



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 119365415 A

(43) 申请公布日 2025.01.24

(21) 申请号 202380046155.6

(22) 申请日 2023.06.05

(30) 优先权数据

2022-106348 2022.06.30 JP

2023-044734 2023.03.20 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.12.10

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2023/020739 2023.06.05

(87) PCT国际申请的公布数据

W02024/004525 JA 2024.01.04

(71) 申请人 松下知识产权经营株式会社

地址 日本

(72) 发明人 会田和辉 齐藤辉彦 细川铁平

伊延穗波 滨田贵裕

(74) 专利代理机构 永新专利商标代理有限公司
72002

专利代理师 陈建全

(51) Int.Cl.

C01B 21/064 (2006.01)

C08F 8/42 (2006.01)

C08K 9/04 (2006.01)

C08L 9/00 (2006.01)

C08L 25/10 (2006.01)

C08L 65/00 (2006.01)

C08L 87/00 (2006.01)

C08L 101/00 (2006.01)

C08L 101/10 (2006.01)

C08J 5/10 (2006.01)

C08J 5/24 (2006.01)

B32B 15/08 (2006.01)

C08K 3/38 (2006.01)

H05K 1/03 (2006.01)

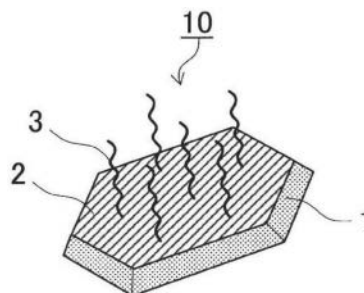
权利要求书2页 说明书15页 附图4页

(54) 发明名称

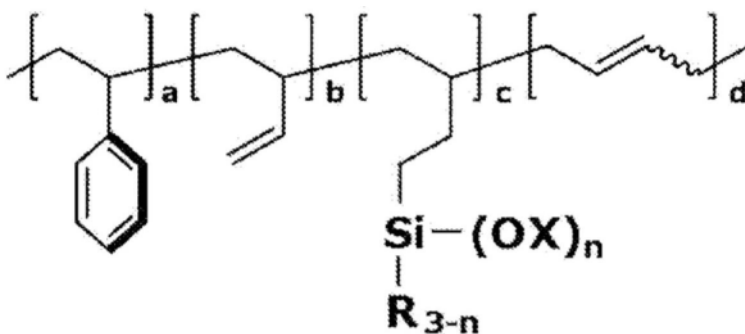
氮化硼材料、其应用产品及氮化硼材料的制造方法

(57) 摘要

本公开的一个方案中的氮化硼材料包含氮化硼、附着于氮化硼的聚多巴胺、以及含硅聚合物。含硅聚合物例如包含 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团, n 为1~3的整数, X 表示氢原子、碳数1~10的烷基、与上述聚多巴胺键合的部分、或与除上述官能团的硅原子以外的硅原子键合的部分, X 中的至少1个为与上述聚多巴胺键合的部分, R 表示碳数1~10的烷基。



1. 一种氮化硼材料,其包含:
氮化硼、
附着于所述氮化硼的聚多巴胺、以及
含硅聚合物。
2. 根据权利要求1所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物附着于所述聚多巴胺。
3. 根据权利要求1所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含具有硅原子和氧原子的第1侧链,并且借助所述硅原子和所述氧原子键合于所述聚多巴胺。
4. 根据权利要求1所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含具有选自由碳-碳双键和碳-碳三键组成的组中的至少1个的第2侧链。
5. 根据权利要求4所述的氮化硼材料,其中,
所述第2侧链仅由链状结构组成。
6. 根据权利要求1所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含具有选自由苯乙烯单元、丁二烯单元、乙烯单元和硅氧烷单元组成的组中的至少1个的主链。
7. 根据权利要求6所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含具有所述丁二烯单元的主链。
8. 根据权利要求7所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含具有所述苯乙烯单元和所述丁二烯单元的共聚物。
9. 根据权利要求1所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物包含 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团,
n为1~3的整数,
X表示氢原子、碳数1~10的烃基、与所述聚多巴胺键合的部分、或与除所述官能团的硅原子以外的硅原子键合的部分,
X中的至少1个为与所述聚多巴胺键合的部分,
R表示碳数1~10的烃基。
10. 根据权利要求9所述的氮化硼材料,其中,
所述含硅聚合物由包含多个重复单元的下述式(1)表示:
[化学式1]



... 式(1)

在所述式(1)中,a和d表示0以上的数,b和c表示大于0的数,
在所述式(1)中,所述多个重复单元的顺序是任意的。

11.根据权利要求10所述的氮化硼材料,
其在所述式(1)中满足 $0.050 \leq c/(b+c+d)$ 。

12.一种填料,
其包含权利要求1所述的氮化硼材料。

13.一种树脂组合物,
其包含权利要求12所述的填料。

14.一种预浸料,
其包含权利要求13所述的树脂组合物或所述树脂组合物的半固化物。

15.一种带树脂的薄膜,其具备:
包含权利要求13所述的树脂组合物或所述树脂组合物的半固化物的树脂层、以及
支承薄膜。

16.一种带树脂的金属箔,其具备:
包含权利要求13所述的树脂组合物或所述树脂组合物的半固化物的树脂层、以及
金属箔。

17.一种覆金属层叠板,其具备:
包含权利要求13所述的树脂组合物的固化物或权利要求14所述的预浸料的固化物的
绝缘层、以及
金属箔。

18.一种布线板,其具备:
包含权利要求13所述的树脂组合物的固化物或权利要求14所述的预浸料的固化物的
绝缘层、以及
布线。

19.一种氮化硼材料的制造方法,
该方法包括下述步骤:
准备包含氮化硼和附着于所述氮化硼的表面的聚多巴胺的基材;以及
使含硅聚合物接触所述基材。

20.根据权利要求19所述的氮化硼材料的制造方法,其中,
所述含硅聚合物的数均分子量为1200以上。

氮化硼材料、其应用产品及氮化硼材料的制造方法

技术领域

[0001] 本公开涉及氮化硼材料、其应用产品以及氮化硼材料的制造方法。

背景技术

[0002] 近年来,在电子领域,为了扩大第5代移动通信系统(5G)的运用,对电子设备要求的性能水平上升。例如,为了使通信速度比以往几代更快,5G使用更高的频段。因此,电子设备需要支持高频的布线板。

[0003] 布线板的传输线的传输损耗依赖于频率,信号的频率越高,传输损耗越增大。传输损耗依赖于相对介电常数和介电损耗角正切。因此,为了减少高频信号的传输损耗,要求构成布线板的绝缘层的材料具有低的相对介电常数和低的介电损耗角正切。

[0004] 此外,5G这种大容量通信由于使用高频段,因此电波的传输距离短。因此,需要增大电子设备的输出功率。加之,伴随高集成度的实现和小型化,电路的安装密度也升高。要想满足这些需求,布线板的单位面积的发热量会增大。因此,要求布线板具有高的散热性。为了提高布线板的散热性,有方案使构成布线板的绝缘层的材料含有导热性优异的填料(填充剂)来提高布线板的导热率。

[0005] 现有技术文献

[0006] 专利文献

[0007] 专利文献1:日本特开2018-043899号公报

[0008] 非专利文献

[0009] 非专利文献1:Haeshin Lee, Shara M. Dellatore, William M. Miller, Phillip B. Messersmith, Science, 2007, vol. 318, 426-430

[0010] 非专利文献2:Heng Shen, Jing Guo, Hao Wang, Ning Zhao, Jian Xu, ACS Appl. Mater. Interfaces, 2015, 7, 5701-5708

发明内容

[0011] 发明所要解决的问题

[0012] 在现有技术中,希望改善填料的耐热性。

[0013] 用于解决问题的手段

[0014] 本公开的氮化硼材料包含:

[0015] 氮化硼、

[0016] 附着于前述氮化硼的聚多巴胺、以及

[0017] 含硅聚合物。

[0018] 发明效果

[0019] 根据本公开,能够改善填料的耐热性。

附图说明

- [0020] 图1是示出实施方式1的氮化硼材料的示意构成的图。
- [0021] 图2是示出实施方式1的氮化硼材料的制造方法的一例的流程图。
- [0022] 图3是示出实施方式4的树脂组合物的示意构成的图。
- [0023] 图4是实施方式6的带树脂的薄膜的剖视图。
- [0024] 图5是实施方式7的带树脂的金属箔的剖视图。
- [0025] 图6是实施方式8的覆金属层叠板的剖视图。
- [0026] 图7是实施方式9的布线板的剖视图。
- [0027] 图8是示出实施方式1的氮化硼材料的颗粒的与厚度方向垂直的截面的透射型电子显微镜(TEM)图像的一例的图。

具体实施方式

[0028] (构成本公开的基础的认识)

[0029] 为了提高布线板的散热性而增加树脂组合物中的填料的含量的话,柔软性等机械特性会受损,绝缘层容易变脆弱。可认为这是由于在树脂组合物中填料发生聚集。要想在抑制填料的聚集的同时提高分散性,填料的表面的化学修饰是有效的。

[0030] 氮化硼是具备高的导热性、优异的散热性、优异的电绝缘性的材料。因此,近年来,氮化硼作为布线板的绝缘层的填料受到关注(例如专利文献1)。然而,在氮化硼的颗粒的表面存在的官能团的量少,其表面的大部分是不活泼的。因此,难以通过硅烷偶联等方法直接处理氮化硼的颗粒的表面来提高树脂组合物中的颗粒的分散性。

[0031] 在此,作为双壳贝的1种的紫贻贝(*Mytilus galloprovincialis*)的足丝腺所分泌的含多巴胺的蛋白质即使在海水中也发挥稳定的粘接力,作为天然的粘接剂而为人所知。根据非专利文献1,在多巴胺水溶液中浸渍基板的话,通过多巴胺的自氧化聚合而在基板的表面形成聚多巴胺的薄膜。非专利文献2中记载了:通过利用该性质用聚多巴胺被覆氮化硼,使得氮化硼作为填料的分散性提高。

[0032] 然而,布线板通常在于布线板上安装电子部件时经过焊料回流工序。因此,填料需要具有高的耐热性。然而,聚多巴胺由于具有大量羟基,因此具有容易吸附大气中的水分的性质、即亲水性。因此,在使用附着有聚多巴胺的氮化硼作为填料的情况下,有时因焊料回流工序中的加热使聚多巴胺的表面所吸附的水分蒸发,会产生气泡。还存在因该气泡在布线板的内部积存而招致各种不利情况之虞。

[0033] 本发明人等针对改善氮化硼的耐热性进行了深入研究。结果想到了本公开的氮化硼材料。

[0034] (本公开的一个方案的概要)

[0035] 本公开的第1方案的氮化硼材料包含氮化硼、附着于前述氮化硼的聚多巴胺、以及含硅聚合物。根据以上构成,能够改善氮化硼材料的耐热性。

[0036] 在本公开的第2方案中,例如第1方案的氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以附着于前述聚多巴胺。根据以上构成,能够改善氮化硼材料的耐热性。

[0037] 在本公开的第3方案中,例如第1或第2方案的氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含具有硅原子和氧原子的第1侧链,并且借助前述硅原子和前述氧原子键合于前述聚多

巴胺。根据以上构成,能够改善氮化硼材料的耐热性。

[0038] 在本公开的第4方案中,例如第1~第3方案中的任一个氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含具有选自自由碳-碳双键和碳-碳三键组成的组中的至少1个的第2侧链。根据以上构成,在使用氮化硼材料作为填料的情况下,填料的散热性提高。

[0039] 在本公开的第5方案中,例如第4方案的氮化硼材料中,前述第2侧链可以仅由链状结构组成。根据以上构成,在使用氮化硼材料作为填料的情况下,填料的散热性提高。

[0040] 在本公开的第6方案中,例如第1~第5方案中的任一个氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含具有选自自由苯乙烯单元、丁二烯单元、乙烯单元和硅氧烷单元组成的组中的至少1个的主链。根据以上构成,提高氮化硼材料的耐热性。

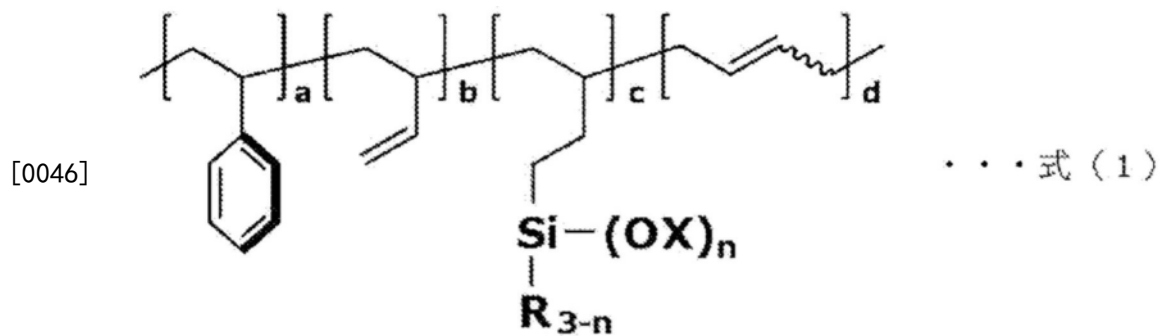
[0041] 在本公开的第7方案中,例如第6方案的氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含具有前述丁二烯单元的主链。根据以上构成,提高氮化硼材料的耐热性。

[0042] 在本公开的第8方案中,例如第7方案的氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含具有前述苯乙烯单元和前述丁二烯单元的共聚物。根据以上构成,氮化硼材料的耐热性进一步提高。

[0043] 在本公开的第9方案中,例如第1~第8方案中的任一个氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以包含 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团。在此,n为1~3的整数,X表示氢原子、碳数1~10的烃基、与前述聚多巴胺键合的部分、或与除前述官能团的硅原子以外的硅原子键合的部分。X中的至少1个为与前述聚多巴胺键合的部分。R表示碳数1~10的烃基。根据以上构成,氮化硼材料的耐热性进一步提高。

[0044] 在本公开的第10方案中,例如第9方案的氮化硼材料中,前述含硅聚合物可以由包含多个重复单元的下述式(1)表示。

[0045] [化学式1]



[0047] 在前述式(1)中,a和d表示0以上的数,b和c表示大于0的数。其中,在前述式(1)中,前述多个重复单元的顺序是任意的。根据以上构成,氮化硼材料的耐热性进一步提高。

[0048] 在本公开的第11方案中,例如第10方案的氮化硼材料可以在前述式(1)中满足 $0.050 \leq c/(b+c+d)$ 。根据以上构成,氮化硼材料的耐热性更进一步提高。

[0049] 本公开的第12方案的填料包含第1~第11方案中的任一个氮化硼材料。根据以上构成,能够改善填料的耐热性。

[0050] 本公开的第13方案的树脂组合物包含第12方案的填料。根据第13方案,能够提供显示出低的介电损耗角正切并且耐热性优异的树脂组合物。

[0051] 本公开的第14方案的预浸料包含第13方案的树脂组合物或前述树脂组合物的半固化物。

- [0052] 本公开的第15方案的带树脂的薄膜具备：
- [0053] 包含第13方案的树脂组合物或前述树脂组合物的半固化物的树脂层、以及
- [0054] 支承薄膜。
- [0055] 本公开的第16方案的带树脂的金属箔具备：
- [0056] 包含第13方案的树脂组合物或前述树脂组合物的半固化物的树脂层、以及
- [0057] 金属箔。
- [0058] 本公开的第17方案的覆金属层叠板具备：
- [0059] 包含第13方案的树脂组合物的固化物或第14方案的预浸料的固化物的绝缘层、以及
- [0060] 金属箔。
- [0061] 本公开的第18方案的布线板具备：
- [0062] 包含第13方案的树脂组合物的固化物或第14方案的预浸料的固化物的绝缘层、以及
- [0063] 布线。
- [0064] 根据第14～第18方案,能够提供适合于高频的各种应用产品。
- [0065] 本公开的第19方案的氮化硼材料的制造方法包括下述步骤:准备包含氮化硼和附着于前述氮化硼的表面的聚多巴胺的基材;以及使含硅聚合物接触前述基材。根据以上构成,能够制造耐热性优异的氮化硼材料。
- [0066] 在本公开的第20方案中,例如第19方案的氮化硼材料的制造方法中,前述含硅聚合物的数均分子量可以为1200以上。根据以上构成,氮化硼材料的耐热性提高。
- [0067] 以下,边参照附图边对本公开的实施方式进行说明。
- [0068] (实施方式1)
- [0069] 以下,使用图1和图2对实施方式1进行说明。
- [0070] [氮化硼材料]
- [0071] 图1是示出实施方式1的氮化硼材料10的示意构成的图。氮化硼材料10包含氮化硼1、附着于氮化硼1的聚多巴胺2、以及含硅聚合物3。
- [0072] 氮化硼材料10除了聚多巴胺2还包含含硅聚合物3,且聚多巴胺2附着于氮化硼1,由此可抑制大气中的水分被吸附到聚多巴胺2中。加之,含硅聚合物3与例如甲基丙烯酰基硅烷等含硅的低分子化合物相比,其自身不易因加热而蒸发。由上,氮化硼材料10不易因焊料回流工序中的加热而产生气泡,结果具有高的耐热性。需要说明的是,在本公开中,“含硅的低分子化合物”是指分子量小于1200的有机硅化合物。
- [0073] 聚多巴胺2和含硅聚合物3可以附着于氮化硼1的表面。具体而言,通过利用聚多巴胺2对氮化硼1的表面进行化学修饰,可以使聚多巴胺2附着于氮化硼1的表面。聚多巴胺2可以被覆氮化硼1的至少一部分表面。聚多巴胺2可以被覆氮化硼1的整个表面,也可以被覆氮化硼1的仅一部分表面。含硅聚合物3可以附着于聚多巴胺2。含硅聚合物3可以附着于附着在氮化硼1的表面的聚多巴胺2。聚多巴胺2附着于氮化硼1的表面以及含硅聚合物3附着于聚多巴胺2例如可以通过透射型电子显微镜(TEM)来确认。图8是氮化硼材料10的颗粒的与厚度方向垂直的截面的透射型电子显微镜(TEM)图像的一例(倍率:50000倍)。需要说明的是,图8的TEM图像是通过样品进行TEM观察而得到的图像,该样品是将通过对氮化硼材料

10的颗粒与聚苯醚树脂进行混炼而制造的树脂组合物薄片化而得的。如图8所示,根据TEM图像,可以确认聚多巴胺2附着于氮化硼1,含硅聚合物3附着于聚多巴胺2。

[0074] [氮化硼]

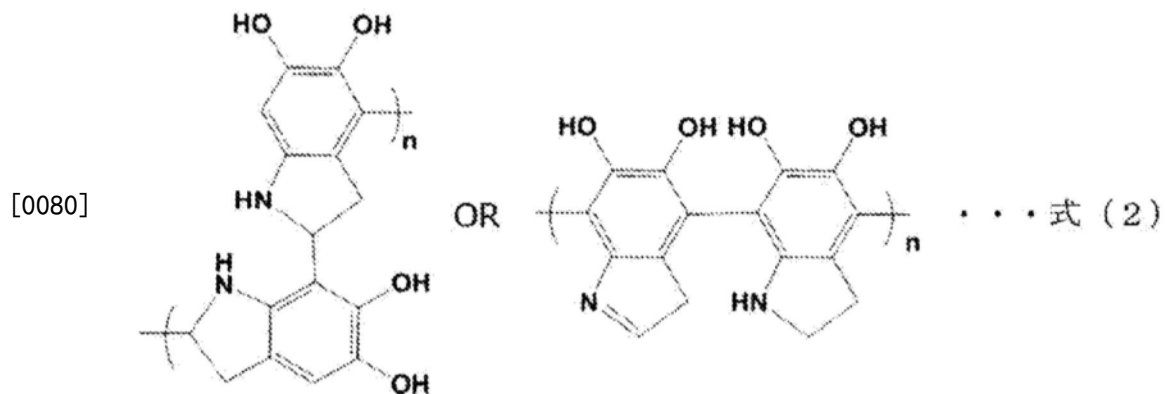
[0075] 作为氮化硼1,可以使用具有石墨型的层状结构的六方晶氮化硼(h-BN)、金刚石型的立方晶氮化硼(c-BN)、以及非晶氮化硼(a-BN)等。h-BN由于可以较容易地合成且具有导热性、电绝缘性、化学稳定性和耐热性优异的特征,因此特别有用。作为氮化硼1,可以使用氮化硼颗粒。氮化硼颗粒通常呈白色。氮化硼颗粒的形状没有特别限定。氮化硼颗粒的形状例如可以是鳞片状、球状、椭圆球状、棒状等。

[0076] 氮化硼颗粒的平均粒径没有特别限定。氮化硼颗粒的平均粒径例如可以为 $0.05\mu\text{m}$ 以上且 $100\mu\text{m}$ 以下,也可以为 $0.1\mu\text{m}$ 以上且 $50\mu\text{m}$ 以下。在本公开中,氮化硼颗粒的平均粒径是指中值粒径。中值粒径是指体积基准的粒度分布中的累积体积等于50%时的粒径(d_{50})。体积基准的粒度分布例如利用激光衍射式测定装置进行测定。

[0077] [聚多巴胺]

[0078] 聚多巴胺2为多巴胺的聚合物,例如可以具有下述式(2)所示的2个重复单元中的任一者或两者。其中,在下述式(2)中,二氢吡啶骨架的部分可以是吡啶骨架。

[0079] [化学式2]



[0081] 在上述式(2)中, n 为1以上的整数。在上述式(2)中, n 可以为2以上的整数。

[0082] 聚多巴胺2可以在氮化硼1的颗粒的表面具有薄膜的形状。聚多巴胺2的薄膜的厚度例如为 $1\text{nm} \sim 300\text{nm}$ 。聚多巴胺2的薄膜覆盖氮化硼1的颗粒的至少一部分表面。聚多巴胺2的薄膜也可以如图1所例示地覆盖氮化硼1的颗粒的整个表面。

[0083] 聚多巴胺在氮化硼1上的附着可以通过氮化硼1的颗粒的表面着色成黑褐色来确认。

[0084] 本说明书中,即使在聚合物中因与其他物质键合而使来源于多巴胺的一部分官能团发生变化,也将该聚合物作为“聚多巴胺”处理。官能团变化的一例是伴随聚多巴胺的羟基与其他物质的羟基的脱水缩合的羟基消失。需要说明的是,该脱水缩合是带来与接下来说明的含硅聚合物3的键合的化学反应的典型例子。

[0085] [含硅聚合物]

[0086] 含硅聚合物3只要为包含硅原子的聚合物,则对其结构没有特别限制,例如包含主链和从主链分支出的侧链。含硅聚合物3可以包含多个侧链。主链可以包含由相互键合的碳原子构成的第1主链。第1主链可以发挥使氮化硼1的表面不具有过度的亲水性的作用。含硅

聚合物3可以在包含第1主链的同时包含具有硅原子的侧链。

[0087] 含硅聚合物3可以包含具有硅原子和氧原子的第1侧链。含硅聚合物3可以借助硅原子和氧原子键合于聚多巴胺2。更具体而言,含硅聚合物3中可以包含与硅原子和聚多巴胺2键合的氧原子。含硅聚合物3例如可以借助氧原子键合于聚多巴胺2的苯环。该键至少可以经由脱水缩合来形成。如该例这样,键可以是共价键等化学键。

[0088] 含硅聚合物3可以具有 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团。在此,n为1~3的整数,X表示氢原子、碳数1~10的烃基、与聚多巴胺键合的键合部、或与除上述官能团的硅原子以外的硅原子键合的键合部。作为键合部的X也可以用单键(-)表示。碳数1~10的烃基例如为碳数1~10、特别是1~3的烷基。X中的至少1个为与聚多巴胺2键合的键合部。R表示碳数1~10的烃基。在包含与其它硅原子键合的键合部的情况下,含硅聚合物3中包含Si-O-Si表示的硅氧烷单元。含硅聚合物3可以包含由硅氧烷单元构成的第2主链。

[0089] 在 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团中,R可以为碳数1~10的烷基、或碳数6~10的芳基。

[0090] 碳数1~10的烷基可以具有直链状、环状、支链状中的任一结构。作为碳数1~10的烷基,可列举出甲基、乙基、正丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、环丙基、环丁基、环戊基、环己基、环庚基、环辛基等。作为碳数6~10的芳基,可列举出苯基、 α -萘基、 β -萘基等。

[0091] 在含硅聚合物3具有 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团且X包含与其它硅原子键合的键合部的情况下,含硅聚合物3包含Si-O-Si表示的硅氧烷单元。含硅聚合物3可以包含由硅氧烷单元构成的第2主链。具有这种构成的含硅聚合物3可以具有硅氧烷单元(Si-O-Si)以网状扩展而得的网络结构。

[0092] 含硅聚合物3可以包含具有选自由碳-碳双键和碳-碳三键组成的组中的至少1个的第2侧链。根据这种结构,碳-碳双键或碳-碳三键与绝缘层的树脂的反应性残基反应而形成键,因此氮化硼材料10与树脂的密合性提高。由此,氮化硼材料10与树脂的界面的热阻减少,绝缘层的导热性提高。进而布线板的散热性提高。作为碳-碳双键,例如可列举出乙烯基、甲基烯丙基、丙烯酰基等。含硅聚合物3可以具有选自它们中的1种,也可以具有2种以上。从易反应性的角度来看,碳-碳双键理想的是为乙烯基。作为绝缘层的树脂的反应性残基,可列举出乙烯基、甲基烯丙基、丙烯酰基等。作为碳-碳三键,例如可列举出乙炔基、炔丙基等。含硅聚合物3可以具有选自它们中的1种,也可以具有2种以上。作为绝缘层的树脂的反应性残基,可列举出乙炔基、炔丙基等。选自由碳-碳双键和碳-碳三键组成的组中的至少1个可以位于第2侧链的末端。第2侧链可以仅由链状结构组成。

[0093] 需要说明的是,从避免由氧化导致的劣化的角度来看,理想的是在含硅聚合物3的内部存在的碳-碳双键和碳-碳三键的含有比率少。

[0094] 含硅聚合物3可以还包含除第1侧链和第2侧链以外的侧链。除第1侧链和第2侧链以外的侧链例如可以具有环状结构。侧链的环状结构例如为芳基。

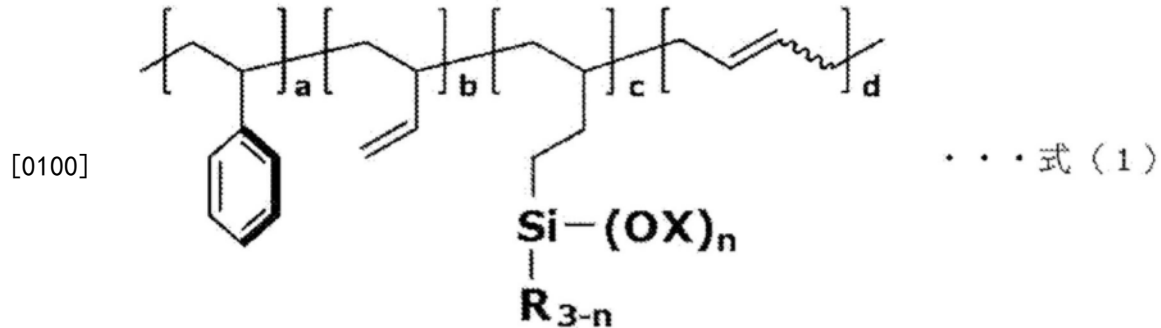
[0095] 含硅聚合物3可以包含具有选自由苯乙烯单元、丁二烯单元、乙烯单元和硅氧烷单元组成的组中的至少1个的主链。根据以上构成,含硅聚合物3的疏水性提高,因此氮化硼材料10的耐热性提高。

[0096] 含硅聚合物3可以包含具有丁二烯单元的主链。根据以上构成,含硅聚合物3的疏水性进一步提高,因此氮化硼材料10的耐热性进一步提高。

[0097] 含硅聚合物3可以包含具有苯乙烯单元和丁二烯单元的共聚物。根据以上构成,含硅聚合物3的疏水性进一步提高,因此氮化硼材料10的耐热性进一步提高。

[0098] 含硅聚合物3可以由包含多个重复单元的下述式(1)表示。根据以上构成,氮化硼材料10的耐热性进一步提高。

[0099] [化学式3]



[0101] 在上述式(1)中,a和d表示0以上的数,b和c表示大于0的数。其中,在前述式(1)中,前述多个重复单元的顺序是任意的。 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团如上述说明。需要说明的是,在上述式(1)的d部分中,波浪线表示的键是指反式或顺式中的任一种、或两者的混合物。

[0102] 含硅聚合物3可以在上述式(1)中满足 $0 \leq a \leq 500$ 、 $1 \leq b \leq 500$ 、 $1 \leq c \leq 500$ 、 $0 \leq d \leq 500$,也可以满足 $5 \leq a \leq 300$ 、 $5 \leq b \leq 300$ 、 $1 \leq c \leq 100$ 、 $5 \leq d \leq 300$ 。

[0103] 含硅聚合物3可以在上述式(1)中满足 $5 \leq a \leq 100$ 、 $5 \leq b \leq 100$ 、 $1 \leq c \leq 80$ 、 $5 \leq d \leq 100$,也可以满足 $5 \leq a \leq 20$ 、 $5 \leq b \leq 50$ 、 $1 \leq c \leq 60$ 、 $5 \leq d \leq 40$ 。

[0104] 在上述式(1)中,c表示在侧链具有硅和氧的丁二烯单元的重复数。(b+c+d)表示具有重复数b的丁二烯单元、具有重复数c的丁二烯单元和具有重复数d的丁二烯单元的总和。含硅聚合物3可以在上述式(1)中满足 $0.050 \leq c/(b+c+d)$ 。换言之,在上述式(1)中,由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的值可以为5.0%以上。根据以上构成,氮化硼材料10的耐热性更进一步提高。此外,氮化硼材料10的介电性能也提高。在上述式(1)中,由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的值可以为15.0%以上,也可以为17.7%以上。由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的值可以为30.0%以上,也可以为50.0%以上。由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的值的上限例如为80%。

[0105] [氮化硼材料的制造方法]

[0106] 接着,对上述氮化硼材料10的制造方法进行说明。

[0107] 图2是示出实施方式1的氮化硼材料的制造方法的一例的流程图。氮化硼材料10的制造方法包括下述步骤:准备包含氮化硼1和附着于氮化硼1的表面的聚多巴胺2的基材(步骤S1);以及使含硅聚合物3接触上述基材(步骤S2)。

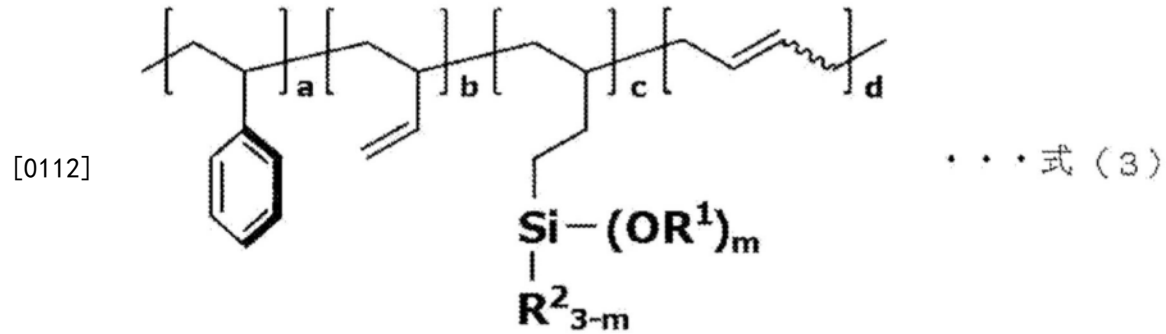
[0108] 包含氮化硼1和附着于氮化硼1的表面的聚多巴胺2的基材可以利用多巴胺的自氧化聚合使聚多巴胺2附着在氮化硼1的表面来得到。具体而言,通过使多巴胺溶液与氮化硼1的颗粒接触并使多巴胺进行氧化聚合,能够使聚多巴胺2附着在氮化硼1的颗粒的表面,形成聚多巴胺2的薄膜。

[0109] 通过向pH调节至8.5的Tris-HCl溶液中加入盐酸多巴胺并搅拌,可以得到多巴胺溶液。多巴胺溶液的浓度没有特别限制,例如为0.01mg/mL~30mg/mL的范围。多巴胺溶液的pH为pH6~pH11的范围,可以为pH8~pH10的范围。多巴胺溶液的pH可以通过混合Tris-HCl

溶液等来调节。氧化聚合时的多巴胺溶液的温度例如为10°C ~ 100°C。聚合时间例如为1小时 ~ 48小时。聚多巴胺2的薄膜的厚度例如为1nm ~ 300nm。聚多巴胺2的薄膜的厚度可以通过聚合时间来控制。

[0110] 在此,上述式(1)所示的含硅聚合物3与聚多巴胺2键合前的状态由下述式(3)表示。

[0111] [化学式4]



[0113] 在上述式(3)中, R^1 和 R^2 彼此独立地表示碳数1 ~ 10的烃基。 m 表示1 ~ 3的整数。 a 和 d 表示0以上的数, b 和 c 表示大于0的数。

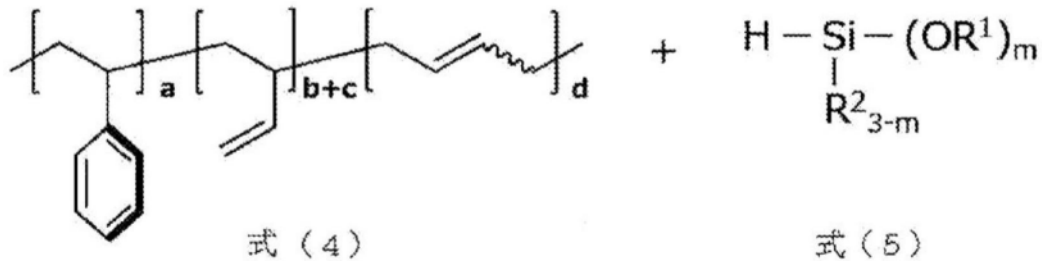
[0114] 在上述式(3)中, R^1 和 R^2 可以彼此独立地表示碳数1 ~ 10的烷基、或碳数6 ~ 10的芳基。

[0115] 碳数1 ~ 10的烷基和碳数6 ~ 10的芳基如关于 $-\text{SiR}_{3-n}(\text{OX})_n$ 表示的官能团的说明。其中,在上述式(3)中,作为碳数1 ~ 10的烷基,理想的是碳数1 ~ 5的烷基,更理想的是碳数1 ~ 3的烷基。作为 R^1 和 R^2 ,彼此独立地,理想的是直链的烷基,更理想的是甲基或乙基。

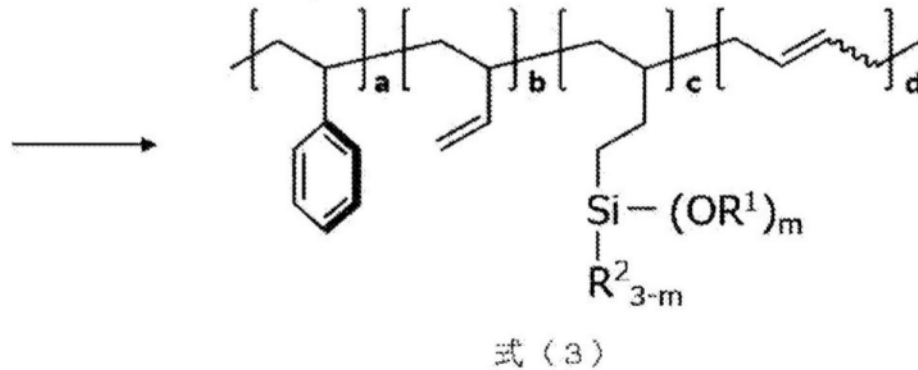
[0116] 在频率从GHz到THz的高频段中,布线板的材料的介电损耗角正切大大依赖于布线板的材料中包含的有机分子的取向极化。因此,聚多巴胺的羟基可以使介电损耗角正切上升。然而,上述式(3)所示的含硅聚合物通过作用于聚多巴胺的羟基而与聚多巴胺键合。键合后的含硅聚合物由上述式(1)表示。氮化硼材料10由于聚多巴胺的羟基的数量被减少,因此可抑制氮化硼材料10的介电损耗角正切的上升。

[0117] 上述式(3)所示的含硅聚合物可以经由下述机理图所示的反应来得到。具体而言,使下述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物与下述式(5)所示的有机硅化合物,在含铂化合物的催化剂的存在下,理想的是在含铂化合物的催化剂和助催化剂的存在下,进行氢化硅烷化。由此,可以得到上述式(3)所示的含硅聚合物。

[0118] [化学式5]



[0119]



[0120] 上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物可以将丁二烯和苯乙烯作为原料单体通过乳液聚合或溶液聚合等公知的方法来合成。上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物也可以作为市售品购得。作为市售品,例如可列举出Ricon100、Ricon181、Ricon184(以上为Cray Valley公司制造),L-SBR-820、L-SBR-841(以上为株式会社可乐丽制造),1,2-SBS(以上为日本曹达株式会社制造)等。

[0121] 作为上述式(5)所示的有机硅化合物,例如可列举出三甲氧基硅烷、甲基二甲氧基硅烷、二甲基甲氧基硅烷、三乙氧基硅烷、甲基二乙氧基硅烷、二甲基乙氧基硅烷等。

[0122] 需要说明的是,在含硅聚合物键合于聚多巴胺2之前和键合之后,c的值维持不变。即,上述式(3)中的c的值与上述式(1)中的c的值相等。因此,在上述式(3)中由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的甲硅烷基化率可以视为在上述式(1)中由 $100 \times \{c/(b+c+d)\}$ 算出的甲硅烷基化率。

[0123] 在与聚多巴胺2键合之前的状态下,含硅聚合物的数均分子量可以为1200以上,也可以为5000以上。根据以上构成,含硅聚合物3的疏水性提高,因此氮化硼材料10的耐热性提高。键合于聚多巴胺之前的含硅聚合物的数均分子量的上限没有特别限定。键合于聚多巴胺2之前的含硅聚合物的数均分子量的上限例如为10000以下。需要说明的是,在本公开中,数均分子量是使用凝胶渗透色谱(GPC)算出的聚苯乙烯换算的数均分子量。

[0124] 在步骤S2中,可以使含硅聚合物3键合于聚多巴胺2。例如,在键合于聚多巴胺2之前的含硅聚合物由上述式(3)表示的情况下,可以通过硅烷偶联反应使含硅聚合物3键合于聚多巴胺2。硅烷偶联反应如下进行。首先,上述式(3)所示的含硅聚合物发生水解,生成硅烷醇基(Si-OH)。接着,硅烷醇基通过局部地与聚多巴胺2的羟基的脱水缩合而与聚多巴胺2键合。此时,含硅聚合物会具有由脱水缩合形成的硅氧烷单元(Si-O-Si)。然后,通过实施加热处理,推进脱水缩合,使含硅聚合物3借助硅原子和氧原子键合于聚多巴胺2的苯环。

[0125] (实施方式2)

[0126] 本实施方式的散热间隙填料包含实施方式1的氮化硼材料10。

[0127] 在本公开中,散热间隙填料是指,用于通过涂布于基板材料等电子部件来填充气穴或间隙等而使热量自电子部件发散的填料。散热间隙填料是从糊剂状固化成片状的固化型的散热糊剂。根据本实施方式的散热间隙填料,能够改善填料的耐热性。

[0128] 本实施方式的散热间隙填料例如可以通过对实施方式1的氮化硼材料10、以及环氧树脂或有机硅系树脂、或者非有机硅系的丙烯酸系树脂或陶瓷系树脂进行混炼来制造。

[0129] (实施方式3)

[0130] 本实施方式的散热润滑脂用填料包含实施方式1的氮化硼材料10。

[0131] 在本公开中,散热润滑脂用填料是指在散热润滑脂中使用的填料。散热润滑脂是用于通过涂布于基板材料等电子部件来填充气穴或间隙等而使热量自电子部件发散的的非固化型的散热糊剂。根据本实施方式的散热润滑脂用填料,能够改善填料的耐热性。

[0132] 本实施方式的散热润滑脂用填料例如可以通过对实施方式1的氮化硼材料10、以及环氧树脂或有机硅系树脂、或者非有机硅系的丙烯酸系树脂或陶瓷系树脂进行混炼来制造。

[0133] (实施方式4)

[0134] 图3是示出实施方式4的树脂组合物20的示意构成的图。树脂组合物20例如包含填料22和固化性树脂24。

[0135] 填料22包含实施方式1中说明的氮化硼材料10。根据本实施方式,能够提供显示出低的介电损耗角正切并且耐热性优异的树脂组合物20。作为填料22,可以仅使用氮化硼材料10,也可以将二氧化硅颗粒等其他填料用材料与氮化硼材料10并用。

[0136] 作为固化性树脂24,可列举出环氧树脂、氰酸酯化合物、马来酰亚胺化合物、酚醛树脂、丙烯酸类树脂、聚酰胺树脂、聚酰胺酰亚胺树脂、热固性聚酰胺树脂、聚苯醚树脂等。作为固化性树脂24,可以使用选自它们中的1种或2种以上的组合。

[0137] 树脂组合物20可以含有其他成分。作为其他成分,可列举出固化剂、阻燃剂、紫外线吸收剂、抗氧化剂、反应引发剂、硅烷偶联剂、荧光增白剂、光敏剂、染料、颜料、增粘剂、润滑剂、消泡剂、分散剂、流平剂、光泽剂、抗静电剂、阻聚剂、有机溶剂等。根据需要,可以使用选自它们中的1种或2种以上的组合。

[0138] (实施方式5)

[0139] 实施方式5的预浸料具备图3所示的实施方式4的树脂组合物20或其半固化物、以及纤维质基材。纤维质基材存在于树脂组合物20或其半固化物的基体中。预浸料为树脂组合物20与纤维质基材的复合材料。根据本实施方式,能够提供适合于支持高频的布线板的预浸料。

[0140] 在本实施方式中,半固化物表示使树脂组合物20以可以进一步固化的程度固化至中途的状态的材料。即,半固化物是使树脂组合物20半固化的状态的材料。例如,树脂组合物20如果加热,则其粘度缓慢降低。如果继续加热,则之后开始固化,其粘度缓慢上升。在这种情况下,作为半固化的状态,可列举出从粘度开始上升的时刻到完全固化的时刻为止的期间的树脂组合物20的状态。

[0141] 作为纤维质基材,可以使用在各种电绝缘材料用层叠板中使用的公知的材料。作为纤维质基材,可列举出玻璃布、芳纶布、聚酯布、玻璃无纺布、芳纶无纺布、聚酯无纺布、纸浆纸、棉绒纸(linter paper)等。

[0142] 树脂组合物20通过浸渍、涂布等处理而被含浸在纤维质基材中。通过对含浸有树脂组合物20的纤维质基材在规定的加热条件下进行加热,可得到本实施方式的固化前或半固化状态的预浸料。

[0143] (实施方式6)

[0144] 图4是实施方式6的带树脂的薄膜30的剖视图。带树脂的薄膜30具备包含树脂组合物20或其半固化物的树脂层32、以及支承薄膜34。根据本实施方式,能够提供适合于绝缘层的带树脂的薄膜30。树脂层32由支承薄膜34支承。图4的例子在树脂层32的表面上配置有支承薄膜34。不过,也可以在树脂层32与支承薄膜34之间设置粘合层等其他层。

[0145] 树脂层32包含图3所示的实施方式4的树脂组合物20或其半固化物,可以包含或不包含纤维质基材。作为纤维质基材,可以使用与预浸料的纤维质基材相同的材料。树脂层32发生固化而变化成绝缘层。这种绝缘层的例子有布线板的绝缘层。

[0146] 作为支承薄膜34,可以没有限定地使用在带树脂的薄膜中使用的支承薄膜。作为支承薄膜34,可列举出聚酯薄膜、聚对苯二甲酸乙二醇酯薄膜等树脂薄膜。

[0147] (实施方式7)

[0148] 图5是实施方式7的带树脂的金属箔40的剖视图。带树脂的金属箔40具备包含树脂组合物20或其半固化物的树脂层42、以及金属箔44。树脂层42由金属箔44支承。根据本实施方式,能够提供适合于布线板等电子电路部件的带树脂的金属箔40。图5的例子在树脂层42的表面上配置有金属箔44。不过,也可以在树脂层42与金属箔44之间设置粘合层等其他层。

[0149] 树脂层42包含图3所示的实施方式4的树脂组合物或其半固化物,可以包含或不包含纤维质基材。作为纤维质基材,可以使用与预浸料的纤维质基材相同的材料。树脂层42发生固化而变化成绝缘层。这种绝缘层的例子有布线板的绝缘层。

[0150] 作为金属箔44,可以没有限定地使用在带树脂的金属箔和覆金属层叠板中使用的金属箔。作为金属箔,可列举出铜箔、铝箔等。

[0151] (实施方式8)

[0152] 图6是实施方式8的覆金属层叠板50的剖视图。覆金属层叠板50具备绝缘层52以及至少1个金属箔54。根据本实施方式,能够提供适合于布线板的覆金属层叠板50。绝缘层52包含图3所示的实施方式4的树脂组合物20的固化物或实施方式5的预浸料的固化物。金属箔54配置在绝缘层52的表面上。本实施方式在绝缘层52的表面和背面分别配置有金属箔54。

[0153] 覆金属层叠板50典型的是使用实施方式5的预浸料来制造。例如,将1~20张预浸料叠合形成层叠体。通过在预浸料的层叠体的单面或两面配置金属箔并进行加热和加压,可得到覆金属层叠板50。作为金属箔54,可列举出铜箔、铝箔等。

[0154] 对于制造覆金属层叠板50时的成形条件,例如可应用制造电绝缘材料用层叠板和多层板时的成形条件。

[0155] (实施方式9)

[0156] 图7是实施方式9的布线板60的剖视图。布线板60具备绝缘层62以及布线64。根据本实施方式,能够提供适合于高频的布线板60。绝缘层62包含图3所示的实施方式4的树脂组合物20的固化物或实施方式5的预浸料的固化物。布线64由绝缘层62支承。详细而言,布线64配置在绝缘层62上。通过将金属箔局部去除,可以形成布线64。

[0157] 通过用蚀刻加工等方法对图6所示的覆金属层叠板50的表面的金属箔54进行图案化,可得到在绝缘层62的表面上设置有形成电路的布线64的布线板60。即,布线板60通过以形成电路的方式将覆金属层叠板50的表面的金属箔54局部去除而得到。

[0158] 通过在布线板60的至少一面层叠实施方式5的预浸料并进行加热和加压,可以形成新的层叠板。如果对所得层叠板的表面的金属箔进行图案化来形成布线,则可得到多层的布线板。

[0159] 实施例

[0160] 以下给出实施例,对本公开进行具体说明。实施例用于对本公开进行说明,而非加以限制。

[0161] 《实施例1》

[0162] 作为氮化硼,使用h-BN(电气化学株式会社制造、产品号:SGP、平均粒径:18 μ m)。通过向pH调节至8.5的Tris-HCl溶液中加入盐酸多巴胺并搅拌,得到多巴胺溶液(浓度:23mg/mL)。向所得多巴胺溶液中加入氮化硼4.5g。将溶液温度设定为80 $^{\circ}$ C,用磁力搅拌器搅拌24小时。然后,通过过滤得到固体。将所得固体水洗后干燥。由此,得到附着有聚多巴胺的氮化硼(以下为了方便而称为聚多巴胺被覆氮化硼)。聚多巴胺的附着通过氮化硼的颗粒的表面着色成黑褐色来确认。

[0163] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、b+c=44)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、m=3、R¹=乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例1的含硅聚合物。实施例1的含硅聚合物在上述式(3)中满足a=11、b=26、c=4、d=32、m=3、R¹=乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为6.5%。需要说明的是,在本实施例中,甲硅烷基化率通过使用核磁共振波谱(NMR)算出导入有-SiR_{3-m}²(OR¹)_m表示的官能团的末端和未导入的末端的比率来确认。接着,将1g含硅聚合物溶于甲苯,得到具有100mg/mL的浓度的甲苯溶液。向所得溶液中加入2g聚多巴胺被覆氮化硼。将溶液温度设定为100 $^{\circ}$ C,用磁力搅拌器搅拌3小时。然后,通过过滤得到固体。将所得固体用甲苯溶液洗涤后,进行干燥。由此,得到实施例1的氮化硼材料的颗粒。

[0164] 《实施例2》

[0165] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、b+c=44)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、m=3、R¹=乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例2的含硅聚合物。实施例2的含硅聚合物在上述式(3)中满足a=11、b=23、c=8、d=31、m=3、R¹=乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为12.9%。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例2的氮化硼材料的颗粒。

[0166] 《实施例3》

[0167] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、b+c=44)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、m=3、R¹=乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例3的含硅聚合物。实施例3的含硅聚合物在上述式(3)中满足a=11、b=33、c=11、d=18、m=3、R¹=乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为17.7%。含硅聚合物的数均分子量为

5900。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例3的氮化硼材料的颗粒。

[0168] 《实施例4》

[0169] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、 $b+c=44$)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、 $m=3$ 、 R^1 =乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例4的含硅聚合物。实施例4的含硅聚合物在上述式(3)中满足 $a=11$ 、 $b=12$ 、 $c=31$ 、 $d=19$ 、 $m=3$ 、 R^1 =乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为50.0%。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例4的氮化硼材料的颗粒。

[0170] 《实施例5》

[0171] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、 $b+c=44$)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、 $m=3$ 、 R^1 =乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例5的含硅聚合物。实施例5的含硅聚合物在上述式(3)中满足 $a=11$ 、 $b=5$ 、 $c=44$ 、 $d=13$ 、 $m=3$ 、 R^1 =乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为71.0%。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例5的氮化硼材料的颗粒。

[0172] 《实施例6》

[0173] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、 $b+c=44$)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、 $m=3$ 、 R^1 =乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例6的含硅聚合物。实施例6的含硅聚合物在上述式(3)中满足 $a=11$ 、 $b=38$ 、 $c=1$ 、 $d=23$ 、 $m=3$ 、 R^1 =乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为1.6%。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例6的氮化硼材料的颗粒。

[0174] 《实施例7》

[0175] 使上述式(4)所示的苯乙烯-丁二烯共聚物(RICON公司制造、产品号:RICON100、 $b+c=44$)与上述式(5)所示的有机硅化合物(东京化成工业株式会社制造、产品号:T1040、 $m=3$ 、 R^1 =乙基)在含铂化合物的催化剂的存在下进行氢化硅烷化。由此,得到上述式(3)所示的实施例7的含硅聚合物。实施例7的含硅聚合物在上述式(3)中满足 $a=11$ 、 $b=27$ 、 $c=2$ 、 $d=33$ 、 $m=3$ 、 R^1 =乙基。含硅聚合物的甲硅烷基化率为3.2%。除此之外,通过与实施例1同样的方法得到实施例7的氮化硼材料的颗粒。

[0176] 《比较例1》

[0177] 代替含硅聚合物,使用3-甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷(信越化学工业株式会社制造、产品号:KBM-503)。甲基丙烯酰基硅烷为由含硅低分子化合物形成的常规硅烷偶联剂之一。3-甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷的分子量为248.4。将1g的3-甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷溶于甲苯,得到具有0.1mg/mL的浓度的甲苯溶液。向所得溶液中加入2g聚多巴胺被覆氮化硼。将溶液温度设定为100°C,用磁力搅拌器搅拌3小时。然后,通过过滤得到固体。将所得固体用甲苯溶液洗涤后,进行干燥。由此,得到比较例1的颗粒。

[0178] 《比较例2》

[0179] 代替含硅聚合物,使用三甲氧基乙烯基硅烷(东京化成工业株式会社制造、产品号:V0042)。乙烯基硅烷为由含硅低分子化合物形成的常规硅烷偶联剂之一。三甲氧基乙烯

基硅烷的分子量为148.2。将1g的三甲氧基乙烯基硅烷溶于甲苯,得到具有0.1mg/mL的浓度的甲苯溶液。除此之外,通过与比较例1同样的方法得到比较例2的颗粒。

[0180] 《比较例3》

[0181] 作为比较例3的颗粒,使用通过与实施例1同样的方法得到的聚多巴胺被覆氮化硼。

[0182] 对于上述实施例和比较例中得到的各颗粒,基于以下记载的方法评价耐热性和介电损耗角正切。

[0183] [耐热性]

[0184] 对于实施例和比较例中得到的各颗粒组,在氮气气氛下,测定以升温速度5°C/分钟从20°C升温至500°C时的重量变化。以加热开始时(20°C)的重量作为起点,测定失重率为1%时的温度(1%失重温度)。作为测定装置,使用热重分析装置(Hitachi High-Tech Corporation制造、TG/DTA7200)。

[0185] 基于测得的1%失重温度,评价各颗粒组的耐热性。如果1%失重温度为220°C以上,则判断为耐热性良好,如果为250°C以上,则判断为耐热性特别良好。

[0186] [介电损耗角正切]

[0187] 对于实施例和比较例中得到的各颗粒组,测定1GHz的频率下的介电损耗角正切。作为测定装置,使用空腔谐振器(AET, INC.制造、MS46122B)。

[0188] 设比较例3的介电损耗角正切为1,对实施例和其他比较例的颗粒的介电损耗角正切进行标准化。如果小于1,则判断为介电损耗角正切良好,如果为0.5以下,则判断为介电损耗角正切特别良好。

[0189] 将实施例和比较例的1%失重温度和介电损耗角正切与甲硅烷基化率一并示于表1。

[0190] [表1]

	甲硅烷基化率 (%)	1%失重温度 (°C)	介电损耗角正切 (设比较例3为1进行标准化)
实施例1	6.5	253	0.91
实施例2	12.9	250	0.84
实施例3	17.7	263	0.67
实施例4	50.0	302	0.44
实施例5	71.0	369	0.34
实施例6	1.6	222	0.96
实施例7	3.2	221	0.94
比较例1	-	197	0.63
比较例2	-	176	0.54
比较例3	-	219	1

[0192] 《考察》

[0193] 由表1可知,实施例1~7的1%失重温度为220°C以上,耐热性有所提高。进而,实施例1~7的介电损耗角正切小于1,介电损耗角正切也有所降低。

[0194] 甲硅烷基化率为5.0%以上的实施例1~5的1%失重温度为250°C以上,耐热性特别良好。甲硅烷基化率为15.0%以上的实施例3~5实现了更高的耐热性和更低的介电损耗角正切。特别是甲硅烷基化率为30.0%以上的实施例4和5的1%失重温度为300°C以上,显示出更高的耐热性,并且介电损耗角正切为0.5以下,介电损耗角正切特别良好。

[0195] 为了表达本公开,在上述通过实施方式对本公开进行了恰当且充分的说明,但应认识到,只要是本领域技术人员,就能够容易地对上述实施方式进行变更和/或改良。因此,只要本领域技术人员所实施的变更形态或改良形态为不脱离权利要求书所记载的权利要求的权利范围的水平的形态,则该变更形态或该改良形态应解释为落入该权利要求的权利范围。

[0196] 产业上的可利用性

[0197] 本公开的氮化硼材料能够实现耐热性优异的填料,因此能够用于在大容量通信中使用的电子设备的布线板等用途。

[0198] 符号说明

[0199] 1 氮化硼

[0200] 2 聚多巴胺

[0201] 3 含硅聚合物

[0202] 10 氮化硼材料

[0203] 20 树脂组合物

[0204] 22 填料

[0205] 24 固化性树脂

[0206] 30 带树脂的薄膜

[0207] 32 树脂层

[0208] 34 支承薄膜

[0209] 40 带树脂的金属箔

[0210] 42 树脂层

[0211] 44 金属箔

[0212] 50 覆金属层叠板

[0213] 52 绝缘层

[0214] 54 金属箔

[0215] 60 布线板

[0216] 62 绝缘层

[0217] 64 布线

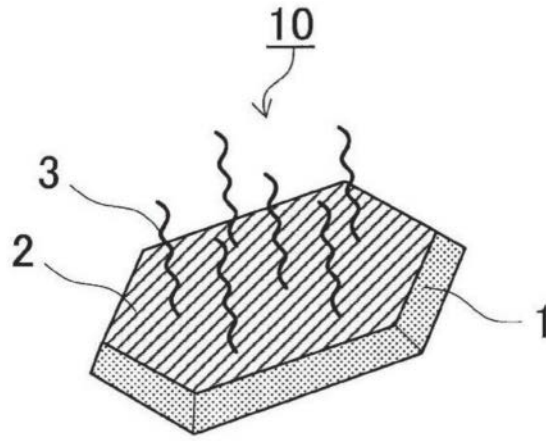


图1

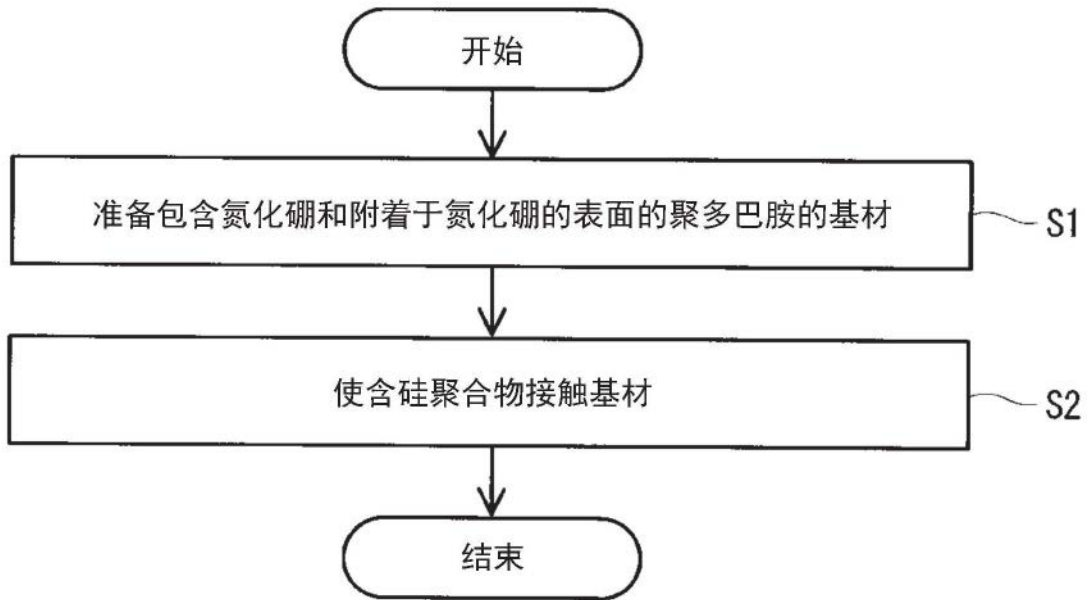


图2

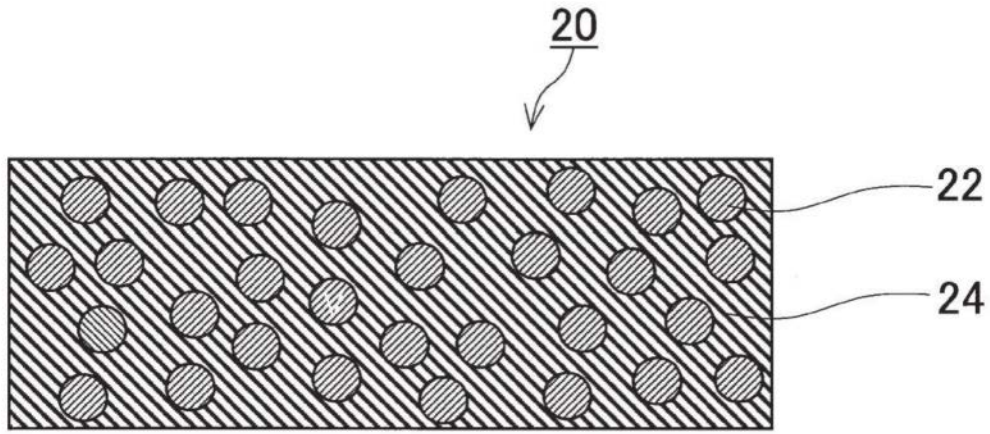


图3

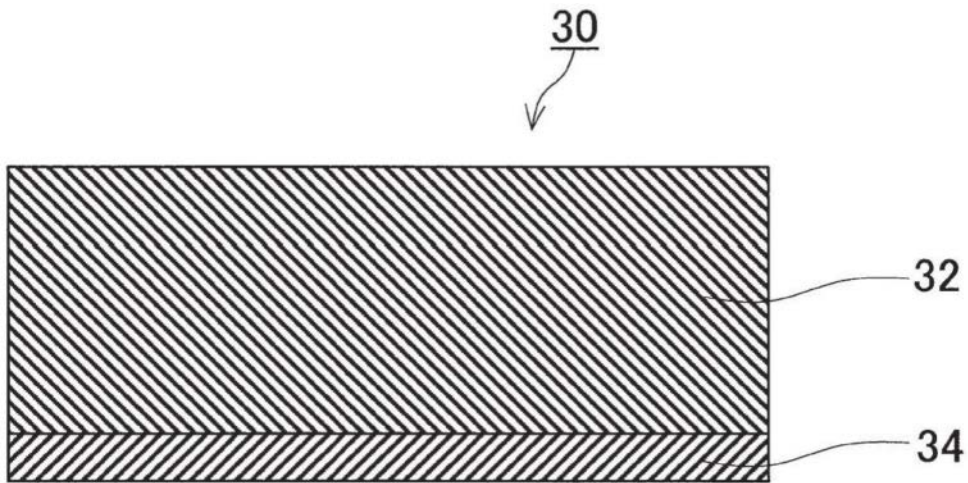


图4

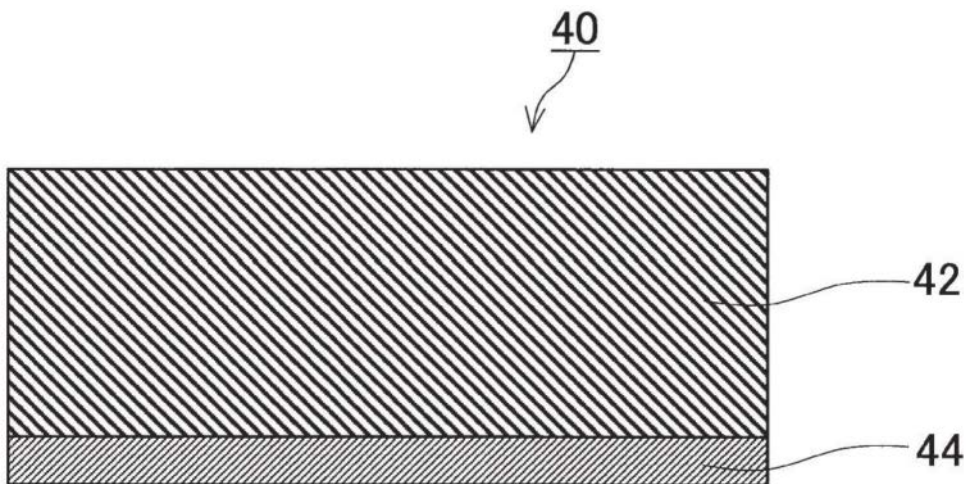


图5

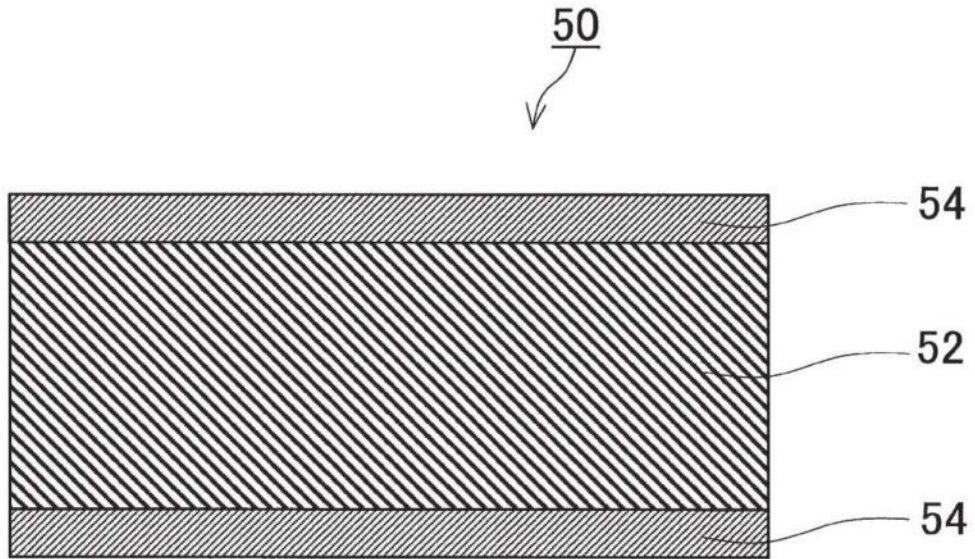


图6

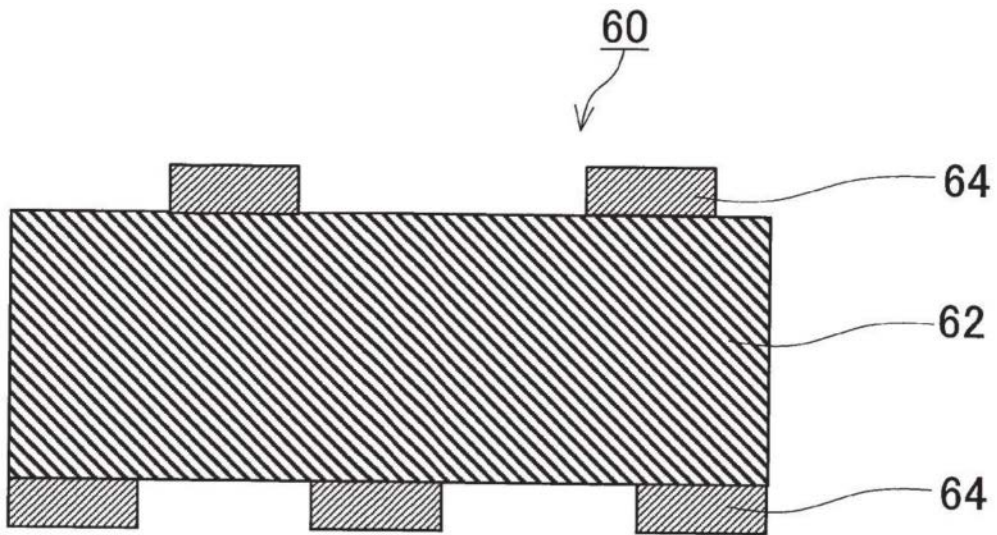


图7

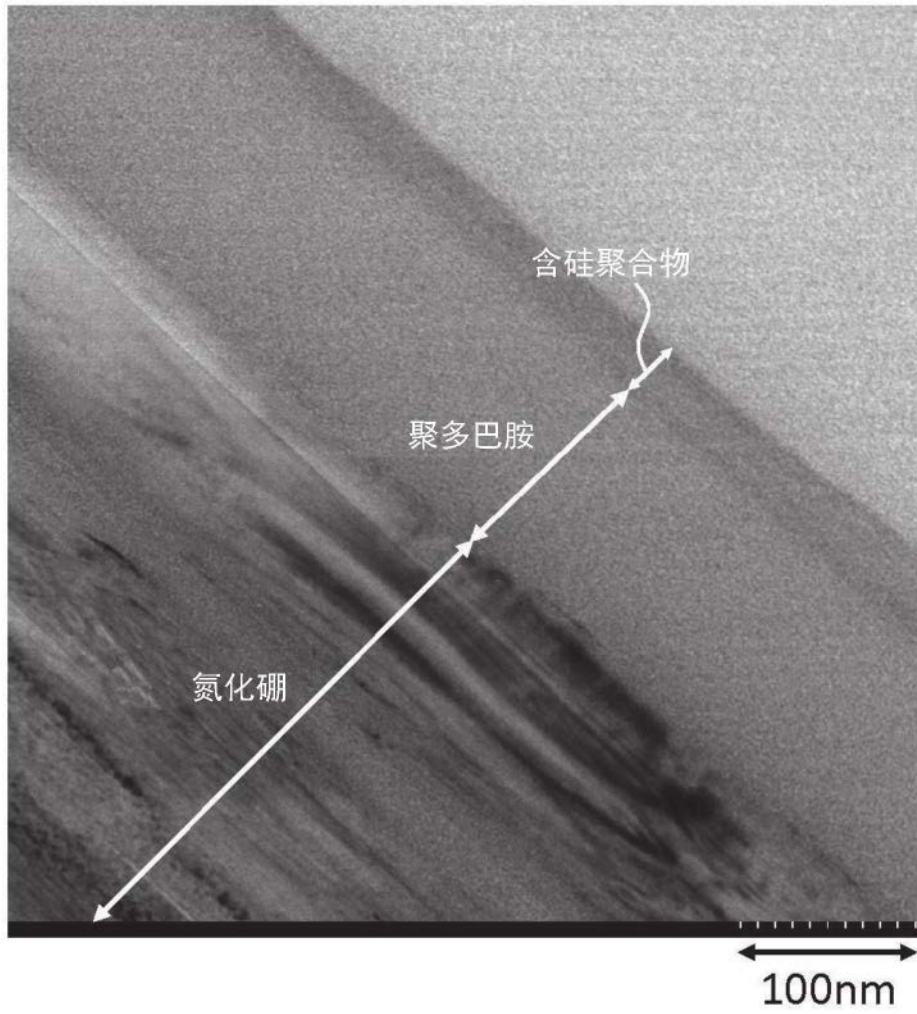


图8