



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 102939671 A

(43) 申请公布日 2013. 02. 20

(21) 申请号 201180026854. 1

(51) Int. Cl.

(22) 申请日 2011. 04. 05

H01L 33/64 (2006. 01)

(30) 优先权数据

2010-092685 2010. 04. 13 JP

(85) PCT申请进入国家阶段日

2012. 11. 30

(86) PCT申请的申请数据

PCT/JP2011/058649 2011. 04. 05

(87) PCT申请的公布数据

W02011/129232 JA 2011. 10. 20

(71) 申请人 宇部兴产株式会社

地址 日本山口县宇部市

(72) 发明人 山口茂康 中山修 长尾圭吾

河内山拓郎 水垂敦

(74) 专利代理机构 北京同立钧成知识产权代理
有限公司 11205

代理人 臧建明

权利要求书 1 页 说明书 17 页

(54) 发明名称

LED 散热基板

(57) 摘要

一种 LED 散热基板包括层压在聚酰亚胺膜一侧的铜箔或铜合金箔, 以及层压在所述聚酰亚胺膜另一侧的铝箔或铝合金箔。所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻为 $1.8^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小。

1. 一种 LED 散热基板,包括:
聚酰亚胺膜;
铜箔或铜合金箔,所述铜箔或铜合金箔层压在所述聚酰亚胺膜的一侧;以及
铝箔或铝合金箔,所述铝箔或铝合金箔层压在所述聚酰亚胺膜的另一侧;
其中,所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻为
1.8°C/W 或更小。
2. 根据权利要求 1 所述的 LED 散热基板,其中所述铝箔或铝合金箔不经过阳极化处理
(铝阳极化处理)。
3. 根据权利要求 1 或 2 所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜的厚度为 3 μm 至
25 μm。
4. 根据权利要求 1 至 3 任一项所述的 LED 散热基板,其中接合至所述铜箔或铜合金箔
的所述聚酰亚胺膜的表面,和接合至所述铝箔或铝合金箔的所述聚酰亚胺膜的表面,包括
热压接合聚酰亚胺层。
5. 根据权利要求 4 所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜包括耐热聚酰亚胺层和
热压接合聚酰亚胺层,其层压在所述耐热聚酰亚胺层的两侧。
6. 根据权利要求 1 至 5 任一项所述的 LED 散热基板,其中所述铜箔或铜合金箔的厚度
为 9 μm 至 200 μm,所述铝箔或铝合金箔的厚度为 200 μm 至 1mm。
7. 根据权利要求 1 至 6 任一项所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜、所述铜箔或
铜合金箔、和所述铝箔或铝合金箔使用热压成型机接合在一起。

LED 散热基板

技术领域

[0001] 本发明涉及一种 LED 散热基板。更具体地,本发明涉及一种薄的、可弯曲且可三维处理的 LED 散热基板。

背景技术

[0002] 近年来,含有 LED(发光二极管)作为光源的 LED 照明装置因其功耗低,寿命长,需求量正在迅速增长。然而,LED 点亮时,会产生热量。当产生的热量把 LED 加热到高温时,LED 的发光效率可能会显著降低,且 LED 的寿命可能会受到影响。特别是高功率、高亮度 LED,其点亮时会产生大量的热量,因而,为了避免 LED 温度的升高,LED 的散热变得尤为重要。

[0003] 因此,具有优良的散热性能的散热基板用作 LED 安装的基板。常用的散热基板包括作为绝缘层的环氧树脂膜,层压在环氧树脂膜一侧的铜箔,以及层压在环氧树脂膜另一侧的铝箔。然而,在耐电压方面,如果环氧树脂膜用作绝缘层,必须使用厚度约为 1mm,至少约 100 μm 或更大的环氧树脂膜。同时,由于这种厚度的环氧树脂膜具有较高的热阻,为了实现足够的散热,必须在环氧树脂膜中加入大量的具有高热导率的无机填料,诸如氧化铝,以降低热阻。然而,这种含有大量的无机填料的 LED 散热基板,可能具有低的可加工性低,并且加工(机械加工)过程中,该填料可能会散落在四周,这样可能会造成问题。另外,这种 LED 散热基板不能弯曲,也不能三维处理(或制造)。当 LED 散热基板为三维可处理的时,电路的设计自由度增加。因此,需要具有良好的弯曲性能的 LED 散热基板。

[0004] 专利文件 1 公开了一种 LED 照明装置,包括:

[0005] 基板本体,所述基板本体由包括某种三维形式的聚酰亚胺的热塑性耐热膜形成;

[0006] 一个或多个表面安装型的 LED,所述 LED 安装在基板本体的适当位置;以及

[0007] 导电电路,所述导电电路安装在所述基板本体的表面或背面,并把 LED 连接至外部电路并打开 LED;

[0008] 其中,金属制成的散热层形成在所述基板本体之上并与所述导电电路相对。

[0009] 专利文件 2 公开了一种解决散热的包铜薄板,该包铜薄板具有高热导率,包括:

[0010] 多层聚酰亚胺膜,其中聚酰亚胺底层(X)具有较低的热膨胀系数,两个聚酰亚胺薄层(Y)包括层压在一起并集成的特定的酰亚胺单元,所述聚酰亚胺薄层(Y)层压在所述聚酰亚胺底层(X)的两侧;

[0011] 铜箔,所述铜箔层压在所述聚酰亚胺膜的一侧上;以及

[0012] 具有高热导率的金属薄板或陶瓷薄板,包括厚度为 5 μm 至 2mm 的铝薄板,所述铝薄板层压在所述聚酰亚胺膜的另一侧上。

[0013] 另外,专利文件 3 公开了一种用于 LED 安装和互连的层压板,包括基板上的铜或铝金属层,邻近所述金属层的聚酰亚胺层或粘接层,铜箔层以及液体或膜阻焊层。

[0014] 引用文件清单

[0015] 专利文件

[0016] 专利文件 1 :JP-A-2008-293692

[0017] 专利文件 2 :JP-A-2003-71982

[0018] 专利文件 3 :WO 2009/073670

发明内容

[0019] 本发明要解决的问题

[0020] 本发明的目的在于提供一种 LED 散热基板,该基板为薄板并具有优良的散热性能和耐电压性能,也具有有良好的弯曲性能,因此为三维可加工的。

[0021] 解决问题的手段

[0022] 本发明涉及以下内容:

[0023] (1) 一种 LED 散热基板,包括:

[0024] 聚酰亚胺膜;

[0025] 铜箔或铜合金箔,其层压在所述聚酰亚胺膜的一侧;以及

[0026] 铝箔或铝合金箔,其层压在所述聚酰亚胺膜的另一侧;

[0027] 其中,所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻为 $1.8^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小。

[0028] (2) 根据 (1) 所述的 LED 散热基板,其中所述铝箔或铝合金箔没有经过阳极化处理(铝阳极化处理(alumite treatment))。

[0029] (3) 根据 (1) 或 (2) 所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜的厚度为 $3\mu\text{m}$ 至 $25\mu\text{m}$ 。

[0030] (4) 根据 (1) 至 (3) 任一项所述的 LED 散热基板,其中接合至铜箔或铜合金箔的所述聚酰亚胺膜的表面和接合至铝箔或铝合金箔的所述聚酰亚胺膜的表面包括热压接合聚酰亚胺层。

[0031] (5) 根据 (4) 所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜包括耐热聚酰亚胺层和热压接合聚酰亚胺层,其中所述热压接合聚酰亚胺层层压在所述耐热聚酰亚胺层的两侧。

[0032] (6) 根据 (1) 至 (5) 任一项所述的 LED 散热基板,其中所述铜箔或铜合金箔的厚度为 $9\mu\text{m}$ 至 $200\mu\text{m}$,所述铝箔或铝合金箔的厚度为 $200\mu\text{m}$ 至 1mm 。

[0033] (7) 根据 (1) 至 (6) 任一项所述的 LED 散热基板,其中所述聚酰亚胺膜、所述铜箔或铜合金箔、所述铝箔或铝合金箔使用热压成型机接合在一起。

[0034] 本文中,铜箔或铜合金箔的表面和铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻(也称为“铜箔和铝箔之间的热阻”)通常等于所述聚酰亚胺膜的热阻。

[0035] 发明效果

[0036] 本发明的 LED 散热基板包括铜箔或铜合金箔,以及铝箔或铝合金箔,它们分别层压在聚酰亚胺薄膜的一侧和另一侧;所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻为 $1.8^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小。尚不存在这样的 LED 散热基板:其薄、具有良好的弯曲性能、具有优异的散热性能并且耐压。

[0037] 聚酰亚胺膜具有优异的绝缘性能,因此较薄的聚酰亚胺膜提供足够的耐压性。由于聚酰亚胺膜可以非常薄,本发明的 LED 散热基板具有降低的总厚度,低热阻和优异的散热性能,也具有优异的机械可加工性(机械加工性)以及优良的弯曲性能,并因此为三维可加工的。本发明的 LED 散热基板可以“卷到卷”方法(roll-to-roll process)生产,该方

法适合大批量生产。

[0038] 铝箔或铝合金箔通常经过阳极化处理（铝阳极化处理），以便提高附着性。然而，经过阳极化处理的铝箔或铝合金箔在表面上具有厚度约为 $4\mu\text{m}$ 的厚的氧化膜，这种氧化膜比较硬。因此，包括此类型的铝箔或铝合金箔的 LED 散热基板可具有降低的弯曲性能。根据本发明，可优选使用没有经过阳极化处理的铝箔或铝合金箔。

具体实施方式

[0039] 本发明的 LED 散热基板包括铜箔或铜合金箔，以及铝箔或铝合金箔，所述铜箔或铜合金箔以及铝箔或铝合金箔分别层压在聚酰亚胺膜的一侧和另一侧；所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻为 $1.8^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小。所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻可优选为 $1.2^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小，更优选为 $0.8^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小，特别优选为 $0.6^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更小。

[0040] 所述铜箔或铜合金箔的表面与所述铝箔或铝合金箔的表面之间的热阻的下限例如可优选为，但不限于， $0.1^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更大，更优选为 $0.15^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更大，特别优选为 $0.2^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 或更大。

[0041] 根据本发明，铜箔或铜合金箔，以及铝箔或铝合金箔可优选直接层压在所述聚酰亚胺膜上，而不使用胶粘剂等。因此，接合至铜箔或铜合金箔的聚酰亚胺膜的表面，以及接合至铝箔或铝合金箔的聚酰亚胺膜的表面可优选为对金属展现优异附着性的聚酰亚胺层，更优选为对金属展现优异附着性的热压接合聚酰亚胺层。该聚酰亚胺膜可为对金属展现优异附着性的单层聚酰亚胺膜，特别是对金属展现优异附着性的单层热压接合聚酰亚胺膜，或可为这样一种聚酰亚胺膜：其中，对金属展现优异附着性的两个聚酰亚胺层层压在耐热聚酰亚胺层的两侧，特别是这样一种聚酰亚胺膜：其中，两个对金属展现优异附着性的热压接合聚酰亚胺层层压在耐热聚酰亚胺层的两侧。就优异的机械性能而言，优选的是这样的聚酰亚胺膜：其中对金属展现优异附着性的两个聚酰亚胺层、更优选热压接合聚酰亚胺层，层压在耐热聚酰亚胺层两侧。

[0042] 本发明中，聚酰亚胺膜可以在 LED 散热基板完成时以聚酰亚胺膜的形式提供。本发明的 LED 散热基板不限于通过把聚酰亚胺膜、铜箔或铜合金箔，以及铝箔或铝合金箔层压在一起制成的基板。本发明的 LED 散热基板可通过如下制得：例如在铜箔或铜合金箔上流延或施用聚酰亚胺前体溶液，例如聚酰胺酸溶液；加热所述溶液以产生亚胺化反应，由此制得聚酰亚胺膜；然后把铝箔或铝合金箔层压在聚酰亚胺膜上，例如通过热压接合等。

[0043] 下文将说明聚酰亚胺膜和 LED 散热基板的制造方法。

[0044] 本发明中使用的铜箔或铜合金箔可优选为，但不限于，铜箔，特别优选为压延铜箔或电解铜箔。

[0045] 铜箔或铜合金箔的厚度可优选为 $9\mu\text{m}$ 至 $200\mu\text{m}$ ，更优选为 $1\mu\text{m}$ 至 $200\mu\text{m}$ 。在一些实施方案中，铜箔或铜合金箔的厚度可优选为 $35\mu\text{m}$ 至 $80\mu\text{m}$ 。具有更大厚度的铜箔或铜合金箔通常可更适合大电流应用。

[0046] 铜箔或铜合金箔的表面粗糙度 R_z 可优选为 $3\mu\text{m}$ 或更小，更优选为 $2\mu\text{m}$ 或更小，特别优选为 $0.5\mu\text{m}$ 至 $1.5\mu\text{m}$ 。当 R_z 较小时，铜箔或铜合金箔的表面可在使用前进行表面处理。

[0047] 铜箔的例子包括压延铜箔和电解铜箔,以及压延铜合金箔和电解铜合金箔。特别优选可为压延铜箔。

[0048] 本发明中使用的铝箔或铝合金箔不限,并且铝合金箔可由铝作为主要组分和一种或多种其它金属的任意合金制成。铝合金箔的例子包括镁作为主要添加剂的铝合金 (Al-Mg 合金),诸如 JIS 5000 系列铝合金,包括 JIS 5052 合金。

[0049] 本发明中,至少含有铝和镁的铝合金箔由于其良好的弯曲性能,可为优选的。

[0050] 虽然具有任意组成的任意 Al-Mg 合金均可用于本发明,但是可优选镁含量为 1.5wt% 至 5wt%,更优选 2wt% 至 3wt% 的 Al-Mg 合金,因为其具有优异的强度。

[0051] 如上所述,可优选使用没有经过阳极化处理的铝箔或铝合金箔,或具有相当薄的阳极氧化层(例如,厚度小于 4 μm ,进一步优选为 3 μm 或更小,特别优选为 2 μm 或更小)的铝箔或铝合金箔,更优选使用没有经过阳极化处理的铝箔或铝合金箔,因为它们可获得具有良好的弯曲性能和优异的可加工性的 LED 散热基板。当使用没有经过阳极化处理的铝箔或铝合金箔,或使用具有相当薄的阳极氧化层的铝箔或铝合金箔时,可实现优异的柔韧性,并且在铝箔或铝合金箔通过热压接而接合到聚酰亚胺膜的情况下,不容易引起外观缺陷。

[0052] 另外,尽管本发明可使用经过交流电电解处理 (KO 处理)——其中使用含有表面活性剂的碱性电解质溶液——的铝箔或铝合金箔,例如 Furukawa-Sky Aluminum Corp. 制造的 KO 处理的薄板,但是可优选使用未经过 KO 处理的铝箔或铝合金箔。

[0053] 尽管层压到聚酰亚胺膜上的铝箔或铝合金箔的表面可经过阳极化处理(也称作“铝阳极化处理”或“硫酸阳极氧化处理”),或 KO 处理,但是就耐热性和弯曲性能而言,可优选使用未经过阳极化处理也未经过 KO 处理的铝箔或铝合金箔。

[0054] 接合至聚酰亚胺膜的铝箔或铝合金箔的表面可优选用有机溶剂处理以去除在制得铝箔或铝合金箔的过程中附着在表面上的油。

[0055] 铝箔或铝合金箔的厚度可优选为 200 μm 至 1mm,更优选为 250 μm 至 500 μm ,特别优选为 300 μm 至 400 μm 。具有更小厚度的铝箔或铝合金箔通常可更适合弯曲应用。

[0056] 根据本发明,为增强散热,散热片可附于铝箔或铝合金箔。在使用可焊接铝箔或可焊接铝合金箔,例如 Toyo Kohan Co., Ltd. 制造的“SAPlate”的情况下,散热片可直接焊接到铝箔或铝合金箔。

[0057] 本发明中,当聚酰亚胺膜的热压接合层作为接合到金属箔(铜箔、铝箔)的表面时,所述热压接合层的厚度可优选等于或大于接合至聚酰亚胺膜的金属箔的表面的表面粗糙度 (Rz_{jis})。当热压接合层的厚度小于金属箔的表面粗糙度 (Rz_{jis}) 时,所得的 LED 散热基板在聚酰亚胺膜和金属箔之间可具有随位置变化很大的剥离强度。

[0058] 现在将描述聚酰亚胺膜。

[0059] 聚酰亚胺膜可以是,但不限于,对铜箔和铝箔展现优异附着性的聚酰亚胺膜,可优选为热压接合聚酰亚胺膜,其中层压在其上的诸如铜箔的金属箔可通过蚀刻去除,并且具有优异的耐热性、电绝缘性能和弯曲性能。必要时,聚酰亚胺膜可足以支撑层压在其上的金属箔,而且,必要时,不会在去除用于形成金属布线的光刻胶层的显影剂或去除剂的作用下严重恶化。

[0060] 聚酰亚胺膜可以为单层的膜、片或板,或者为两层或多层的膜、片或板。

[0061] 聚酰亚胺膜的例子包括,但不限于, Ube Industries, Ltd 的“UPILEX(VT)” (商

标)。

[0062] 虽然聚酰亚胺膜的厚度不限,可更优选为薄的聚酰亚胺膜,只要所述聚酰亚胺膜具有适当的电绝缘性能。聚酰亚胺膜的厚度可优选为 $3\mu\text{m}$ 至 $50\mu\text{m}$,更优选为 $4\mu\text{m}$ 至 $35\mu\text{m}$,更优选为 $5\mu\text{m}$ 至 $25\mu\text{m}$,更优选为 $7\mu\text{m}$ 至 $15\mu\text{m}$,特别优选为 $9\mu\text{m}$ 至 $15\mu\text{m}$ 。

[0063] 聚酰亚胺膜的厚度,考虑到耐焊接性,可优选为 $4\mu\text{m}$ 至 $15\mu\text{m}$,更优选为 $7\mu\text{m}$ 至 $12.5\mu\text{m}$,考虑到耐焊接性和耐热性,可优选为 $9\mu\text{m}$ 至 $15\mu\text{m}$ 。

[0064] 本发明中,聚酰亚胺膜可在经过至少一个表面至表面处理 (surface to surface treatment) 之后使用,诸如电晕放电处理、等离子体处理、化学表面糙化处理、物理表面糙化处理以及用诸如硅烷偶联剂的表面处理剂的表面处理。在单层热压接合聚酰亚胺膜的情况下,以及聚酰亚胺膜的热压接合聚酰亚胺层直接接合至金属的情况下,不需要进行用表面处理剂的表面处理。

[0065] 聚酰亚胺膜的表面处理使用的硅烷偶联剂的例子包括各种硅烷偶联剂,诸如最常用的氨基功能硅烷偶联剂和环氧功能硅烷偶联剂,以及巯基功能硅烷偶联剂、烯炔功能硅烷偶联剂以及丙烯酰基功能硅烷偶联剂。

[0066] 硅烷偶联剂的具体例子包括乙烯基三甲氧基硅烷、乙烯基三(2-甲氧基乙氧基)硅烷、乙烯基苯基三甲氧基硅烷、 γ -甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷、 γ -环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷、4-缩水甘油丁基三甲氧基硅烷、 γ -氨丙基三乙氧基硅烷、N-(β -氨乙基)- γ -氨丙基三甲氧基硅烷、N-3-(4-(3-氨基丙氧基)丁氧基)丙基-3-氨丙基三甲氧基硅烷、咪唑硅烷、三嗪硅烷和 γ -巯基丙基三甲氧基硅烷。聚酰亚胺膜的表面处理剂可优选为硅烷偶联剂,诸如氨基硅烷偶联剂和环氧硅烷偶联剂。

[0067] 当用基于钛酸酯的偶联剂或基于锆酸酯的偶联剂,代替硅烷偶联剂来处理聚酰亚胺膜的表面时,可达到类似的效果。

[0068] 可根据任何已知的方法用硅烷偶联剂进行表面处理。

[0069] 术语“用诸如硅烷偶联剂的表面处理剂处理(表面处理)”包括聚酰亚胺膜的表面中含有的表面处理剂不发生变化的情况,以及聚酰亚胺膜中含有的表面处理剂在 320°C 至 550°C 的温度下由热处理例如在聚酰亚胺或聚酰亚胺前体或其有机溶液中引起变化(包括化学变化)的情况。

[0070] 当聚酰亚胺膜具有不足够好的处理性能——例如基板的低刚度——时,可在后续步骤中能够从该聚酰亚胺膜剥离的刚性膜或板接合至在使用的基板的背面。

[0071] 本发明中,聚酰亚胺膜可为具有两层或多层的多层热压接合和/或粘结聚酰亚胺膜,所述膜包括耐热层(Sa1)和热压接合和/或粘结层(Sa2),在耐热层的两侧包括一层胶粘剂。层配置的例子包括 Sa2/Sa1/Sa2,和 Sa2/Sa1/Sa2/Sa1/Sa2。可替代地,聚酰亚胺膜可包括单个热压接合层(Sa2)。

[0072] 聚酰亚胺膜的热压接合和/或粘结层(Sa2)用于接合至金属箔。热压接合和/或粘结层(Sa2)可选自任意热压接合层和任意粘结层。

[0073] 在具有两层或多层的多层热压接合和/或粘结聚酰亚胺膜中,可适当选择耐热层(Sa1)和热压接合和/或粘结层(Sa2)的厚度。然而,在本发明中,作为最外层(表面层)的热压接合和/或粘结层(Sa2)的厚度优选等于或大于如上所述的待接合到聚酰亚胺膜的金属箔表面的表面粗糙度(R_z jis),并且可优选为 $0.5\mu\text{m}$ 或更大,更优选为 $1\mu\text{m}$ 或更大,特

别优选为 2 μm 或更大。另外,热压接合和 / 或粘结层 (Sa2) 的厚度可优选为 3 μm 或更小。

[0074] 本发明的 LED 散热基板的特征在于,铜箔或铜合金箔、聚酰亚胺膜 (聚酰亚胺层) 以及铝箔或铝合金箔层压在一起。本发明应当不受生产方法的限制。

[0075] LED 散热基板例如可以是,铜箔或铜合金箔层压在聚酰亚胺膜一侧并且铝箔或铝合金箔层压在聚酰亚胺膜的另一侧的层压板,层压可以是利用加热和 / 或加压的方式,直接层压或通过胶粘剂 (热压接合材料) 层压。可替代地,LED 散热基板可通过分别在铜箔或铜合金箔和铝箔或铝合金箔上应用待转换成热压接合聚酰亚胺层的聚酰亚胺溶液或聚酰亚胺前体溶液 (例如聚酰胺酸溶液),必要时,随后进行加热、干燥和亚胺化,然后在所得的层压板上利用加热和 / 或加压的方式层压聚酰亚胺膜制得。可替代地,LED 散热基板可通过在铜箔或铜合金箔上应用待转换成热压接合聚酰亚胺层的聚酰亚胺溶液或聚酰亚胺前体溶液 (例如聚酰胺酸溶液),必要时,随后进行加热、干燥和亚胺化,然后在所得的层压板上利用加热和 / 或加压的方式层压铝箔或铝合金箔制得。

[0076] 优选的是,金属箔 (铜箔、铝箔) 直接层压在聚酰亚胺膜上。当通过加热、加压或二者的组合无法实现聚酰亚胺膜表面和金属箔之间的足够的附着时,金属箔优选通过胶粘剂层压在聚酰亚胺膜上。

[0077] 可通过任意常用的方法在聚酰亚胺膜和 / 或金属箔上应用胶粘剂或热压接合有机材料或树脂,或待转化成聚酰亚胺膜的树脂,例如通过辊式涂布机、狭缝涂布机或缺角轮涂布机。

[0078] 可使用加热装置、加压装置或加压和加热装置把聚酰亚胺膜和其上具有胶粘剂层或热压接合树脂层的金属箔层压在一起,或可替代地,把金属箔和其上具有胶粘剂层或热压接合树脂层的聚酰亚胺膜层压在一起。优选的是,可根据使用的材料的类型适当选择加热条件和加压条件。层压金属箔和聚酰亚胺膜的方法没有特别的限制,只要其可以连续的方式或间歇的方式进行即可。该方法可优选使用辊式层压机、双带压机 (double-belt press) 等连续进行。

[0079] 本发明中,可适合使用具有优异耐热性和电绝缘性能的聚酰亚胺膜。

[0080] 聚酰亚胺膜可为单层聚酰亚胺膜,或具有两个或多个聚酰亚胺层的多层层压聚酰亚胺膜。聚酰亚胺的类型没有特别的限制。

[0081] 聚酰亚胺膜可通过已知方法制得。单层聚酰亚胺膜可例如制备如下:

[0082] (1) 在支撑体上流延或应用聚酰胺酸溶液,即聚酰亚胺前体溶液;然后亚胺化该聚酰胺酸;或者

[0083] (2) 在支撑体上流延或应用聚酰胺酸溶液;必要时,然后加热该聚酰胺酸溶液。

[0084] 具有两个或多个聚酰亚胺层的多层聚酰亚胺膜可例如制备如下:

[0085] (3) 在支撑体上流延或应用聚酰胺酸溶液,即聚酰亚胺前体溶液;在聚酰胺酸层上流延或应用聚酰胺酸溶液,即聚酰亚胺前体溶液,连续重复该操作,以形成两个或多个聚酰胺酸层;然后亚胺化该聚酰胺酸;

[0086] (4) 在支撑体上同时流延或应用两个或多个聚酰胺酸溶液,即聚酰亚胺前体溶液,以形成两个或多个聚酰胺酸层;然后亚胺化该聚酰胺酸;

[0087] (5) 在支撑体上流延或应用聚酰亚胺溶液;在聚酰亚胺层上流延或应用聚酰亚胺溶液,连续重复该操作,以形成两个或多个聚酰亚胺层;必要时,然后加热该聚酰胺酸溶

液；

[0088] (6) 在支撑体上同时流延或应用两个或多个聚酰亚胺溶液，以形成两个或多个聚酰亚胺层；必要时，然后加热该聚酰亚胺溶液；或者

[0089] (7) 直接层压或通过胶粘剂层压上述方法 (1) 至 (6) 中任一项制得的两个或多个聚酰亚胺膜。

[0090] 另外，在作为支撑体的 LED 散热基板中，聚酰亚胺膜可直接形成在铜箔或铜合金箔上，或铝箔或铝合金箔上。

[0091] 聚酰亚胺膜可优选为具有三层或多层的热压接合聚酰亚胺膜，该膜包括耐热聚酰亚胺层 (S1) 和在该耐热聚酰亚胺层 (S1) 两侧的热压接合聚酰亚胺层 (S2)。多层聚酰亚胺膜的层配置的例子包括 S2/S1/S2 和 S2/S1/S2/S1/S2。可替代地，聚酰亚胺膜可包括单个热压接合聚酰亚胺层 (S2)。

[0092] 在热压接合聚酰亚胺膜中，可适当选择耐热聚酰亚胺层 (S1) 和热压接合层 (S2) 的厚度。然而，在本发明中，作为最外层（表面层）的热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的厚度优选等于或大于如上所述的待接合到聚酰亚胺膜的金属箔表面的表面粗糙度 (Rz_{jis})。在耐热聚酰亚胺层 (S1) 的两侧具有热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的聚酰亚胺膜的情况下，作为最外层的所述热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的厚度应足以通过热压接合实现对铜箔或铝箔足够的附着性。热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的厚度可优选为 $0.5\ \mu\text{m}$ 至 $10\ \mu\text{m}$ ，更优选为 $1\ \mu\text{m}$ 至 $7\ \mu\text{m}$ ，进一步优选为 $2\ \mu\text{m}$ 至 $5\ \mu\text{m}$ 。另外，热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的厚度可优选为 $3\ \mu\text{m}$ 或更小。

[0093] 当两个基本上同样厚度的热压接合聚酰亚胺层 (S2) 层压在耐热聚酰亚胺层 (S1) 的两侧时，可减少聚酰亚胺膜的卷曲。

[0094] 在热压接合聚酰亚胺膜中，用于耐热聚酰亚胺层 (S1) 的耐热聚酰亚胺可具有下列特征 (1) 至 (4) 中的至少一个，特别是具有下列特征 (1) 至 (4) 中的至少两个 [(1) 和 (2)，(1) 和 (3)，(2) 和 (3) 的组合等]，特别优选具有所有的下列特征。

[0095] (1) 单独的聚酰亚胺膜的形式时，玻璃化转变温度为 300°C 或更高，优选为 330°C 或更高，更优选为玻璃化转变温度是检测不到的。

[0096] (2) 单独的聚酰亚胺膜的形式时，热膨胀系数 (50°C 至 200°C) (MD) 接近于层压在聚酰亚胺膜上的金属箔，诸如铜箔的热膨胀系数。具体地，聚酰亚胺膜的热膨胀系数优选为 $5 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ 至 $28 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ ，更优选为 $9 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ 至 $20 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ ，进一步优选为 $12 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ 至 $18 \times 10^{-6}\text{cm/cm}/^\circ\text{C}$ 。

[0097] (3) 单独的聚酰亚胺膜的形式时，拉伸弹性模量 (MD, ASTM-D882) 为 300kg/mm^2 或更大，优选为 500kg/mm^2 或更大，进一步优选为 700kg/mm^2 或更大。

[0098] (4) 热收缩率优选为 0.05% 或更小。

[0099] 可用于耐热聚酰亚胺层 (S1) 的聚酰亚胺由酸组分和二胺组分制得，所述酸组分包含选自 $3,3',4,4'$ -联苯四羧酸二酐 (s-BPDA)、均苯四甲酸二酐 (PMDA) 和 $3,3',4,4'$ -苯酮四羧酸二酐 (BTDA) 组成的群组中的至少一个作为主要组分，所述二胺组分包含选自对苯二胺 (PPD) 和 $4,4'$ -二氨基二苯醚 (DADE) 组成的群组中的至少一个作为主要组分。部分或全部 $4,4'$ -二氨基二苯醚 (DADE) 可由 $3,4'$ -二氨基二苯醚 (DADE) 代替。

[0100] 例如，下列的聚酰亚胺可适合用于耐热聚酰亚胺层 (S1)。

[0101] (1) 聚酰亚胺由 3,3',4,4' - 联苯四羧酸二酐 (s-BPDA) 和对苯二胺 (PPD) 以及可选地 4,4' - 二氨基二苯醚 (DADE) 制得。在该聚酰亚胺中,PPD/DADE 的比值 (摩尔比) 优选为 100/0 至 85/15。

[0102] (2) 聚酰亚胺由 3,3',4,4' - 联苯四羧酸二酐 (s-BPDA)、均苯四甲酸二酐 (PMDA) 和对苯二胺 (PPD) 以及 4,4' - 二氨基二苯醚 (DADE) 制得。在该聚酰亚胺中,BPDA/PMDA 的比值 (摩尔比) 优选为 15/85 至 85/15, PPD/DADE 的比值 (摩尔比) 优选为 90/10 至 10/90。

[0103] (3) 聚酰亚胺由均苯四甲酸酐 (PMDA) 和对苯二胺 (PPD) 和 4,4' - 二氨基二苯醚 (DADE) 制得。在该聚酰亚胺中,DADE/PPD 的比值 (摩尔比) 优选为 90/10 至 10/90。

[0104] (4) 聚酰亚胺由 3,3',4,4' - 苯酮四羧酸二酐 (BTDA)、均苯四甲酸二酐 (PMDA) 和对苯二胺 (PPD) 和 4,4' - 二氨基二苯醚 (DADE) 制得。在该聚酰亚胺中,BTDA/PMDA 的比值 (摩尔比) 优选为 20/80 至 90/10,PPD/DADE 的比值 (摩尔比) 优选为 30/70 至 90/10。

[0105] 还可在不损害耐热聚酰亚胺性质的情况下,使用其他的四羧酸二酐和其他的二胺。

[0106] 用于耐热聚酰亚胺层 (S1 层) 的耐热聚酰亚胺可由酸组分和二胺组分的无规聚合或嵌段聚合合成,所述酸组分和所述二胺组分均具有上述范围内的最终组成。用于耐热聚酰亚胺层 (S1 层) 的耐热聚酰亚胺也可通过合成两种聚酰胺酸后在反应条件下混合这些聚酰胺酸溶液以形成均相溶液而合成。

[0107] 耐热聚酰亚胺可按下述制得。首先,使基本上等摩尔量的上述二胺组分和上述酸组分 (四羧酸二酐) 在有机溶剂中反应而制得聚酰胺酸溶液。在聚酰胺酸溶液中,可进行部分亚胺化反应,只要所述聚酰胺酸溶液保持均相。随后,聚酰胺酸溶液以胶状物的形式使用,并形成胶状物的薄膜,然后加热以蒸发和去除所述薄膜中的溶剂,并亚胺化所述聚酰胺酸,由此制得耐热聚酰亚胺。

[0108] 根据本发明,热压接合聚酰亚胺胶状物薄膜可层压在耐热聚酰亚胺胶状物薄膜上,随后同时对这些胶状物进行亚胺化反应。根据本发明,可共挤出耐热聚酰亚胺胶状物和热压接合聚酰亚胺胶状物,以形成耐热聚酰亚胺胶状物薄膜和热压接合聚酰亚胺胶状物薄膜的层压板,然后同时对这些胶状物进行亚胺化反应。稍后会描述这些过程。

[0109] 用于热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的热压接合聚酰亚胺为:(1) 可热压接合至金属箔的聚酰亚胺。热压接合聚酰亚胺可优选在该热压接合聚酰亚胺的玻璃化转变温度至 400°C 的温度下层压至金属箔上。

[0110] 另外,用于热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的热压接合聚酰亚胺可优选具有下列特征 (2) 至 (5) 中的至少一个。

[0111] (2) 金属箔和聚酰亚胺 (S2) 之间的剥离强度为 0.7N/mm 或更大,在 150°C 下热处理 168 小时后,剥离强度的保留率为 90% 或更大,更优选为 95% 或更大,特别优选为 100% 或更大。

[0112] (3) 玻璃化转变温度在 130°C 至 330°C 的范围内。

[0113] (4) 拉伸弹性模量在 100kg/mm² 至 700kg/mm² 的范围内。

[0114] (5) 热膨胀系数 (50°C 至 200°C) (MD) 在 13×10⁻⁶cm/cm/°C 至 30×10⁻⁶cm/cm/°C 的范围内。

[0115] 可选择多种已知的热塑性聚酰亚胺作为用于热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的热压接合聚酰亚胺。可使用的热压接合聚酰亚胺, 例如可为由以下物质制备的聚酰亚胺:

[0116] 酸组分, 例如包含选自 2,3,3',4'-联苯四羧酸二酐 (a-BPDA)、3,3',4,4'-联苯四羧酸二酐 (s-BPDA)、均苯四甲酸二酐 (PMDA)、3,3',4,4'-苯酮四羧酸二酐 (BTDA)、3,3',4,4'-二苯基砒四羧酸二酐、4,4'-氧双邻苯二甲酸酐 (ODPA)、对亚苯基双(偏苯三酸单酯酐) 和 3,3',4,4'-乙二醇二苯甲酸酯四羧酸二酐组成的群组中的至少一个, 优选地, 酸组分包含其作为主要组分, 以及

[0117] 二胺组分, 例如包含主链上具有至少三个苯环的至少一个二胺, 所述二胺选自 1,4-双(4-氨基苯氧基)苯、1,3-双(4-氨基苯氧基)苯、1,3-双(3-氨基苯氧基)苯、2,2-双[4-(4-氨基苯氧基)苯基]丙烷、2,2-双[4-(3-氨基苯氧基)苯基]丙烷、双[4-(4-氨基苯氧基)苯基]砒和双[4-(3-氨基苯氧基)苯基]砒组成的群组, 优选地, 二胺组分包含其作为主要组分, 必要时, 二胺组分可包含主链上具有一个或两个苯环的二胺。

[0118] 适合用作热压接合聚酰亚胺的聚酰亚胺可由选自 2,3,3',4'-联苯四羧酸二酐 (a-BPDA)、3,3',4,4'-联苯四羧酸二酐 (s-BPDA)、均苯四甲酸二酐 (PMDA) 和 3,3',4,4'-苯酮四羧酸二酐 (BTDA) 组成的群组的酸组分和选自 1,4-双(4-氨基苯氧基)苯、1,3-双(4-氨基苯氧基)苯、1,3-双(3-氨基苯氧基)苯和 2,2-双[4-(4-氨基苯氧基)苯基]丙烷组成的群组的二胺组分制得。必要时, 该热压接合聚酰亚胺可包括主链上具有一个或两个苯环的二胺, 和/或其他二胺组分, 和/或其他酸组分。

[0119] 特别优选的热压接合聚酰亚胺可以是由包含不少于 80 摩尔% 1,3-双(4-氨基苯氧基)苯(下文中, 有时缩写为“TPER”)和 3,3',4,4'-联苯四羧酸二酐 (s-BPDA) 和/或 2,3,3',4'-联苯四羧酸二酐 (a-BPDA) 的二胺组分制得的聚酰亚胺。在该聚酰亚胺中, s-BPDA/a-BPDA 的比值(摩尔比)优选为 100/0 至 5/95。还可在不损害热压接合聚酰亚胺性质的情况下, 使用其他四羧酸二酐诸如 2,2-双(3,4-二羧基苯基)丙烷二酐和 2,3,6,7-萘四羧酸二酐。

[0120] 热压接合聚酰亚胺可由如下方法制得。首先, 在约 100°C 或更低, 特别是 20°C 至 60°C 的温度下, 在有机溶剂中使上述二胺组分和上述酸组分, 以及可选地另外四羧酸二酐和另外二胺发生反应制得聚酰胺酸溶液。随后, 聚酰胺酸溶液作为胶状物使用, 并形成胶状物的薄膜, 然后加热以蒸发和去除所述薄膜中的溶剂, 并亚胺化所述聚酰胺酸, 由此制得热压接合聚酰亚胺。

[0121] 热压接合聚酰亚胺的有机溶剂溶液可按如下制得。首先, 上述方法制得的聚酰胺酸溶液在 150°C 至 250°C 的温度下加热以发生亚胺化反应。可替代地, 在聚酰胺酸溶液中加入亚胺化试剂, 然后在 150°C 或更低, 特别是 15°C 至 50°C 的温度下, 使聚酰胺酸溶液发生亚胺化反应。随后, 热压接合聚酰亚胺粉末通过蒸发溶剂制得, 或可替代地, 通过在不良溶剂中沉淀热压接合聚酰亚胺制得。然后, 该粉末溶解在有机溶剂中, 从而制得热压接合聚酰亚胺的有机溶剂溶液。

[0122] 在按上述制备热压接合聚酰亚胺时, 所述二胺(按照氨基的摩尔数)与酸酐(按照四羧酸二酐和二羧酸酐中酸酐基团的摩尔数)在有机溶剂中的比值可优选为 0.95 至 1.0, 特别优选为 0.98 至 1.0, 进一步优选为 0.99 至 1.0。当二羧酸酐用于反应时, 相对于四羧酸二酐中酸酐基团的摩尔数, 使用的二羧酸酐的比值可为 0.05 或更小。

[0123] 当热压接合聚酰胺制备中获得的聚酰胺酸的分子量低时,可降低聚酰胺膜和金属箔组成的层压板的附着强度,所述层压板即本发明的 LED 散热基板。

[0124] 为了防止聚酰胺酸的凝胶作用,在聚酰胺酸的聚合过程中,可向溶液中加入基于固体(聚合物)含量计 0.01wt% 至 1wt% 的含磷稳定剂,诸如亚磷酸三苯酯和磷酸三苯酯。

[0125] 为了加快亚胺化反应,可向胶状物中加入碱性有机化合物。例如,可向胶状物中加入基于聚酰胺酸计 0.05wt% 至 10wt%,特别是 0.1wt% 至 2wt% 的咪唑、2-甲基咪唑、1,2-二甲基咪唑、2-苯基咪唑、苯并咪唑、异喹啉、取代的吡啶等。使用这些化合物可用于避免在较低温度下形成聚酰胺膜时可能发生的不充分亚胺化反应。

[0126] 另外,为了稳定粘附性,可向聚酰胺酸溶液中加入有机铝化合物、无机铝化合物或有机锡化合物,以制得热压接合聚酰胺。例如,就铝金属而言,可向聚酰胺酸溶液中加入基于聚酰胺酸计 1ppm 或更多,特别是 1ppm 至 1,000ppm 的氢氧化铝、三乙酰丙酮铝等。

[0127] 对于耐热聚酰胺和热压接合聚酰胺,由酸组分和二胺组分制备聚酰胺酸中使用的有机溶剂的例子包括:N-甲基-2-吡咯烷酮,N,N-二甲基甲酰胺,N,N-二甲基乙酰胺以及 N,N-二乙基乙酰胺、二甲基亚砷、六甲基磷酰胺、N-甲基己内酰胺和甲酚。这些有机溶剂可单独使用或者两个或多个组合使用。

[0128] 在制备耐热聚酰胺和热压接合聚酰胺时,封端胺末端可使用二羧酸酐,诸如邻苯二甲酸酐及其取代的衍生物,六氢邻苯二甲酸酐及其取代的衍生物、和琥珀酸酐及其取代的衍生物,特别是邻苯二甲酸酐。

[0129] 适当地,可通过以下方法制备在耐热聚酰胺层(S1)一侧或两侧具有热压接合聚酰胺层(S2)的热压接合聚酰胺膜:

[0130] (i) 一种方法,其中通过在薄膜层压板形式的支撑体上通过共挤出流延法(有时称为“共挤出法”)流延耐热聚酰胺(S1)胶状物和热压接合聚酰胺(S2)胶状物,然后干燥并亚胺化所述胶状物形成多层聚酰胺膜;或

[0131] (ii) 一种方法,其中通过在自支撑膜(胶膜)一侧或两侧应用热压接合聚酰胺(S2)胶状物,然后干燥并亚胺化所述胶状物形成多层聚酰胺膜,所述自支撑膜通过在支撑体上流延耐热聚酰胺(S1)胶状物并干燥该胶状物制得。

[0132] 可应用 JP-A-1991-180343(JP-B-1995-102661)中描述的共挤出方法。

[0133] 下面将描述具有三层的聚酰胺膜的制造方法的例子,其中膜的两侧均为热压接合的。

[0134] 用于耐热聚酰胺(S1)的聚酰胺酸溶液和用于热压接合聚酰胺(S2)的聚酰胺酸溶液被送入三层挤出模,并在诸如不锈钢镜面和不锈钢带面等支撑体上以三层共挤出法流延,以使耐热聚酰胺层(S1层)的厚度在 4 μ m 至 45 μ m 的范围内,而且在耐热聚酰胺层(S1层)两侧上的热压接合聚酰胺层(S2层)的总厚度在 1 μ m 至 20 μ m 的范围内。随后,流延膜在 100 $^{\circ}$ C 至 200 $^{\circ}$ C 的温度下干燥,由此制得处于初期的半固化状态或干燥状态的作为自支撑膜的聚酰胺膜(A)。

[0135] 在制备热压接合聚酰胺过程中,例如当流延膜以高于 200 $^{\circ}$ C 的高温加热时,可降低粘附性。术语“处于初期的半固化状态或半干燥状态”是指膜通过加热和/或化学亚胺化反应处于自支撑状态。

[0136] 为自支撑膜的聚酰胺膜(A)可优选含有溶剂和水,所述溶剂和水通过所述反应

而形成,其量为约 25wt%至约 60wt%,特别优选 30wt%至 50wt%。自支撑膜可优选在相对短的时间内加热到进行干燥 / 亚胺化反应的温度,例如,自支撑膜可优选以 10°C /min 或更大的升温速率加热。

[0137] 在干燥 / 亚胺化反应过程中,向自支撑膜施加较大的张力时,最终得到的聚酰亚胺膜 (A) 可具有较低的热膨胀系数。

[0138] 制备上述自支撑膜的干燥步骤之后,用随其移动的固定装置等固定自支撑膜的至少一对边的同时,连续地或非连续地,对自支撑膜在高于上述的干燥温度的高温,例如优选 200°C 至 550°C,特别优选 300°C 至 500°C 的温度进行干燥和加热优选约 1min 至 100min,特别优选 1min 至 10min。两侧均为热压接合的聚酰亚胺膜通过充分去除自支撑膜中的溶剂等并完全亚胺化构成膜的聚合物,以便最终获得的聚酰亚胺膜优选具有 1wt% 或更低的挥发物含量 (例如通过反应而产生的有机溶剂和水等挥发组分含量) 而形成。

[0139] 上述自支撑膜的优选固定装置例如可以是,这样的一个装置:其中例如具有许多等间距销或夹子的一对带或链沿长度方向设置在连续或间歇地进给的自支撑膜的两个边缘,并且在固定该膜的同时随连续或间歇进给的自支撑膜移动。另外,上述自支撑膜的固定装置可以是在热处理时,能够在宽度方向或长度方向上以适当的拉伸或收缩比 (特别优选为约 0.5% 至约 5%) 拉伸和 / 或收缩膜的装置。

[0140] 优选地,按照上述方法制得的两侧均为热压接合的聚酰亚胺膜可进一步在 100°C 至 400°C 的温度下,在无张力或低张力下,优选在 4N 或更低、特别优选 3N 或更低的低张力下,加热 0.1min 至 30min,以提供具有改良尺寸稳定性的聚酰亚胺膜,特别是,两侧均为热压接合的聚酰亚胺膜。

[0141] 由此制得的两侧均为热压接合的长聚酰亚胺膜可通过适当的已知方法绕成卷。

[0142] 其中流延胶状物与支撑体接触的聚酰亚胺膜的表面视为 B 侧,而其中流延胶状物不与支撑体接触的聚酰亚胺膜的表面 (空气侧) 视为 A 侧。

[0143] 此处将描述制造 LED 散热基板的方法的例子,如上所述,所述基板特别是包括具有耐热聚酰亚胺层 (S1) 以及在所述的耐热聚酰亚胺层 (S1) 两侧的热压接合聚酰亚胺层 (S2)。

[0144] 例如,如上文所述,LED 散热基板可通过在耐热聚酰亚胺层 (S1) 两侧,直接层压或通过胶粘剂层压金属箔,即铜箔或铜合金箔,和铝箔或铝合金箔而制备。

[0145] LED 散热基板可优选由上述的两侧具有热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的聚酰亚胺膜制得,通过直接在热压接合聚酰亚胺层 (S2) 上层压金属箔,即铜箔或铜合金箔,和铝箔或铝合金箔制得。

[0146] 就剥离强度而言,LED 散热基板可更优选由上述的两侧具有热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的聚酰亚胺膜制得,通过直接在热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的膜表面 (A 侧) 层压铜箔或铜合金箔,并且直接在热压接合聚酰亚胺层 (S2) 的膜表面 (B 侧) 层压铝箔或铝合金箔制得。

[0147] 其中金属箔层压在热压接合聚酰亚胺膜的两侧的 LED 散热基板的制造方法的例子,包括下列方法:

[0148] 1) 长金属箔 (铜箔或铜合金箔)、长热压接合聚酰亚胺膜和长金属箔 (铝箔或铝合金箔) 按此顺序层压,并送入亚热接合装置 (加热和加压装置)。金属箔和热压接合聚酰

亚胺膜可优选在约 150°C 至约 250°C 的温度下,特别优选在高于 150°C 但不高于 250°C 的温度下预热约 2 秒至约 120 秒,使用诸如热风鼓风机和红外加热器的预热装置,优选正好在引入热压接合装置中之前设置在线预热装置。

[0149] 2) 三层层压板(金属箔/聚酰亚胺/金属箔)在等于或高于比聚酰亚胺(S2)的玻璃化转变温度高 20°C 的温度、但不高于 400°C 的温度,特别优选在等于或高于比聚酰亚胺(S2)的玻璃化转变温度高 30°C 的温度、但不高于 400°C 的温度下,在热压接合区域,使用一对压辊或一个双带压机加压进行热压接合。

[0150] 3) 在双带压机的情况下,特别是热压接合之后,层压板在压力下冷却,优选在冷却区域冷却到等于或低于比聚酰亚胺(S2)的玻璃化转变温度低 20°C 的温度,特别优选冷却到等于或低于比聚酰亚胺(S2)的玻璃化转变温度低 30°C 的温度,以使金属箔层压在聚酰亚胺膜的两侧,然后将该层压板绕成卷。

[0151] 因而,LED 散热基板可以卷的形式制得。

[0152] 该方法中,在热压接合之前进行预热,可防止在热压接合之后所得的层压板出现外观缺陷,这种缺陷是由于聚酰亚胺中的水等引起的起泡,并可防止构成电子电路时在焊浴中浸润过程中起泡,这可预防产量的减少。在加热炉中放置整个热压接合装置是不切实际的,因为要使用的热压接合装置基本上限于小巧装置,限制了 LED 散热基板的形状。如果进行不在线预热,聚酰亚胺可在层压前吸收水,并因而可能由于起泡,很难防止热压接合之后所得层压板外观上的缺陷以及焊接耐热性的降低。

[0153] 双带压机能够进行高温加热/压力下冷却,并且使用热介质的液压式压机是优选的。

[0154] 当通过双带压机的热压接合/压力下冷却把金属箔层压在两侧均为热压接合的聚酰亚胺膜上时,运行速度优选为 1m/min 或更大,可提供长且宽的金属箔层压的聚酰亚胺膜(LED 散热基板),该膜的宽度为约 400mm 或更宽,特别地约 500mm 或更宽,并且粘合强度高(即,金属箔和聚酰亚胺层之间的剥离强度高),且外观良好以至于在金属箔表面基本上观测不到褶皱。

[0155] 优选的是,将热压接合聚酰亚胺膜和金属箔的一种或多种组合,连同保护膜(即,两个保护膜)一起送入,每个保护膜置于最外层和带之间;并通过热压接合/压力下冷却层压,以便批量生产具有良好外观的 LED 散热基板。可使用任意保护膜,不管什么材料,只要该膜为非热压接合的并具有优异的表面光滑度。保护膜优选的例子包括金属箔,特别是铜箔、不锈钢箔或铝箔及高度耐热聚酰亚胺膜(得自 Ube Industries, Ltd. 的 UPILEX S),它们的厚度为约 5 μm 至约 125 μm。

[0156] 根据任意已知的方法,可通过蚀刻法部分地去除铜箔或铜合金箔在由此得到的 LED 散热基板上形成金属布线,LED 芯片可安装在金属布线侧。本发明的 LED 散热基板具有优异的散热性能,因此可减少 LED 温度的上升和 LED 发光效率的降低,即使当 LED 发光装置或 LED 背光中使用的基板上安装有很多 LED 时。

[0157] 实施例

[0158] 下面将参考实施例更详细地描述本发明。然而,本发明并不限于这些实施例。

[0159] (评价方法)

[0160] (1) 剥离强度:根据 JIS C5016,在 90° 和 5mm 宽度的条件下,测量聚酰亚胺膜和

铝箔间的剥离强度。测量的样本为聚酰亚胺 / 铝箔的层压板, 通过从 LED 散热基板上剥离铜箔制得。剥离强度的测量在三个点处进行, 即, 不经过任何处理的起始点, 湿热处理之后 (85°C, 85% Rh 处理 1000 小时之后), 以及 260°C 焊接热处理 30 秒之后。

[0161] (2) 焊接耐热性: 根据 JIS C6481 评价焊接耐热性。测量的样本为聚酰亚胺 / 铝箔的层压板, 用蚀刻法从 LED 散热基板上去除铜箔制得。作为焊接耐热性评价, 在 250°C 或 270°C 焊接热处理 30 秒之后, 视觉观测层压板的聚酰亚胺膜中是否有起泡泡。

[0162] ○: 没有观测到起泡泡。

[0163] ×: 观测到起泡泡。

[0164] (3) 弯曲可加工性: 测量样本为铜箔 / 聚酰亚胺 / 铝箔的层压板。弯曲层压板, 使得层压板具有约 1.0mm 的外直径和约 0.6mm 的内直径。随后, 使弯曲部分回到起始状态, 视觉观测铝箔的弯曲部分是否有裂纹。以两种方式弯曲层压板, 即, 向外弯曲铜箔, 和向内弯曲铜箔。

[0165] ○: 没有观测到裂纹。

[0166] ×: 观测到裂纹。

[0167] (参考实施例 1: 耐热聚酰亚胺 S1 的胶状物的制备)

[0168] 向 N-甲基-2-吡咯烷酮中, 加入摩尔比为 1000:998 的对苯二胺 (PPD) 和 3,3', 4,4'-联苯四羧酸二酐 (s-BPDA), 以使单体浓度为 18% (按重量计, 下文同样适用)。随后, 混合物在 50°C 下反应 3 小时。由此得到的聚酰胺酸溶液在 25°C 下, 具有约 1680 泊的溶液粘度。

[0169] (参考实施例 2: 耐热接合聚酰亚胺 S2 的胶状物的制备)

[0170] 向 N-甲基-2-吡咯烷酮中, 加入摩尔比为 1000:200:800 的 1,3-双(4-氨基氧基)苯 (TPE-R) 和 2,3,3',4'-联苯四羧酸二酐 (a-BPDA) 和 3,3',4,4'-联苯四羧酸二酐 (s-BPDA), 以使单体浓度为 18%。随后, 向其中加入相对于单体计为 0.5 重量% 的磷酸三苯酯, 然后混合物在 40°C 反应 3 小时。由此得到的聚酰胺酸溶液在 25°C 下, 具有约 1680 泊的溶液粘度。

[0171] (参考实施例 3 和 4: 热压接合多层聚酰亚胺膜 A1 和 A2 的制备)

[0172] 使用装有 3 层挤出模 (多流道模具) 的成膜机, 在金属支撑体上以不同的 3 层挤出模的厚度流延参考实施例 1 和 2 制得的聚酰胺酸溶液, 然后在 140°C 的热空气下连续干燥, 并从支撑体上剥离, 以形成自支撑膜。从支撑体上剥离的自支撑膜在加热炉中逐渐从 150°C 加热至 450°C, 以去除溶剂并进行亚胺化反应。因此, 制得两种不同厚度的 3 层长聚酰亚胺膜, 并绕成卷。

[0173] 评价由此获得的 3 层聚酰亚胺膜 (层配置: S2/S1/S2) 的性能, 结果如下。

[0174] (热压接合多层聚酰亚胺膜 A1)

[0175] • 厚度配置: 2.5 μm/7.5 μm/2.5 μm (总: 12.5 μm)

[0176] • S2 层的玻璃化转变温度: 240°C

[0177] • S1 层的玻璃化转变温度:

[0178] 温度在 300°C 或更高时, 不能清楚地观测到 T_g。

[0179] • 热膨胀系数 (50°C 至 200°C):

[0180] MD 19ppm/°C, TD 18ppm/°C,

- [0181] • 机械性能 (测试方法 :ASTM-D882)
- [0182] 1) 拉伸强度 :MD, TD 520MPa(每层)
- [0183] 2) 伸长率 :MD, TD 90% (每层)
- [0184] 3) 拉伸弹性模量 :MD, TD 7200MPa(每层)
- [0185] • 电学性能 (测试方法 :ASTM-D149)
- [0186] 1) 电介质击穿电压 :4.9kV
- [0187] (多层热压接合聚酰亚胺膜 A2)
- [0188] • 厚度配置 :4 μ m/17 μ m/4 μ m(总 :25 μ m)
- [0189] • S2 层的玻璃化转变温度 :240℃
- [0190] • S1 层的玻璃化转变温度 :
- [0191] 温度在 300℃或更高时,不能清楚地观测到 Tg。
- [0192] • 热膨胀系数 (50℃至 200℃) :
- [0193] MD 19ppm/℃, TD 18ppm/℃,
- [0194] • 机械性能 (测试方法 :ASTM-D882)
- [0195] 1) 拉伸强度 :MD, TD 520MPa(每层)
- [0196] 2) 伸长率 :MD, TD 100% (每层)
- [0197] 3) 拉伸弹性模量 :MD, TD 7200MPa(每层)
- [0198] • 电学性能 (测试方法 :ASTM-D149)
- [0199] 1) 电介质击穿电压 :7.1kV
- [0200] 多层热压接合聚酰亚胺膜 A1 和 A2 的厚度分别为 12.5 μ m 和 25 μ m, 这比传统和最常用的 LED 散热基板中使用的环氧树脂膜 (厚度 :1.2mm) 更薄, 并且具有相当于环氧树脂膜的电绝缘性能。
- [0201] 在如下实施例中, 铜箔层压在聚酰亚胺膜的 A 侧, 铝箔层压在聚酰亚胺膜的 B 侧。
- [0202] 使用用有机溶剂处理以去除粘附在表面的油脂后的铝箔。
- [0203] (实施例 1 至 3)
- [0204] (LED 散热基板的制造)
- [0205] 三层聚酰亚胺膜 A2 通过 200℃的热空气在线预热 30 秒, 之后立即送入双带压机。电解铜箔 (厚度 :18 μ m, Rz :0.6 μ m) 层压在聚酰亚胺膜 A2 的一侧 (A 侧), 并且表 1 所示的未处理或表面处理的 Al-Mg 合金箔 (A5052-H34, Furukawa-Sky Aluminum Corp. 制造, 厚度 :300 μ m) 层压在聚酰亚胺膜 A2 的另一侧 (B 侧)。随后, 层压板被送入加热区 (最高加热温度为 330℃), 然后送入冷却区 (最低冷却温度为 180℃) 以进行连续热压接合和冷却, 其中热压接合压力为 3.9MPa, 热压接合时间为 2min。因此, 制得了 LED 散热基板 (宽度 :540mm, 长度 :30m), 并将其绕成卷。测定由此得到的 LED 散热基板的剥离强度、焊接耐热性和弯曲可加工性。结果如表 2 所示。在 250℃的温度下, 进行焊接耐热性的评价。
- [0206] 表 1

	待层压在聚酰亚胺膜 B 侧的铝箔的表面处理
[0207]	实施例 1 未处理
	实施例 2 硫酸阳极氧化处理
	实施例 3 KO 处理(处理层:约 1.5 μm)

[0208] 表 2

[0209]

	剥离强度 (N/mm) (Al 箔/聚酰亚胺之间)			焊接耐热性 (250 $^{\circ}\text{C}$)	弯曲可加工性	
	起始	湿热处理之后	焊接处理之后		铜箔向外弯曲	铜箔向内弯曲
实施例 1	2.7	2.9	3.1	○	○	○
实施例 2	3.1	4<	3.6	×	○	×
实施例 3	4<	4<	4<	×	○	×

[0210] (实施例 4 至 5)

[0211] (LED 散热基板的制造)

[0212] 表 3 中示出的三层聚酰亚胺膜通过 200 $^{\circ}\text{C}$ 的热空气在线预热 30 秒,之后立即送入双带压机。压延铜箔(厚度:35 μm ,粗糙度等级 Rz:1.2 μm)层压在聚酰亚胺膜的一侧(A 侧),未处理的 Al-Mg 合金箔(A5052-H34, Furukawa-SkyAluminum Corp. 制造,厚度:300 μm)层压在聚酰亚胺膜的另一侧(B 侧)。随后,层压板被送入加热区(最高加热温度为 330 $^{\circ}\text{C}$),然后送入冷却区(最低冷却温度为 180 $^{\circ}\text{C}$)以进行连续热压接合和冷却,其中热压接合压力为 3.9MPa,热压接合时间为 2min。因此,制得了 LED 散热基板(宽度:540mm,长度:30m),并绕成卷。测定由此得到的 LED 散热基板的剥离强度、焊接耐热性和弯曲可加工性。结果如表 3 所示。在 250 $^{\circ}\text{C}$ 和 270 $^{\circ}\text{C}$ 的温度下,进行焊接耐热性的评价。

[0213] 表 3

[0214]

	聚酰亚胺膜	剥离强度 (N/mm) (Al 箔/聚酰亚胺之间)			焊接耐热性		弯曲可加工性	
		起始	湿热处理之后	焊接处理之后	250 C	270 C	铜箔向外弯曲	铜箔向内弯曲
实施例 4	A1	1.7	1.6	1.7	○	○	○	○
实施例 5	A2	3.1	3.3	3.5	○	×	○	○

[0215] (耐热性评价)

[0216] 实施例 4 和 5 中制得的 LED 散热基板的耐热性根据下述方法进行评价。

[0217] 首先,将制得的 LED 散热基板切成 1cm×1.5cm 的大小。随后,在 10cm×10cm 大小(面积)的铜制成的水冷板和 LED 散热基板的铝箔上涂一层薄的导热脂,然后把两者粘在一起。随后,在 LED 散热基板的铜箔和 1cm×1.5cm 边缘大小的晶体管 (2SC3258) 上涂一层薄的导热脂,然后把两者粘在一起。预先在晶体管的表面和水冷板的表面中设置用于插入细热电偶的凹槽,以便测量晶体管和 LED 散热基板之间接口处的晶体管表面的温度 (Th),以及水冷板和 LED 散热基板的铜箔之间的接口处水冷板的表面温度 (T1)。

[0218] 如上所述,使用制得的 LED 散热基板,设置晶体管 / 铜箔 / 聚酰亚胺 / Al-Mg 合金箔 / 水冷板的层压板,以及细热电偶。

[0219] 然后,向晶体管施加 5W 至 35W 的电功率 (P),在热电偶指示恒定数值之后,测量 Th 和 T1。

[0220] 由下列公式计算热阻 (Rth)。

$$[0221] \quad R_{th} = (T_h - T_1) / P - 2 \times R_g$$

[0222] 其中, Rg 表示一层导热脂 (0.35°C /W) 的热阻。

[0223] 根据上述方法,测定实施例 4 中制得的 LED 散热基板的热阻,计算得出 0.22°C /W。LED 散热基板有很好的耐热性。此外,测定实施例 5 中制得的 LED 散热基板的热阻,计算得出 0.58°C /W。LED 散热基板有良好的耐热性。

[0224] (实施例 6)

[0225] (LED 散热基板的制造)

[0226] 将三层聚酰亚胺膜 A1 通过 200°C 的热空气在线预热 30 秒,然后立即送入双带压机。电解铜箔 (厚度:18 μm) 层压在聚酰亚胺膜 A1 的一侧,并 Al-Mg 合金箔 (JIS 5052-H32 (A5052-H32), Furukawa-Sky Aluminum Corp. 制造,厚度为 300 μm) 层压在聚酰亚胺膜 A1 的另一侧。随后,层压板被送入加热区 (最高加热温度为 330°C),然后送入冷却区 (最低冷却温度为 180°C) 以进行连续热压接合和冷却,其中热压接合压力为 3.9MPa,热压接合时间为 2min。由此,制得了 LED 散热基板 (宽度:540mm,长度:30m),并绕成卷。由

此得到的 LED 散热基板为铜箔 / 聚酰亚胺膜 Al/Al-Mg 合金箔的双侧金属箔层压板, 为可弯曲的, 并且具有良好的弯曲性能, 而传统和最常见的 LED 散热基板不能弯曲。

[0227] (耐热性评价)

[0228] 实施例 6 中制得的 LED 散热基板的耐热性按与实施例 4 中相同的方式评价。热阻为 $0.24^{\circ}\text{C}/\text{W}$, 该 LED 散热基板具有良好的耐热性。

[0229] 工业实用性

[0230] 如上所述, 本发明可提供一种 LED 散热基板, 该基板为薄板并具有优良的散热和耐电压性能, 也具有具有良好的弯曲性能, 例如可向内弯曲和向外弯曲, 因此为三维可加工的。