高硬化物之柔軟性及硬化物之阻燃性之觀點而言，上述酚系硬化劑較佳為具有三聚氰胺骨架之酚系樹脂、具有三吡骨架之酚系樹脂、或具有烯丙基之酚系樹脂。

作為上述酚系硬化劑之市售品，可列舉：MEH-8005、MEH-8010及MEH-8015(以上均為明和化成公司製造)、YLH903(三菱化學公司製造)、LA-7052、LA-7054、LA-7751、LA-1356及LA-3018-50P(以上均為DIC公司製造)、以及PS6313及PS6492(以上均為群榮化學公司製造)等。

作為上述具有芳香族骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物，例如可列舉：苯乙烯/順丁烯二酸酐共聚物、二苯甲酮四羧酸二酐、

均苯四甲酸二酐、偏苯三甲酸酐、4,4'-氧二鄰苯二甲酸酐、苯基乙炔基鄰苯二甲酸酐、甘油雙(脫水偏苯三酸酯)單乙酸酯、乙二醇雙(脫水偏苯三酸酯)、甲基四氫鄰苯二甲酸酐、甲基六氫鄰苯二甲酸酐、及三烷基四氫鄰苯二甲酸酐等。

作為上述具有芳香族骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物之市售品，可列舉：SMA RESIN EF30、SMA RESIN EF40、SMA RESIN EF60及SMA RESIN EF80(以上均為Sartomer Japan公司製造)、ODPA-M及PEPA(以上均為MANAC公司製造)、RIKACID MTA-10、RIKACID MTA-15、RIKACID TMTA、RIKACID TMEG-100、RIKACID TMEG-200、RIKACID TMEG-300、RIKACID TMEG-500、RIKACID TMEG-S、RIKACID TH、RIKACID HT-1A、RIKACID HH、RIKACID MH-700、RIKACID MT-500、RIKACID DSDA及RIKACID TDA-100(以上均為新日本理化公司製造)、以及EPICLON B4400、EPICLON B650、及EPICLON B570(以上均為DIC公司製造)等。

上述具有脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物較佳為具有多脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物、或者具有藉由萜烯系化合物與順丁烯二酸酐之加成反應獲得之脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物。藉由使用該等硬化劑，硬化物之柔軟性、以及硬化物之耐濕性及接著性變得更高。

作為上述具有脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物，亦可列舉甲基耐地酸酐、具有二環戊二烯骨架之酸酐或該酸酐之改性物等。

作為上述具有脂環式骨架之酸酐、該酸酐之氫化物或該酸酐之改性物之市售品，可列舉：RIKACID HNA及RIKACID HNA-100(以上均為新日本理化公司製造)、以及EPI-CURE YH306、EPI-CURE YH307、EPI-CURE YH308H及EPI-CURE YH309(以上均為三菱化學公司製造)等。

上述熱硬化劑亦較佳為甲基耐地酸酐或三烷基四氫鄰苯二甲酸酐。藉由使用甲基耐地酸酐或三烷基四氫鄰苯二甲酸酐，硬化物之耐水性變高。

於樹脂材料100體積%中，上述熱硬化劑之含量較佳為0.1體積%以上，更佳為1體積%以上，且較佳為40體積%以下，更佳為25體積%以下。若上述熱硬化劑之含量為上述下限以上，則更容易使熱硬化性化合物充分硬化。若上述熱硬化劑之含量為上述上限以下，則不易產生不參與硬化之過剩之熱硬化劑。因此，硬化物之耐熱性及接著性變得更高。

(光硬化性成分：光硬化性化合物)

上述光硬化性化合物只要具有光硬化性，則無特別限定。上述光硬化性化合物可僅使用1種，亦可併用2種以上。

上述光硬化性化合物較佳為具有2個以上之乙烯性不飽和鍵。

作為上述含有乙烯性不飽和鍵之基，可列舉：乙烯基、烯丙基、(甲基)丙烯酸基等。就使反應有效地進行，進一步抑制硬化物之發泡、剝離及變色之觀點而言，較佳為(甲基)丙烯酸基。上述光硬化性化合物較佳為具有(甲基)丙烯酸基。

就更有效地提高硬化物之密接性之觀點而言，上述光硬化性化合物較佳為含有環氧(甲基)丙烯酸酯。就更有效地提高硬化物之耐熱性之觀點

而言，上述環氧(甲基)丙烯酸酯較佳為包含2官能之環氧(甲基)丙烯酸酯與3官能以上之環氧(甲基)丙烯酸酯。2官能之環氧(甲基)丙烯酸酯較佳為具有2個(甲基)丙烯醯基。3官能以上之環氧(甲基)丙烯酸酯較佳為具有3個以上之(甲基)丙烯醯基。

環氧(甲基)丙烯酸酯係使(甲基)丙烯酸與環氧化合物進行反應而獲得。環氧(甲基)丙烯酸酯可藉由將環氧基轉化為(甲基)丙烯醯基而獲得。由於光硬化性化合物係藉由光之照射而使之硬化，因此環氧(甲基)丙烯酸酯較佳為不具有環氧基。

作為上述環氧(甲基)丙烯酸酯，可列舉：雙酚型環氧(甲基)丙烯酸酯(例如，雙酚A型環氧(甲基)丙烯酸酯、雙酚F型環氧(甲基)丙烯酸酯、雙酚S型環氧(甲基)丙烯酸酯)、甲酚酚醛清漆型環氧(甲基)丙烯酸酯、胺改性雙酚型環氧(甲基)丙烯酸酯、己內酯改性雙酚型環氧(甲基)丙烯酸酯、羧酸酐改性環氧(甲基)丙烯酸酯、及苯酚酚醛清漆型環氧(甲基)丙烯酸酯等。

於樹脂材料100體積%中，上述光硬化性化合物之含量較佳為5體積%以上，更佳為10體積%以上，且較佳為40體積%以下，更佳為30體積%以下。若該等光硬化性化合物之含量為上述下限以上及上述上限以下，則硬化物之密接性變得更高。

(光硬化性成分：光聚合起始劑)

上述光聚合起始劑並無特別限定。作為上述光聚合起始劑，可適當地使用能夠藉由光之照射而使上述光硬化性化合物硬化之光聚合起始劑。上述光聚合起始劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

作為上述光聚合起始劑，可列舉：醯基氧化膦、鹵甲基化三吡、鹵

甲基化嘔二唑、咪唑、安息香、安息香烷基醚、蔥醌、苯并蔥酮、二苯甲酮、苯乙酮、9-氧硫吡啶、苯甲酸酯、吡啶、啡啶、二茂鈦、 $\alpha$ -胺基烷基苯酮、肟、及該等之衍生物。

作為二苯甲酮系光聚合起始劑，可列舉鄰苯甲醯苯甲酸甲酯及米其勒酮等。作為二苯甲酮系光聚合起始劑之市售品，可列舉EAB(保土谷化學工業公司製造)等。

作為苯乙酮系光聚合起始劑之市售品，可列舉：Darocure 1173、Darocure 2959、Irgacure 184、Irgacure 907、及Irgacure 369(以上均為BASF公司製造)等。

作為安息香系光聚合起始劑之市售品，可列舉Irgacure 651(BASF公司製造)等。

作為醯基氧化膦系光聚合起始劑之市售品，可列舉：Lucirin TPO、及Irgacure 819(以上均為BASF公司製造)等。

作為9-氧硫吡啶系光聚合起始劑之市售品，可列舉：異丙基-9-氧硫吡啶、及二乙基-9-氧硫吡啶等。

作為肟系光聚合起始劑之市售品，可列舉：Irgacure OXE-01、及Irgacure OXE-02(以上均為BASF公司製造)等。

相對於上述光硬化性化合物100重量份，上述光聚合起始劑之含量較佳為1重量份以上，更佳為3重量份以上，且較佳為20重量份以下，更佳為15重量份以下。若光聚合起始劑之含量為上述下限以上及上述上限以下，則能夠使光硬化性化合物良好地進行光硬化。

(絕緣性填料)

本發明之樹脂材料可含有絕緣性填料。上述絕緣性填料不為上述第1

無機粒子，且不為上述第2無機粒子。上述絕緣性填料具有絕緣性。上述絕緣性填料可為有機填料，亦可為無機填料。上述絕緣性填料可僅使用1種，亦可併用2種以上。

就更有效地提高導熱性之觀點而言，上述絕緣性填料較佳為無機填料。就更有效地提高導熱性之觀點而言，上述絕緣性填料較佳為具有10 W/m · K以上之導熱率。

就更有效地提高硬化物之導熱性之觀點而言，上述絕緣性填料之導熱率較佳為10 W/m · K以上，更佳為20 W/m · K以上。上述絕緣性填料之導熱率之上限並無特別限定。導熱率為300 W/m · K左右之無機填料廣為人知，又，導熱率為200 W/m · K左右之無機填料可容易地獲得。

上述絕緣性填料之材質並無特別限定。作為絕緣性填料之材質，可列舉：氮化合物(氮化硼、氮化鋁、氮化矽、氮化碳、及氮化鈦等)、碳化合物(碳化矽、碳化氟、碳化硼、碳化鈦、碳化鎢、及金剛石等)、及金屬氧化物(二氧化矽、氧化鋁、氧化鋅、氧化鎂、及氧化鋁等)等。上述絕緣性填料之材質較佳為上述氮化合物、上述碳化合物或上述金屬氧化物，更佳為氧化鋁、氮化硼、氮化鋁、氮化矽、碳化矽、氧化鋅或氧化鎂。藉由使用該等較佳之絕緣性填料，硬化物之導熱性變得更高。

上述絕緣性填料較佳為球狀粒子、或縱橫比超過2之非凝集粒子及凝集粒子。藉由使用該等絕緣性填料，硬化物之導熱性變得更高。上述球狀粒子之縱橫比為2以下。

上述絕緣性填料之材質之新莫氏硬度較佳為12以下，更佳為9以下。若絕緣性填料之材質之新莫氏硬度為9以下，則硬化物之加工性變得更高。

就更有效地提高硬化物之加工性之觀點而言，上述絕緣性填料之材質較佳為氮化硼、合成碳酸鎂、結晶二氧化矽、氧化鋅、或氧化鎂。該等無機填料之材質之新莫氏硬度為9以下。

就更有效地提高導熱性之觀點而言，絕緣性填料之粒徑較佳為0.1  $\mu\text{m}$ 以上，且較佳為20  $\mu\text{m}$ 以下。若上述粒徑為上述下限以上，則能夠以高密度容易地填充絕緣性填料。若上述粒徑為上述上限以下，則硬化物之導熱性變得更高。

上述所謂粒徑意指由藉由雷射繞射式粒度分佈測定裝置測得之以體積平均計之粒度分佈測定結果求出之平均粒徑。上述絕緣性填料之粒徑較佳為採集3 g絕緣性填料，將其中所含之絕緣性填料之粒徑進行平均而算出。關於絕緣性填料之平均粒徑之算出方法，較佳為採用累積體積為50%時之絕緣性填料之粒徑(d50)作為平均粒徑。

就更有效地提高導熱性之觀點而言，於樹脂材料100體積%中，上述絕緣性填料之含量較佳為1體積%以上，更佳為3體積%以上，且較佳為20體積%以下，更佳為10體積%以下。

(其他成分)

上述樹脂材料除了上述成分以外，亦可含有分散劑、螯合劑、抗氧化劑等通常用於樹脂材料、樹脂片材、及硬化性片材之其他成分。

(樹脂材料及硬化物之其他詳細內容)

上述樹脂材料可為膏，可為硬化性膏。上述樹脂材料可為樹脂片材，可為硬化性片材。於上述樹脂材料含有硬化性成分之情形時，可藉由使上述樹脂材料硬化而獲得硬化物。上述硬化物係上述樹脂材料之硬化物，係由上述樹脂材料所形成。



法，例如可列舉：利用無電解鍍覆之方法、利用電鍍之方法、及將上述絕緣層與金屬箔進行加熱壓接之方法等。由於導電層之形成簡便，因此較佳為將上述絕緣層與金屬箔進行加熱壓接之方法。

圖1係模式性地表示本發明之一實施形態之樹脂片材的剖視圖。再者，於圖1中，為了方便圖示，而與實際之大小及厚度不同。

圖1所示之樹脂片材1具備黏合劑樹脂11、第1無機粒子12、及第2無機粒子13。第1無機粒子12及第2無機粒子13為上述第1無機粒子及第2無機粒子，第1無機粒子12及第2無機粒子13分別較佳為氮化硼凝集粒子。第1無機粒子12之壓縮強度與第2無機粒子13之壓縮強度不同。又，構成第2無機粒子13之一次粒子之縱橫比為7以下。

於本實施形態之樹脂片材1中，黏合劑樹脂11含有硬化性成分。黏合劑樹脂11可含有包含熱硬化性化合物及熱硬化劑之熱硬化性成分，亦可含有包含光硬化性化合物及光聚合起始劑之光硬化性成分。上述黏合劑樹脂較佳為未完全硬化。上述黏合劑樹脂可藉由加熱等進行B-階段化。上述黏合劑樹脂可為經B-階段化之B-階段化物。

於上述樹脂片材中，存在於片材內部存在空隙之情況。於上述樹脂片材中，存在於上述第1無機粒子及上述第2無機粒子之間存在空隙之情況。

圖2係模式性地表示使用本發明之一實施形態之樹脂材料所獲得之積層體之剖視圖。再者，於圖1中，為了方便圖示，而與實際之大小及厚度不同。

圖2所示之積層體21具備導熱體22、絕緣層23、及導電層24。導熱體22、絕緣層23、及導電層24係上述導熱體、絕緣層、及導電層。於圖2

中，使用圖1所示之樹脂片材1作為絕緣層23。

導熱體22具有一表面22a(第1表面)與另一表面22b(第2表面)。絕緣層23具有一表面23a(第1表面)與另一表面23b(第2表面)。導電層24具有一表面24a(第1表面)與另一表面24b(第2表面)。

於絕緣層23之一表面23a(第1表面)側積層有導電層24。於絕緣層23之另一表面23b(第2表面)側積層有導熱體22。於導電層24之另一表面24b(第2表面)側積層有絕緣層23。於導熱體22之一表面22a(第1表面)側積層有絕緣層23。於導熱體22與導電層24之間配置有絕緣層23。

上述積層體之製造方法並無特別限定。作為上述積層體之製造方法，可列舉將上述導熱體、上述絕緣層、及上述導電層進行積層並藉由真空加壓等進行加熱壓接之方法等。

於本實施形態之積層體21中，絕緣層23含有硬化物部14、第1無機粒子12、及第2無機粒子13。絕緣層23係由圖1所示之樹脂片材1所形成。上述絕緣層較佳為藉由利用真空加壓等將上述樹脂片材進行加熱壓接而形成。

於本實施形態之積層體21中，第1無機粒子12較佳為未因加壓等壓縮力而變形或崩解，較佳為維持形狀。第1無機粒子12較佳為凝集粒子(二次粒子)。第1無機粒子12較佳為於硬化物中以凝集粒子(二次粒子)之形態存在。

於本實施形態之積層體21中，第2無機粒子13可因加壓等壓縮力而變形或崩解。第2無機粒子13可為經變形之凝集粒子(二次粒子)，亦可因凝集粒子(二次粒子)崩解而成為一次粒子。第2無機粒子13於硬化物中，可以經變形之凝集粒子(二次粒子)之形態存在，亦可因凝集粒子(二次粒子)

崩解而以一次粒子之形態存在。

於硬化物部14中，第2無機粒子13係於第1無機粒子12之周圍變形或崩解。經變形或崩解之第2無機粒子13存在於第1無機粒子12間。經變形或崩解之第2無機粒子13可填埋存在於第1無機粒子12間之空隙，而能夠有效地提高絕緣性。又，由於積層體21能夠藉由第2無機粒子13而無間隙地填埋第1無機粒子12間之空隙，因此能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均。

於硬化物部14中，第2無機粒子13可藉由第1無機粒子12而控制配向。第2無機粒子13不僅沿面方向進行配向，而且亦沿厚度方向進行配向。於積層體21中，不僅於面方向，而且於厚度方向(加壓方向)亦能夠有效地提高導熱性。又，由於第1無機粒子12不會過度地變形或崩解，因此能夠有效地提高厚度方向之導熱性。

於本實施形態中，硬化物部14係黏合劑樹脂11硬化而成之部分。硬化物14可藉由使黏合劑樹脂11硬化而獲得。硬化物部14可為包含熱硬化性化合物及熱硬化劑之熱硬化性成分硬化而成之部分，亦可為包含光硬化性化合物及光聚合起始劑之光硬化性成分硬化而成之部分。硬化物部14可藉由使熱硬化性成分或光硬化性成分硬化而獲得。

上述樹脂材料及上述硬化物可用於要求導熱性及機械強度等較高之各種用途。於電子機器中，上述積層體例如係配置於發熱零件與散熱零件之間使用。例如，上述積層體可用作設置於CPU與散熱片之間之散熱體、或電動汽車之反相器等中所利用之電源卡(power card)之散熱體。又，藉由利用蝕刻等方法於上述積層體之導電層形成電路，而可將上述積層體用作絕緣電路基板。

以下，藉由列舉本發明之具體之實施例及比較例，而使本發明明確。本發明並不限定於以下之實施例。

熱硬化性化合物：

- (1)三菱化學公司製造之「Epikote 828US」，環氧化合物
- (2)明和化成公司製造之「DL-92」，苯酚酚醛清漆化合物

熱硬化劑：

- (1)東京化成工業公司製造之「雙氰胺」
- (2)四國化成工業公司製造之「2MZA-PW」，異三聚氰酸改性固體分

散型咪唑

第1無機粒子：

- (1)Saint-Gobain公司製造之「PCTH7MHF」
- (2)昭和電工公司製造之「UHP-G1H」
- (3)無機粒子1
- (4)Momentive公司製造之「AC6091」
- (5)Saint-Gobain公司製造之「CTS7M」
- (6)無機粒子2

「無機粒子1」之製作方法：

藉由利用噴霧乾燥法使平均長徑 $3.3\ \mu\text{m}$ 、縱橫比12.7之氮化硼之一次粒子以空隙率成為41%、平均粒徑成為 $70\ \mu\text{m}$ 之方式凝集而製作。空隙率係利用水銀測孔儀進行測定，算出僅以 $5\ \mu\text{m}$ 以下之空隙作為粒子內空隙時之空隙率。空隙率係藉由與下文所述之第1無機粒子及第2無機粒子之空隙率之測定方法相同之方法而測定。

第2無機粒子(包括其替代品)：

- (1)無機粒子2
- (2)無機粒子3
- (3)無機粒子4
- (4)無機粒子5
- (5)Momentive公司製造之「PTX25」
- (6)Momentive公司製造之「AC6091」

「無機粒子2」之製作方法：

藉由利用噴霧乾燥法使平均長徑7.2  $\mu\text{m}$ 、縱橫比5.3之氮化硼之一次粒子以空隙率成為44%、平均粒徑成為40  $\mu\text{m}$ 之方式凝集而製作。

「無機粒子3」之製作方法：

藉由利用噴霧乾燥法使平均長徑6.5  $\mu\text{m}$ 、縱橫比6.1之氮化硼之一次粒子以空隙率成為39%、平均粒徑成為30  $\mu\text{m}$ 之方式凝集而製作。

「無機粒子4」之製作方法：

藉由利用噴霧乾燥法使平均長徑10  $\mu\text{m}$ 、縱橫比6.5之氮化硼之一次粒子以空隙率成為30%、平均粒徑成為50  $\mu\text{m}$ 之方式凝集而製作。

「無機粒子5」之製作方法：

藉由利用噴霧乾燥法使平均長徑7.4  $\mu\text{m}$ 、縱橫比5.1之氮化硼之一次粒子以空隙率成為46%、平均粒徑成為60  $\mu\text{m}$ 之方式凝集而製作。

(第1無機粒子及第2無機粒子之各壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度)

以如下方式測定第1無機粒子及第2無機粒子之各壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度。

第1無機粒子及第2無機粒子之各壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強

度之測定方法：

使用微小壓縮試驗機，於壓縮速度0.67 mN/秒之條件下，以金剛石製之角柱作為壓縮構件，使該壓縮構件之平滑端面朝向無機粒子落下而將無機粒子壓縮。第1無機粒子係將最大試驗荷重設為120 mN，第2無機粒子係將最大試驗荷重設為40 mN。作為測定結果，可獲得壓縮荷重值與壓縮位移之關係，對於壓縮荷重值，使用利用無機粒子之粒徑算出之平均剖面面積算出每單位面積之壓縮荷重值，以此作為壓縮強度。又，根據壓縮位移與無機粒子之粒徑，算出壓縮率，而獲得壓縮強度與壓縮率之關係。使用顯微鏡觀察所測定之無機粒子，選出具有粒徑±10%之粒徑之無機粒子進行測定。又，各壓縮率下之壓縮強度係作為將20次測定結果進行平均所獲得之平均壓縮強度而算出。又，壓縮率係藉由(壓縮率=壓縮位移÷平均粒徑×100)而算出。

(同一壓縮時之第1無機粒子之壓縮強度相對於第2無機粒子之壓縮強度之比(第1無機粒子之壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度/第2無機粒子之壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度))

使用藉由上述方法測得之第1無機粒子及第2無機粒子之各壓縮10%、20%、及30%時之壓縮強度，算出同一壓縮時之第1無機粒子之壓縮強度相對於第2無機粒子之壓縮強度之比。

(第1無機粒子及第2無機粒子之空隙率)

以如下方式測定第1無機粒子及第2無機粒子之空隙率。

第1無機粒子及第2無機粒子之空隙率之測定方法：

使用QUANTACHROME公司製造之水銀測孔儀「Poremaster 60」，測定水銀相對於藉由汞滲法施加之壓力之累計滲入量。稱取無機粒子0.2

~0.3 g，進行低壓模式、高壓模式下之測定。根據所獲得之資料獲得表示細孔徑之每單位區間之細孔容積的分佈曲線。存在於無機粒子內部之空隙係基於分佈曲線，藉由總空隙減去粒子間空隙所獲得之值(V)而算出。根據所獲得之分佈曲線，將5 μm以上之細孔徑之空隙設為粒子間空隙。若使用構成無機粒子之一次粒子(氮化硼)之密度( $\rho = 2.34$ )，則空隙率( $\varepsilon$ )可以下述式表示。

$$\varepsilon = V(V + (1/\rho)) \times 100$$

將各無機粒子中算出之V值代入至上述式中，算出空隙率(%)。

(第1無機粒子及第2無機粒子之粒徑)

使用堀場製作所公司製造之「雷射繞射式粒度分佈測定裝置」測定第1無機粒子及第2無機粒子之粒徑。採集3 g之各無機粒子，將其中所含之各無機粒子之粒徑進行平均，藉此算出第1無機粒子及第2無機粒子之粒徑。關於平均粒徑之算出方法，於第1無機粒子及第2無機粒子之各粒子中，以累積體積為50%時之無機粒子之粒徑(d50)作為平均粒徑。

(構成第1無機粒子及第2無機粒子之一次粒子之縱橫比)

以如下方式測定構成第1無機粒子及第2無機粒子之一次粒子之縱橫比。

構成第1無機粒子及第2無機粒子之一次粒子之縱橫比之測定方法：

對從將構成第1無機粒子及第2無機粒子之一次粒子與熱硬化性樹脂等加以混合所製作之片材剖面之電子顯微鏡圖像中任意地選擇之50個構成各無機粒子之一次粒子之長徑/短徑進行測定，並算出平均值，藉此求出上述縱橫比。

(實施例1~9及比較例1~8)

### (1)樹脂材料之製作

以下述之表1、2所示之調配量調配下述之表1、2所示之成分，使用行星式攪拌機以500 rpm攪拌25分鐘，藉此獲得樹脂材料。

### (2)積層體之製作

以厚度成為350  $\mu\text{m}$ 之方式將所獲得之樹脂材料塗佈於脫模PET(polyethylene terephthalate，聚對苯二甲酸乙二酯)片材(厚度50  $\mu\text{m}$ )上，於90°C之烘箱內乾燥10分鐘，形成硬化性片材(絕緣層)，而獲得積層片材。其後，剝離脫模PET片材，以銅箔與鋁板夾持硬化性片材(絕緣層)之兩面，於溫度200°C、壓力12 MPa之條件下進行真空加壓，藉此製作積層體。

### (評價)

#### (1)導熱率

將所獲得之積層體切割為1 cm見方後，將碳黑噴霧於兩面，藉此製作測定樣品。使用所獲得之測定樣品，藉由雷射閃光法算出導熱率。表1、2中之導熱率係將比較例1之值設為1.00而獲得之相對值。導熱率之測定係使用NETZSCH公司製造之「LFA447」。

#### (2)絕緣破壞強度

藉由對所獲得之積層體中之銅箔進行蝕刻，將銅箔圖案化為直徑2 cm之圓形，而獲得試樣。使用耐電壓試驗機(ETECH Electronics公司製造之「MODEL7473」)，以使電壓以0.33 kV/秒之速度上升之方式，於25°C下對試樣間施加交流電壓。將10 mA之電流流過試樣之電壓設為絕緣破壞電壓。藉由絕緣破壞電壓除以試樣之厚度進行標準化，算出絕緣破壞強度。按照以下之基準判定絕緣破壞強度。

[絕緣破壞強度之判定基準]

○：60 kV/mm以上

△：30 kV/mm以上且未達60 kV/mm

×：未達30 kV/mm

(3)絕緣破壞強度之不均

從所獲得之積層體之各不同部位切下5 cm見方，獲得20個測定樣品。以與上述(2)同樣之方式製作20個試樣，對於各試樣，算出絕緣破壞強度。按照以下之基準判定絕緣破壞強度之不均。

[絕緣破壞強度之不均之判定基準]

○○：絕緣破壞強度之最大值與最小值之差未達20 kV/mm

○：絕緣破壞強度之最大值與最小值之差為20 kV/mm以上且未達25 kV/mm

△：絕緣破壞強度之最大值與最小值之差為25 kV/mm以上且未達40 kV/mm

×：絕緣破壞強度之最大值與最小值之差為40 kV/mm以上

(4)接著性(剝離強度)

一面以10 MPa之壓力將所獲得之硬化性片材(絕緣層350 μm)壓抵於電解銅箔(厚度35 μm)與鋁板(厚度1 mm)之間，一面於200°C下加熱1小時，而獲得測定樣品。其後，將測定樣品切成5 cm×12 cm，僅保留短邊側之中央1 cm×12 cm，而將其餘部分之銅箔剝離。藉由90°剝離試驗測定中央1 cm之電解銅箔與硬化後之絕緣層之間的剝離強度。按照以下之基準判定接著性(剝離強度)。

[接著性(剝離強度)之判定基準]

○：剝離強度為5 N/cm以上

△：剝離強度為2 N/cm以上且未達5 N/cm

x：剝離強度未達2 N/cm

將結果示於下述之表1、2。

[表1]

			實施 例1	實施 例2	實施 例3	實施 例4	實施 例5	實施 例6	實施 例7	實施 例8	實施 例9
樹脂材料之 組成 (重量%)	熱硬化性化合物	Epikote 828US	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5	31.8	21.1	20.1
		DL-92									9.4
	熱硬化劑	雙氰胺	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.1	0.7	
		2MZA-PW	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55	0.56	0.37	0.40
	無機粒子(第1種) (第1無機粒子或其替 代品)	PCTH7MHF	35						35		
		UHP-G1H			42				27	31	
		無機粒子1		14			35				14
		AC6091				56					
	無機粒子(第2種) (第2無機粒子或其替 代品)	CTS7M									
		無機粒子2									
		無機粒子2	35	56		14			40	47	56
		無機粒子3			28						
		無機粒子4					35				
		無機粒子5						35			
		PTX25									
	AC6091										
無機粒子之合計含量(體積%)			54	54	54	54	54	54	51	61	54
無機粒子(第1種)之含量(體積%)			27	11	32	43	27	27	20	24	11
無機粒子(第2種)之含量(體積%)			27	43	22	11	27	27	31	37	43
壓縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )	無機粒子(第1種) (第1無機粒子或其替 代品)	壓縮10%時	3.6	5.6	2.3	2.3	5.6	3.6	2.3	2.3	5.6
		壓縮20%時	5.8	7.9	4.2	4.2	7.9	5.8	4.2	4.2	7.9
		壓縮30%時	6.2	8.4	6.8	4.4	8.4	6.2	6.8	6.8	8.4
	無機粒子(第2種) (第2無機粒子或其替 代品)	壓縮10%時	0.7	0.7	0.9	0.7	0.7	0.9	0.7	0.7	0.7
		壓縮20%時	1.6	1.6	1.7	1.6	2.3	2.0	1.6	1.6	1.6
		壓縮30%時	2.9	2.9	3.0	2.9	3.5	3.3	2.9	2.9	2.9
同一壓縮時之無機粒子(第1種)之 壓縮強度相對於無機粒子(第2種) 之壓縮強度之比	壓縮10%時	5.0	7.7	2.7	3.2	4.3	4.0	3.2	3.2	7.7	
	壓縮20%時	3.6	4.9	2.5	2.6	3.4	2.9	2.6	2.6	4.9	
	壓縮30%時	2.2	2.9	2.3	1.5	2.4	1.9	2.4	2.4	2.9	
空隙率 (%)	無機粒子(第1種)	45	41	30	14	41	45	30	30	41	
	無機粒子(第2種)	44	44	39	44	30	46	44	44	44	
粒徑 ( $\mu\text{m}$ )	無機粒子(第1種)	100	70	70	100	70	100	70	70	70	
	無機粒子(第2種)	40	40	30	40	50	60	40	40	40	
縱橫比	構成無機粒子(第1種)之一次粒子	11.5	12.7	6.8	6.3	12.7	11.5	6.8	6.8	12.7	
	構成無機粒子(第2種)之一次粒子	5.3	5.3	6.1	5.3	6.5	5.1	5.3	5.3	5.3	
評價	(1)導熱率		1.41	1.50	1.49	1.46	1.47	1.48	1.33	1.52	1.49
	(2)絕緣破壞強度		○	○	○	○	○	○	○	○	○
	(3)絕緣破壞強度之不均		○○	○○	○○	○○	○	○	○○	○	○
	(4)接著性(剝離強度)		○	○	○	○	○	○	○	○	○
※不屬於第1無機粒子或第2無機粒子											

[表2]

			比較 例1	比較 例2	比較 例3	比較 例4	比較 例5	比較 例6	比較 例7	比較 例8
樹脂材料 之組成 (重量%)	熱硬化性化合物	Epikote 828US	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5	28.5
		DL-92								
	熱硬化劑	雙氰胺	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
		2MZA-PW	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55	0.55
	無機粒子(第1種) (第1無機粒子或其 替代品)	PCTH7MHF	35							
		UHP-G1H			28					
		無機粒子1		14				35		
		AC6091							35	70
		CTS7M				35				
	無機粒子(第2種) (第2無機粒子或其 替代品)	無機粒子2								35※
		無機粒子3								35
		無機粒子4								
		無機粒子5								
		PTX25			42※	35※	35※	35※		
	AC6091	35※	56※							
無機粒子之合計含量(體積%)			54	54	54	54	54	54	54	54
無機粒子(第1種)之含量(體積%)			27	11	22	27	27	27	27	54
無機粒子(第2種)之含量(體積%)			27	43	32	27	27	27	27	0
壓縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )	無機粒子(第1種) (第1無機粒子或其 替代品)	壓縮10%時	3.6	5.6	2.3	1.7	5.6	2.3	0.7	2.3
		壓縮20%時	5.8	7.9	4.2	2.2	7.9	4.2	1.6	4.2
		壓縮30%時	6.2	8.4	6.8	2.4	8.4	4.4	2.9	4.4
	無機粒子(第2種) (第2無機粒子或其 替代品)	壓縮10%時	2.3	2.3	0.4	0.4	0.4	0.4	0.9	-
		壓縮20%時	4.2	4.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.7	-
		壓縮30%時	4.4	4.4	2.2	2.2	2.2	2.2	3	-
同一壓縮時之無機粒子(第1 種)之壓縮強度相對於無機粒 子(第2種)之壓縮強度之比	壓縮10%時	1.5	2.4	5.6	4.1	13.7	5.7	0.8	-	
	壓縮20%時	1.4	1.9	3.4	1.8	6.5	3.4	0.9	-	
	壓縮30%時	1.4	1.9	3.0	1.1	3.8	1.9	1.0	-	
空隙率 (%)	無機粒子(第1種)	45	41	30	64	41	14	44	14	
	無機粒子(第2種)	14	14	75	75	75	75	39	-	
粒徑 (μm)	無機粒子(第1種)	100	70	70	120	70	100	40	100	
	無機粒子(第2種)	100	100	25	25	25	25	30	-	
縱橫比	構成無機粒子(第1種)之一次粒子	11.5	12.7	6.8	10.4	12.7	6.3	5.3	6.3	
	構成無機粒子(第2種)之一次粒子	6.3	6.3	12.7	12.7	12.7	12.7	6.1	-	
評價	(1)導熱率	1.00	1.05	0.88	0.80	1.30	1.11	0.93	0.78	
	(2)絕緣破壞強度	×	×	○	○	○	○	○	○	
	(3)絕緣破壞強度之不均	×	×	○	○○	△	○	○○	○	
	(4)接著性(剝離強度)	○	○	△	×	△	△	○	○	
※不屬於第1無機粒子或第2無機粒子										

## 【符號說明】

1	樹脂片材(樹脂材料)
11	黏合劑樹脂
12	第1無機粒子
13	第2無機粒子
14	硬化物部(黏合劑樹脂硬化而成之部分)
21	積層體
22	導熱體
22a	一表面(第1表面)
22b	另一表面(第2表面)
23	絕緣層
23a	一表面(第1表面)
23b	另一表面(第2表面)
24	導電層
24a	一表面(第1表面)
24b	另一表面(第2表面)



201840731

## 【發明摘要】

### 【中文發明名稱】

樹脂材料及積層體

### 【中文】

本發明提供一種能夠有效地提高絕緣性與導熱性、進而能夠有效地抑制絕緣破壞強度之不均、進而能夠有效地提高接著性之樹脂材料。

本發明之樹脂材料含有第1無機粒子、第2無機粒子、及黏合劑樹脂，且上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比為2.5以上，上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下，構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下。

### 【指定代表圖】

圖1

### 【代表圖之符號簡單說明】

- 1 樹脂片材(樹脂材料)
- 11 黏合劑樹脂
- 12 第1無機粒子
- 13 第2無機粒子

## 【發明申請專利範圍】

### 【第1項】

一種樹脂材料，其含有第1無機粒子、第2無機粒子、及黏合劑樹脂，且

上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度相對於上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之比為2.5以上，

上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度為1.5 N/mm<sup>2</sup>以下，

構成上述第2無機粒子之一次粒子之縱橫比為7以下。

### 【第2項】

如請求項1之樹脂材料，其中上述第2無機粒子之空隙率為35%以上。

### 【第3項】

如請求項1或2之樹脂材料，其中上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度超過2 N/mm<sup>2</sup>，

上述第1無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度超過4 N/mm<sup>2</sup>，

上述第1無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度超過4.2 N/mm<sup>2</sup>，

上述第2無機粒子之壓縮20%時之壓縮強度為3 N/mm<sup>2</sup>以下，

上述第2無機粒子之壓縮30%時之壓縮強度為5 N/mm<sup>2</sup>以下。

### 【第4項】

如請求項1或2之樹脂材料，其中上述第2無機粒子之粒徑為10 μm以上且50 μm以下。

### 【第5項】

如請求項1或2之樹脂材料，其中上述第1無機粒子之壓縮10%時之壓

縮強度與上述第2無機粒子之壓縮10%時之壓縮強度之差的絕對值為1 N/mm<sup>2</sup>以上。

**【第6項】**

如請求項1或2之樹脂材料，其中上述第1無機粒子與上述第2無機粒子分別為氮化硼凝集粒子。

**【第7項】**

如請求項1或2之樹脂材料，其中於樹脂材料100體積%中，上述第1無機粒子與上述第2無機粒子之合計含量為20體積%以上且80體積%以下。

**【第8項】**

如請求項1或2之樹脂材料，其為樹脂片材。

**【第9項】**

一種積層體，其具備導熱體、積層於上述導熱體之一表面之絕緣層、及積層於上述絕緣層之與上述導熱體為相反側之表面之導電層，且上述絕緣層之材料為如請求項1至8中任一項之樹脂材料。



