

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 8 月 2 日(02.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/102212 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 5/18 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
B32B 15/08 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)
C08G 59/62 (2006.01) *H05K 1/05* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/051263
- (22) 国際出願日: 2012 年 1 月 20 日(20.01.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-013420 2011 年 1 月 25 日(25.01.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (Hitachi Chemical Company, Ltd.) [JP/JP]; 〒1630449 東京都新宿区西新宿 2 丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西村 正人 (NISHIMURA, Masato) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 宮崎 靖夫 (MIYAZAKI, Yasuo) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 天沼 真司 (AMANUMA, Shinji) [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小川 1 5 0 0 番地 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 田仲 裕之 (TANAKA, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小川 1 5 0 0 番地 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 原 直樹 (HARA, Naoki) [JP/JP]; 〒3088521 茨城県筑西市小

川 1 5 0 0 番地 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP).

- (74) 代理人: 膝舘 祥治, 外 (HIZATATE, Shoji et al.); 〒1600022 東京都新宿区新宿 4 丁目 3 番 1 7 号 H K 新宿ビル 7 階 太陽国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロピア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: RESIN COMPOSITION SHEET, RESIN COMPOSITION SHEET WITH METAL FOIL ATTACHED, METAL BASE WIRING BOARD MATERIAL, METAL BASE WIRING BOARD, AND LED LIGHT SOURCE MEMBER

(54) 発明の名称: 樹脂組成物シート、金属箔付樹脂組成物シート、メタルベース配線板材料、メタルベース配線板、及び LED 光源部材

(57) Abstract: A resin composition sheet of the present invention is formed from a resin composition comprising a thermosetting resin, phenolic resin, and insulating inorganic filler. The occupancy percentage of recesses having a maximum depth of 0.5 μ m or more in the surface of the resin composition sheet is 4% or less by area percentage.

(57) 要約: 本発明の樹脂組成物シートは、熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーとを含む樹脂組成物から形成され、表面における、最大深さ 0.5 μ m 以上の凹部の占有率が、面積率で 4% 以下である。



WO 2012/102212 A1

明 細 書

発明の名称：

樹脂組成物シート、金属箔付樹脂組成物シート、メタルベース配線板材料、メタルベース配線板、及びＬＥＤ光源部材

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物シート、金属箔付樹脂組成物シート、メタルベース配線板材料、メタルベース配線板、及びＬＥＤ光源部材に関する。

背景技術

[0002] 電子機器の高密度化、コンパクト化の進行に伴い、回路上等での局所的な発熱量は増大傾向にあり、半導体素子等の電子部品を搭載した回路基板には高い放熱性能が要求されている。一方、従来のように高い電気絶縁性は必要となる。

そのため、高い熱伝導率と高い電気絶縁性を有する樹脂組成物が、熱伝導性封止材や熱伝導性接着剤として実用化されてきている。

上記に関連して、特開２００８－１３７５９号公報には、液晶性を示すエポキシ樹脂と絶縁性無機フィラーとを含むエポキシ樹脂組成物が開示され、高い熱伝導率と優れた加工性を有するとされている。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0003] しかしながら、特許文献１に記載のエポキシ樹脂組成物では、十分な電気絶縁性が得られない場合があった。

本発明は、熱伝導率及び電気絶縁性に優れる樹脂硬化物を形成可能な樹脂組成物シート、金属箔付樹脂組成物シート、ならびにこれらを用いて形成されるメタルベース配線板材料、メタルベース配線板、及びＬＥＤ光源部材を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0004] 本発明は、次のものに関する。

<1> 熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーとを含み、

表面における、最大深さ0.5 μm以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である樹脂組成物シート。

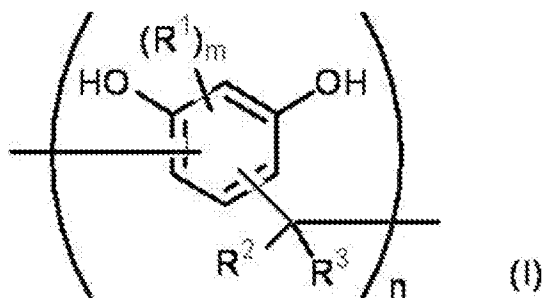
[0005] <2> 20℃～200℃での最低溶融粘度が、10 Pa・s～1000 Pa・sである前記<1>に記載の樹脂組成物シート。

[0006] <3> 前記絶縁性無機フィラーが、40 vol%以上82 vol%以下で含有される前記<1>又は<2>に記載の樹脂組成物シート。

[0007] <4> 前記絶縁性無機フィラーが、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、及びフッ化アルミニウムからなる群より選択される少なくとも一種のフィラーである前記<1>～<3>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

[0008] <5> 前記フェノール樹脂が、下記一般式(Ⅰ)で表される構造単位を有する前記<1>～<4>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

[0009] [化1]



[0010] 一般式(Ⅰ)中、R¹は、アルキル基、アリール基、又はアラルキル基を表し、R²及びR³は、各々独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、又はアラルキル基を表し、mは0～2の整数を、nは1～10の整数を表わす。

[0011] <6> 前記熱硬化性樹脂と、前記フェノール樹脂と、前記絶縁性無機フィラーとを含む樹脂組成物から形成されてなり、

前記樹脂組成物は、粘度が1000 mPa・s以上10000 mPa・s以下であり、

前記樹脂組成物を支持基材上に塗布して形成されてなる前記<1>～<5>

>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

[0012] <7> 20℃～200℃での最低溶融粘度が、10Pa・s～1000Pa・sであり、

表面における、最大深さ0.5μm以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である樹脂組成物シート。

[0013] <8> 平均厚みが、20μm以上500μm以下である前記<1>～<7>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

[0014] <9> 前記<1>～<8>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートと、金属箔と、を有する金属箔付樹脂組成物シート。

[0015] <10> 金属箔と、

金属基板と、

前記金属箔と前記金属基板との間に、前記<1>～<8>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層と、

を有するメタルベース配線板材料。

[0016] <11> 配線層と、

金属基板と、

前記配線層と前記金属基板との間に、前記<1>～<8>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層と、

を有するメタルベース配線板。

[0017] <12> 前記<1>～<8>のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート、前記<9>に記載の金属箔付樹脂組成物シート、前記<10>に記載のメタルベース配線板材料、又は前記<11>のメタルベース配線板、のいずれか1つを用いて形成されたLED光源部材。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、熱伝導率及び電気絶縁性に優れる樹脂硬化物を形成可能な樹脂組成物シート、金属箔付樹脂組成物シート、ならびにこれらを用いて形成されるメタルベース配線板材料、メタルベース配線板、及びLED光源部材を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]本発明のメタルベース配線板材料の一例における断面構造を示す。

[図2]本発明のメタルベース配線板の一例における断面構造を示す。

[図3]本発明のLED光源部材の一例における断面構造を示す。

発明を実施するための最良の形態

[0020] 本発明において「工程」との語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の作用が達成されれば、本用語に含まれる。

また本明細書において「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。

[0021] <樹脂組成物シート>

本発明の第一の樹脂組成物シートは、熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーを含み、樹脂組成物シートの表面における、最大深さ0.5 μm 以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下の樹脂組成物シートである。

本発明の第二の樹脂組成物シートは、20℃～200℃での最低熔融粘度が、10～1000 Pa・sであり、表面における、最大深さ0.5 μm 以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である樹脂組成物シートである。

[0022] 本発明における前記凹部は、Bステージ状態の樹脂組成物シート表面に存在するものをいう。より具体的には、本発明における凹部とは、Bステージ状態の樹脂組成物シート表面に存在する凹みのうち、最大深さが樹脂組成物シート表面から0.5 μm 以上であって且つ樹脂組成物シートの厚み未満のものをいう。

[0023] 本発明の樹脂組成物シートは、金属箔、配線層、又は金属基板などに貼合されて、金属箔付樹脂組成物シート、配線板材料、配線板などを形成する。したがって、樹脂組成物シートの表面の凹みは、金属箔、配線層、又は金属基板等と貼合した界面で気泡を形成する。以下では、この気泡を「界面気泡

」と称する場合がある。樹脂組成物シートを用いて配線板材料や配線板を形成したとき、このなかに含まれる界面気泡は絶縁破壊の起点となり、配線板材料や配線板の絶縁破壊電圧を低下させる。

[0024] しかし、前記界面気泡の含有率が少ない場合には、配線板材料を作製する際の加圧加熱（いわゆるCステージとするための硬化用加熱など）によって、樹脂組成物シートが流動し、界面気泡は消失する。そこで、従来の樹脂組成物シートでは、Cステージとする際の加圧加熱によって界面気泡を消失させ、Cステージとした後では界面気泡が存在しないように工夫している。具体的は、配線板材料を作製する際の加圧加熱時における樹脂組成物シートの流動性を高める方法が検討されている。

[0025] しかしながら、加圧加熱時における樹脂組成物シートの流動性が高すぎる場合は、配線板材料を作製する際の加圧加熱によって、配線板材料の端部から樹脂組成物シートが流出し、端部での樹脂組成物シートの厚さが変化し、厚みにバラつきが生じる場合があった。この厚みのばらつきは、メタルベース配線板材料の面内での性能のばらつきを引き起こす。また、端部から樹脂組成物シートが流れ出すことで、作業性が低下する。

[0026] 特に、熱伝導率を向上させるために絶縁性無機フィラーの充填率を高めると、樹脂組成物シートの表面の凹みが多く発生して界面気泡が多くなることが明らかとなった。界面気泡が多数存在する場合は、これまでの方法では界面気泡が完全に消失しない場合がある。

[0027] そこで本発明では、金属箔、配線層、又は金属基板等と貼合する前のBステージの状態において、樹脂組成物シートの表面における凹部の占有率を特定の範囲以下に抑えることにより、貼合の際の界面気泡を低減し、ひいては絶縁破壊電圧の低下を抑えることとする。特に、樹脂組成物シートの表面における凹部の占有率が、面積率で4%以下とすることが、絶縁破壊電圧の低下を抑えるのに有益である。また、樹脂組成物シートの表面における凹みのうち特定の大きさのものが、絶縁破壊電圧の低下に大きな影響を与えることを明らかにし、表面における凹みのうち、最大深さが0.5 μm 以上のもの

を凹部として特定する。

[0028] なお、本発明は、加圧加熱時における樹脂組成物シートの流動性以外の方法で界面気泡の発生を抑えるため、配線板材料を作製する際の加圧加熱時に、配線板材料の端部から樹脂組成物シートが流出するという課題を解決することも可能である。

[0029] すなわち、従来の樹脂シートでは、凹部の占有率に関わらず、樹脂の流動性を向上させて凹部を充填させることで絶縁破壊電圧を向上させてきたが、一方でメタルベース配線板材料の面内の厚みバラツキや、樹脂組成物の流れ出しによる作業性低下を引き起こしていた。

これに対して本発明の樹脂組成物シートでは、表面において、最大深さ $0.5 \mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率を面積率で 4% 以下にすることで、樹脂の流動性を向上させなくても凹部が十分に充填され、絶縁破壊電圧が向上できる。さらに、メタルベース配線板材料の面内の厚みばらつきや、樹脂組成物の流れ出しによる作業性低下の問題も解消できる。

[0030] 本発明の「表面における、最大深さ $0.5 \mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で 4% 以下である」樹脂組成物シートを作製する方法として、例えば、（１）絶縁性無機フィラーの種類及び配合量を調整する方法、（２）樹脂組成物シートを製造する際に用いる樹脂組成物の粘度を調整する方法、（３）樹脂組成物シートを製造する際に、２枚の樹脂組成物シートを製造し、その２枚を貼り合わせることで表面の凹部占有率を低下させる方法、（４）樹脂組成物シートの表面を平滑化する工程を経る方法、などが挙げられる。

[0031] ここで、本発明における凹部の占有率とは、樹脂組成物シート表面の凹部の観察を行った範囲の総面積に対する、観察された凹部の面積の総和から算出される面積の比率と定義する。より具体的には、以下の式で示される。

[0032] 凹部占有率（％）＝（観察された凹部の面積の総和から算出される面積）／（凹部の観察を行った範囲の総面積）× 100

[0033] 本発明における凹部の観察は、走査型電子顕微鏡（SEM）、光学顕微鏡、レーザー顕微鏡、光干渉式顕微鏡により行うことができる。

金属箔、配線層、又は金属基板等が貼合された後の金属箔付樹脂組成物シート、メタルベース配線板材料、又はメタルベース配線板等において、樹脂組成物シート表面の凹部の占有率を測定するには、金属箔、配線層、又は金属基板等が剥離できる場合は、剥離した後の樹脂組成物シート表面の凹部を観測し、上記式により求める。金属箔、配線層、又は金属基板等が剥離できない場合は、断面の観察により凹部の占有率を評価することができる。この場合、断面の観察を行った範囲の総長さに対する、観察された界面気泡の幅の長さの総和の比率の2乗を凹部占有率（％）とする。

[0034] 本発明において、上記凹部占有率は、絶縁破壊電圧を向上させる観点から、4％以下であり、より確実に絶縁破壊電圧を向上させるには3％以下であることが好ましく、表面粗度の大きな被着体に対してより確実に絶縁破壊電圧を向上させるためには2％以下であることが更に好ましい。

[0035] 具体的に、樹脂組成物シートの表面における凹部の占有率を調整する方法としては、例えば、（１）絶縁性無機フィラーの種類及び配合量を調整する方法、（２）樹脂組成物シートを製造する際に用いる樹脂組成物の粘度を調整する方法、（３）樹脂組成物シートを製造する際に、2枚の樹脂組成物シートを製造し、その2枚を貼り合わせることで表面の凹部占有率を低下させる方法、（４）樹脂組成物シートの表面を平滑化する工程を経る方法、などが挙げられる。

[0036] より具体的には、（１）においては、絶縁性無機フィラーを異なる粒径、例えば大径粒子、中径粒子、小径粒子を混合させ、さらにその混合比はJIS-K-5101-13-2等の吸油率等を最小にするように配合させる方法が挙げられる。これにより、熱伝導性を向上させるために絶縁性無機フィラーの充填率を高めても、フィラー間に樹脂を充填でき、樹脂組成物シートの凹部の面積率を減少させることができる。

（２）においては、樹脂組成物の粘度を塗工に適した粘度に低下させるために、溶媒等を添加することが好ましい。溶媒添加量を適正量以下とする場合には、溶媒等の揮発による凹部の発生が抑えられる。

[0037] (3)においては、ラミネータやプレス機などの公知の方法を用いて2枚以上の樹脂組成物シートの貼り合せてもよい。樹脂組成物シート同士は馴染みが良好であるために樹脂組成物シート同士を接合でき、単一の樹脂シートを形成することができる。よって、例えば、樹脂組成物シートの片面が凹部の面積率が高い場合、あるいは、凹凸が形成されている場合、その面を互いに貼り合わせることで、凹み部や凹凸を消失させることができる。そのため、樹脂組成物シートの表面の凹部占有率を低下させることが可能である。

[0038] (4)においては、樹脂組成物シートの1枚において、あるいは(3)の2枚の樹脂組成物シートを貼り合わせる際に、加圧加熱する方法を用いてもよい。これにより、樹脂組成物シート裏面、すなわち樹脂組成物シートと基材との界面に発生していた凹部を減少させることができる。さらに加圧加熱する際に、樹脂組成物シートに接する基材が平滑で凹凸が少ない基材を用いることで、樹脂組成物シートと基材との界面に発生していた凹部が減少しやすくなる。

しかしながら、本発明はこれらの方法に限定されない。

[0039] 以下では、樹脂組成物シートに用いる材料及び物性について説明する。

本発明の第一の樹脂組成物シートは、熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーとを含む樹脂組成物から形成される。本発明の樹脂組成物シートは、さらに必要に応じて、その他の成分を含んでもよい。

[0040] なお、本発明の第二の樹脂組成物シートは、最低溶融粘度が上記範囲内にあれば、組成について特に限定されないが、第一の樹脂組成物シートと同様に、熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーを含んで構成されることが好ましい。最低溶融粘度の測定方法については後述する。

[0041] (熱硬化性樹脂)

本発明の樹脂組成物シートは、熱硬化性樹脂の少なくとも1種を含む。前記熱硬化性樹脂としては、熱硬化性を有する樹脂であれば特に制限はなく、通常用いられる熱硬化性樹脂を用いることができる。熱硬化性樹脂として具体的には例えば、エポキシ系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリアミドイミド系

樹脂、トリアジン系樹脂、フェノール系樹脂、メラミン系樹脂、ポリエステル系樹脂、シアネートエステル系樹脂、及びこれら樹脂の変性系などを挙げることができる。これらの樹脂は1種単独で用いても、2種類以上を併用してもよい。

[0042] 本発明における熱硬化性樹脂は、耐熱性の観点から、エポキシ系樹脂及びトリアジン系樹脂から選ばれる樹脂であることが好ましく、エポキシ系樹脂であることがより好ましい。また、必要に応じて硬化剤や硬化促進剤を含んでいてもよい。エポキシ系樹脂は、1種類を単独で用いても、2種類以上を併用してもよい。

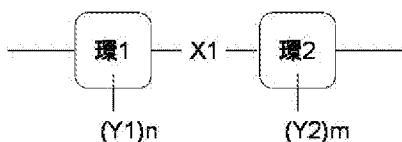
[0043] 前記エポキシ系樹脂（以下、単に「エポキシ樹脂」ということがある）としては、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビフェノール、ノボラック型フェノール樹脂、オルトクレゾールノボラック型フェノール樹脂、トリスフェノールメタンノボラック型フェノール樹脂等の多価フェノール及び1,4-ブタンジオール等の多価アルコールとエピクロルヒドリンとを反応させて得られるポリグリシジルエーテル；フタル酸、ヘキサヒドロフタル酸等の多塩基酸とエピクロルヒドリンを反応させて得られるポリグリシジルエステル；アミン、アミド、又は複素環式窒素塩基を有する化合物のN-グリシジル誘導体；及び脂環式エポキシ樹脂などが挙げられる。

[0044] 前記エポキシ系樹脂のなかでも、樹脂そのものの熱伝導率が向上し、加熱時の溶融粘度が小さくなることから、ビフェニル構造などに代表されるメソゲン骨格を有するエポキシモノマー又はその重合体が好ましい。

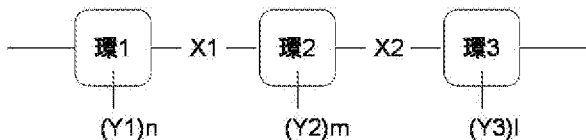
[0045] 本発明におけるメソゲン骨格とは、液晶性を発現する可能性のある官能基を示す。具体的には、ビフェニル、フェニルベンゾエート、アゾベンゼン、スチルベン等やその誘導体が挙げられ、ビフェニル乃至分子内に3個以上の6員環構造を有するものが挙げられ、『液晶便覧』（丸善 液晶便覧返信委員会 編2000年出版）に記載されている下記一般式（A）が挙げられる。

[0046]

[化2]



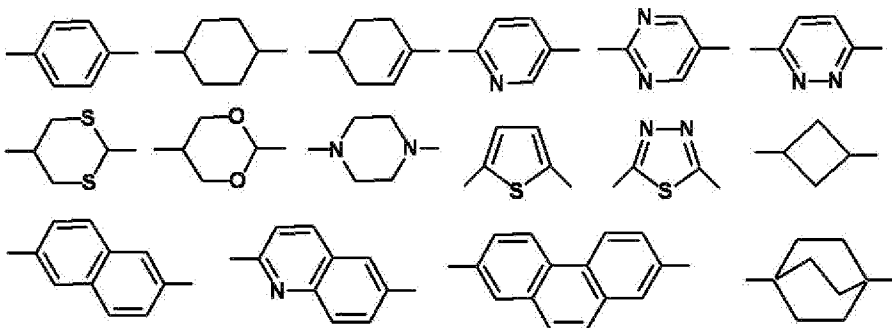
または



・・・ (A)

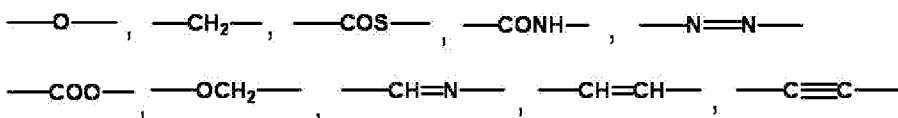
[0047] 一般式 (A) 中、環 1、環 2、及び環 3 として表される環構造は、各々独立に、

[化3]



の中から選択され、結合基 X 1 及び X 2 は、各々独立に、単結合、

[0048] [化4]



[0049] 又は、これらを二つ以上組み合わせた連結基であり、Y 1、Y 2 及び Y 3 は、各々独立に、 ---R 、 ---OR (R は炭素数 1 ~ 8 の脂肪族炭化水素基を表す)、 ---F 、 ---Cl 、 ---Br 、 ---I 、 ---CN 、 ---NO_2 、又は ---CO---CH_3 を表し、n、m 及び l は各々独立に 0 ~ 4 の整数を表す。

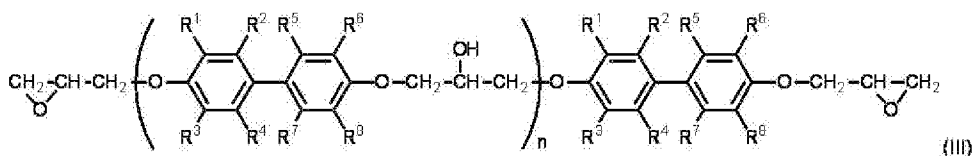
[0050] メソゲン骨格を有するエポキシモノマーとしては、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビキシレニル型エポキシ樹脂、1 - (3 - メチル - 4 - オキシラニルメトキシフェニル) - 4 - (4 - オキシラニルメトキシフェニル) - 1 - シクロヘキセン、又は 1 - (3 - メチル - 4 - オキシラニルメトキシフェニル

）－４－（４－オキシラニルメトキシフェニル）－ベンゼンなどが好ましく、融点及び硬化物の熱伝導率の観点から、１－（３－メチル－４－オキシラニルメトキシフェニル）－４－（４－オキシラニルメトキシフェニル）－１－シクロヘキセンがより好ましい。かかるエポキシ化合物は、例えば前述の特許文献１に記載の方法により製造することができる。

[0051] 前記メソゲン骨格を有するエポキシモノマー又はその重合体のなかでも、ビフェニル骨格を有する2官能のエポキシ樹脂の少なくとも1種を含有することが好ましい。前記ビフェニル骨格を有する2官能のエポキシ樹脂は、少なくとも1つのビフェニル骨格を含み、2つのエポキシ基を有する化合物であれば特に制限はない。具体的には例えば、ビフェニル型エポキシ樹脂やビフェニレン型エポキシ樹脂を挙げることができる。

前記ビフェニル型エポキシ樹脂としては、下記一般式（ⅠⅠⅠ）で表されるエポキシ樹脂等を用いることが好ましい。

〔0052〕〔化5〕



[0053] 一般式 (I I I) 中、 $R^1 \sim R^8$ はそれぞれ独立して、水素原子、又は、炭素数 1 ～ 10 の置換もしくは非置換の炭化水素基を表し、 n は 0 ～ 3 の整数を表わす。

[0054] 炭素数 1 ～ 10 の置換もしくは非置換の炭化水素基としては例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等を挙げることができる。なかでも R¹ ～ R⁸ は、各々独立に水素原子又はメチル基が好ましい。

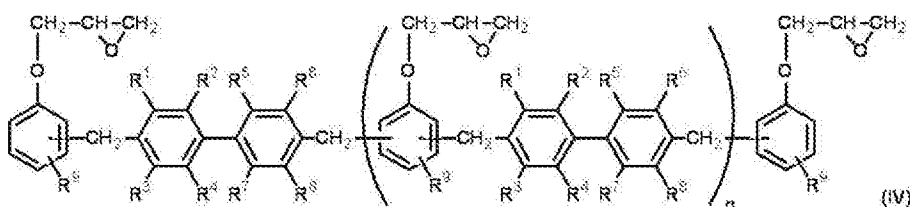
[0055] 上記一般式(111)で示されるビフェニル型エポキシ樹脂としては、たとえば、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)ビフェニル又は4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3', 5, 5'-テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂、エピクロルヒドリンと4

、4'-ビフェノール又は4,4'-(3,3',5,5'-テトラメチル)ビフェノールとを反応させて得られるエポキシ樹脂等が挙げられる。なかでも4,4'-ビス(2,3-エポキシプロポキシ)-3,3',5,5'-テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂が好ましい。このような化合物として

はYX-4000(ジャパンエポキシレジン株式会社製)、YL-6121H(ジャパンエポキシレジン株式会社製)、YSLV-80XY(東都化成株式会社製)等が市販品として入手可能である。

[0056] また前記ビフェニレン型エポキシ樹脂としては、下記一般式(IV)で表されるエポキシ樹脂等を挙げることができる。

[0057] [化6]



[0058] 一般式(IV)中、 $R^1 \sim R^9$ はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリール基、又は炭素数7～10のアラルキル基を表し、 n は0～10の整数を示す。

[0059] 前記炭素数1～10のアルキル基としては例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等を挙げることができる。炭素数1～10のアルコキシ基としては例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等を挙げることができる。炭素数6～10のアリール基としては例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基等を挙げることができる。また炭素数7～10のアラルキル基としては例えば、ベンジル基、フェネチル基等を挙げることができる。なかでも $R^1 \sim R^9$ は、各々独立に、水素原子又はメチル基が好ましい。

[0060] 上記一般式(IV)で示されるビフェニル型エポキシ樹脂としては例えば、NC-3000(日本化薬株式会社製商品名)が市販品として入手可能で

ある。

本発明におけるビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂としては、熱伝導率、電気絶縁性及び後述するBステージシートの可とう性の観点から、前記一般式(ⅠⅠⅠ)又は一般式(ⅠⅤ)で表される化合物の少なくとも1種を含むことが好ましく、一般式(ⅠⅠⅠ)で表される化合物の少なくとも1種を含むことがより好ましい。

[0061] 本発明の樹脂組成物シートの全固形分における前記熱硬化性樹脂の含有率としては、特に制限はないが、熱伝導率、電気絶縁性及びBステージシートの可とう性の観点から、1質量%～15質量%が好ましく、2質量%～12質量%であることがより好ましく、3質量%～10質量%であることがさらに好ましい。

[0062] 本発明の樹脂組成物シートは、前記ビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂と、その他のエポキシ樹脂とを併用してもよい。その他のエポキシ樹脂としては、ビフェニル骨格を有しないものであれば、従来公知のエポキシ樹脂を特に制限なく用いることができる。

[0063] その他のエポキシ樹脂として、具体的には例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び／又は α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものが挙げられる。

[0064] また、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、スチルベン型エポキシ樹脂、ハイドロキノン型エポキシ樹脂、フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリ

アミンとエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂のエポキシ化物、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、フェノール・アラルキル樹脂、ビフェニレン骨格を含有するフェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0065] 本発明の樹脂組成物シートは、Bステージシートにおける可とう性の観点から、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂から選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。

[0066] 本発明の樹脂組成物シートが、その他のエポキシ樹脂を含む場合、その含有率には特に制限はないが、例えば、前記ビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂に対して1質量%～30質量%が好ましく、2質量%～20質量%がより好ましく、3質量%～15質量%であることがさらに好ましい。かかる含有率であることで熱伝導率、電気絶縁性及びBステージシートの可とう性がより効果的に向上する。

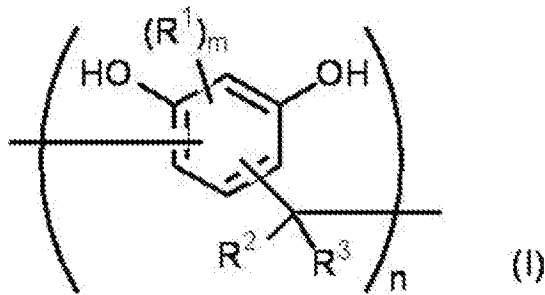
[0067] (フェノール樹脂)

本発明の樹脂組成物シートは、フェノール樹脂の少なくとも1種を含有する。前記フェノール樹脂として、下記一般式(1)で表される構造単位を有する化合物の少なくとも1種を含むフェノール樹脂(以下、「ノボラック樹脂」ということがある)を含むことが好ましい。前記フェノール樹脂は、例えば、エポキシ樹脂の硬化剤として作用する。

特定の構造を有するフェノール樹脂を含むことで、熱伝導率が効果的に向上し、さらに硬化前の状態における可使時間を十分に長くすることができる。

[0068]

[化7]



[0069] 上記一般式（I）において R^1 は、アルキル基、アリール基、又はアラルキル基を表す。 R^1 で表されるアルキル基、アリール基及びアラルキル基は、可能であれば置換基をさらに有していてもよく、該置換基としては、アルキル基、アリール基、ハロゲン原子、及び水酸基等を挙げることができる。

[0070] m は0～2の整数を表し、 m が2の場合、2つの R^1 は同一であっても異なってもよい。本発明において、 m は0又は1であることが好ましく、0であることがより好ましい。 n は1～10の整数を表し、1～8であることが好ましく、1～7であることがより好ましい。

[0071] 一般式（I）において R^2 及び R^3 は、それぞれ独立して水素原子、アルキル基、アリール基、フェニル基又はアラルキル基を表す。 R^2 及び R^3 で表されるアルキル基、フェニル基、アリール基及びアラルキル基は、可能であれば置換基をさらに有していてもよく、該置換基としては、アルキル基、アリール基、ハロゲン原子、及び水酸基等を挙げることができる。

[0072] 本発明における R^2 及び R^3 としては、保存安定性と熱伝導率の観点から、水素原子、アルキル基、フェニル基又はアリール基であることが好ましく、水素原子、炭素数1から4のアルキル基又は炭素数3から6のアリール基、フェニル基であることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

[0073] さらに耐熱性の観点から、 R^2 及び R^3 の少なくとも一方はアリール基であることもまた好ましい。

[0074] 本発明におけるフェノール樹脂は、上記一般式（I）で表される構造単位を有する化合物を、1種単独で含んでもよく、また2種以上を含んでもよい。

。

[0075] 上記一般式（I）で表されるフェノール樹脂は、フェノール性化合物としてレゾルシノールに由来する部分構造を含むが、レゾルシノール以外のフェノール性化合物に由来する部分構造の少なくとも1種をさらに含んでもよい。レゾルシノール以外のフェノール性化合物としては、例えば、フェノール、クレゾール、カテコール、ヒドロキノン等を挙げることができる。前記フェノール樹脂は、これらに由来する部分構造を1種単独で、又は2種以上の組み合わせで含んでもよい。

[0076] ここでフェノール性化合物に由来する部分構造とは、フェノール性化合物のベンゼン環部分から水素原子を1個又は2個取り除いて構成される1価又は2価の基を意味する。尚、水素原子が取り除かれる位置は特に限定されない。

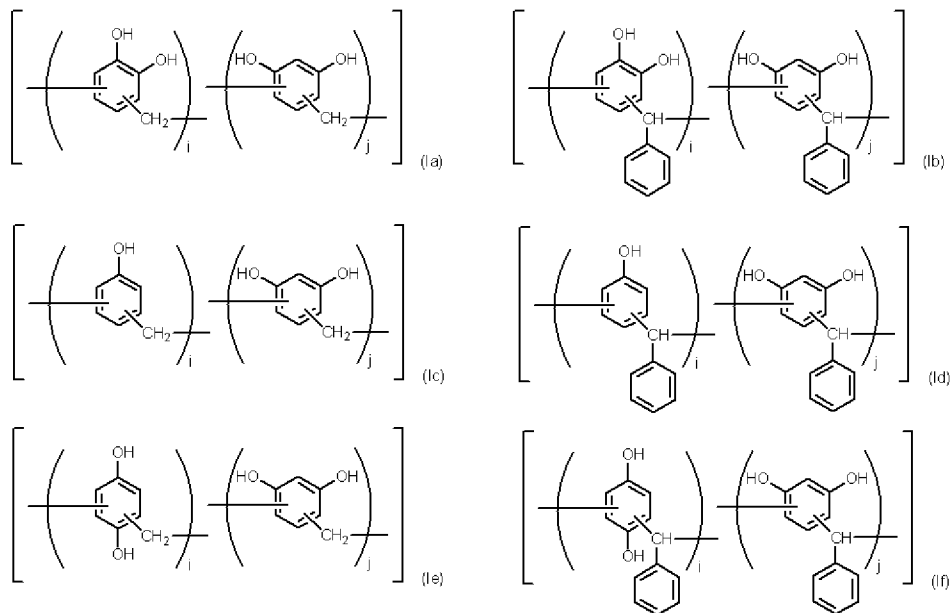
[0077] 本発明においてレゾルシノール以外のフェノール性化合物に由来する部分構造としては、熱伝導率、接着性、保存安定性の観点から、フェノール、クレゾール、カテコール、ヒドロキノン、1，2，3-トリヒドロキシベンゼン、1，2，4-トリヒドロキシベンゼン、及び、1，3，5-トリヒドロキシベンゼンから選ばれる少なくとも1種に由来する部分構造であることが好ましく、カテコール及びヒドロキノンから選ばれる少なくとも1種に由来する部分構造であることがより好ましい。

[0078] また前記フェノール樹脂におけるレゾルシノールに由来する部分構造の含有比率については特に制限はないが、熱伝導率と保存安定性の観点から、フェノール樹脂の全質量に対するレゾルシノールに由来する部分構造の含有比率が30質量%以上であることが好ましく、55質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましい。

[0079] 本発明におけるフェノール樹脂として、具体的には、以下に示す一般式（I a）～一般式（I f）のいずれかで表される部分構造を有する化合物を含むフェノール樹脂であることが好ましい。

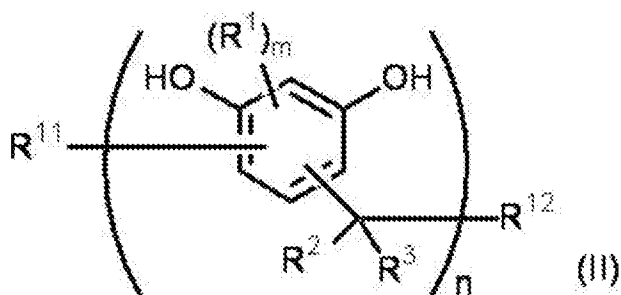
[0080]

[化8]



[0081] 本発明におけるフェノール樹脂は、上記一般式（I）で表される構造単位を有する化合物は、下記一般式（II）で表される化合物の少なくとも１種であることも好ましい

[0082] [化9]

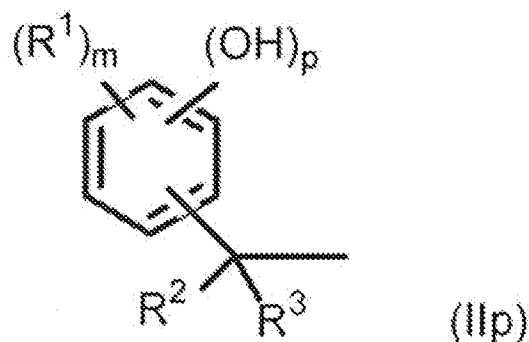


[0083] 一般式（II）中、 R^{11} は水素原子又は下記一般式（IIp）で表されるフェノール性化合物に由来する１価の基を表し、 R^{12} はフェノール性化合物に由来する１価の基を表す。また、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 m 及び n は、一般式（I）における R^1 、 R^2 、 R^3 、 m 及び n とそれぞれ同義である。

[0084] R^{11} 及び R^{12} で表されるフェノール性化合物に由来する１価の基は、フェノール性化合物のベンゼン環部分から水素原子を１個取り除いて構成される１価の基であり、水素原子が取り除かれる位置は特に限定されない。

[0085]

[化10]



[0086] 一般式 (IIp) 中、 p は 1～3 の整数を表わす。また、 R^1 、 R^2 及び R^3 は一般式 (I) における R^1 、 R^2 及び R^3 とそれぞれ同義であり、 m は 0～2 の整数を表す。

[0087] R^{11} 及び R^{12} におけるフェノール性化合物は、フェノール性水酸基を有する化合物であれば特に限定されない。具体的には例えば、フェノール、クレゾール、カテコール、レゾルシノール、ヒドロキノン等を挙げることができる。中でも熱伝導率と保存安定性の観点から、クレゾール、カテコール、レゾルシノールから選ばれる少なくとも 1 種であることが好ましい。

[0088] 本発明の樹脂組成物シートにおいて、上記一般式 (I) で表される構造単位を有する化合物を含むフェノール樹脂は、フェノール樹脂を構成するフェノール性化合物であるモノマーを含んでいてもよい。フェノール樹脂を構成するフェノール性化合物であるモノマーの含有比率（以下、「モノマー含有比率」ということがある）としては特に制限はないが、5～80 質量%であることが好ましく、15～60 質量%であることがより好ましく、20～50 質量%であることがさらに好ましい。

[0089] モノマー含有比率が 5 質量%以上であることで、フェノール樹脂の粘度上昇を抑制し、無機充填剤の密着性がより向上する。また 80 質量%以下であることで、硬化の際における架橋反応により、より高密度な高次構造が形成

され、優れた熱伝導率と耐熱性が達成できる。

[0090] 尚、フェノール樹脂を構成するフェノール性化合物のモノマーとしては、レゾルシノール、カテコール、ヒドロキノンを挙げることができ、少なくともレゾルシノールをモノマーとして含むことが好ましい。

また本発明の樹脂組成物シートにおける前記フェノール樹脂の含有比率としては、特に制限はないが、熱伝導率、電気絶縁性、Bステージシートの可とう性及び可使時間の観点から、1質量%～15質量%であることが好ましく、2質量%～10質量%であることがより好ましい。

[0091] また本発明の樹脂組成物シートにおける前記熱硬化性樹脂と前記フェノール樹脂の含有比（熱硬化性樹脂／フェノール樹脂）としては例えば、当量比基準で、0.6～1.5とすることができ、熱伝導率、Bステージシートの可とう性及び可使時間の観点から、0.8～1.2であることが好ましい。

[0092] 本発明の樹脂組成物シートは、前記フェノール樹脂に加え、必要に応じて、フェノール樹脂以外のその他の硬化剤を含んでいてもよい。その他の硬化剤としては従来公知の硬化剤を特に制限なく用いることができる。具体的には例えば、アミン系硬化剤、メルカプタン系硬化剤などの重付加型硬化剤や、イミダゾールなどの潜在性硬化剤などを用いることができる。

[0093] （絶縁性無機フィラー）

本発明の樹脂組成物シートに含まれる絶縁性無機フィラーは、絶縁性の無機フィラーであれば特に制限されない。好ましくは、 1 W/m K 以上の熱伝導率を有するものであり、具体的には、二酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、フッ化アルミニウム、又はフッ化カルシウムから選択される。これらのうち、一種又は二種以上を混合して用いてもよい。

さらに好ましくは、 10 W/m K 以上の熱伝導率を有する無機セラミックであり、具体的には、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、又はフッ化アルミニウムから選択される。

そのなかでも、 $10^{16} \Omega \text{ cm}$ 以上の体積抵抗率を有する、酸化アルミニウム（アルミナ）がより好ましい。

これらは、一種単独で、又は二種以上を混合して用いてもよい。

[0094] 絶縁性無機フィラーの粒子径や混合の割合は特に制限されない。絶縁性無機フィラーの粒子径や混合の割合については、例えば異なる粒度分布を持つ3種類の無機充填材群を適用する場合を例に挙げると、重量累積粒度分布の小粒径側からの累積50%に対応する粒子径D50が $5 \mu\text{m}$ 以上 $100 \mu\text{m}$ 以下の無機充填材群（A）、D50が無機充填材群（A）の $1/2$ 以下であり $1 \mu\text{m}$ 以上 $10 \mu\text{m}$ 以下の無機充填材群（B）、及び、D50が無機充填材群（B）の $1/2$ 以下であり $0.1 \mu\text{m}$ 以上 $5 \mu\text{m}$ 以下の無機充填材群（C）と、を含んで構成され、無機充填材の全量に対する無機充填材群（A）、（B）及び（C）の割合が、それぞれ、40質量%以上90質量%以下、5質量%以上40質量%以下、1質量%以上30質量%以下（ただし、無機充填材群（A）、（B）及び（C）の総質量%は、100質量%）の割合で充填すると好適である。

[0095] また、粒度分布が広域にわたる無機充填材を用いる際には、混合後の粒度分布を明確に分離することは困難な場合がある。このような場合は設計する膜厚を考慮して最大粒径を決定した上で、重量累積粒度分布を描いた際に大粒径側をF u l l e r曲線などの従来の知見にあうよう粒度分布を設計すると好ましい。

[0096] また、前記無機充填材群（A）の平均粒子径及び最大は、シート又は樹脂付き金属箔の場合は目標とする膜厚によって制限される。他の制限が特にない場合には、熱導電率の観点からは前記無機充填材群（A）の平均粒子径は大きいほど好ましいが、熱抵抗の観点から絶縁性が許容する範囲でなるべく薄い膜厚とするのが好ましい。また、絶縁性の観点から最大粒子径は少なくとも膜厚の $7/8$ 以下であって、 $2/3$ 以下とするのが好ましく、 $1/2$ 以下とするのがさらに好ましい。よって、前記無機充填材群（A）の平均粒子径は膜厚の $1/2$ 以下であり、且つ $5 \mu\text{m}$ 以上 $100 \mu\text{m}$ 以下であることが

好ましく、充填性および熱抵抗・熱伝導性の観点から、 $10\mu\text{m}$ 以上 $75\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $10\mu\text{m}$ 以上 $45\mu\text{m}$ 以下であることが更に好ましい。

[0097] 本発明において絶縁性無機フィラーの粒子径 D_{50} は、レーザー回折法を用いて測定され、重量累積粒度分布曲線を小粒径側から描いた場合に、重量累積が50%となる粒子径に対応する。

[0098] レーザー回折法を用いた粒度分布測定は、レーザー回折散乱粒度分布測定装置（例えば、ベックマン・コールター社製、LS230）を用いて行なうことができる。

[0099] なお、前記無機充填材群（A）および無機充填材群（B）がアルミナフィラーである場合は、 α -アルミナの単結晶粒子からなるアルミナフィラーであることがさらに好ましい。

[0100] 一方、前記無機充填材群（C）が、アルミナフィラーである場合は、 α -アルミナ、 γ -アルミナ、 δ -アルミナ、又は θ -アルミナであることが好ましく、 α -アルミナであることがより好ましく、 α -アルミナの単結晶粒子からなるアルミナフィラーであることがさらに好ましい。

[0101] 本発明の樹脂組成物シートに含まれる絶縁性無機フィラーの含有率には特に制限はないが、樹脂組成物シートを構成する固形分中、40vol%～82vol%とすることができ、熱伝導率、電気絶縁性、及びシート可とう性の観点から、50vol%～79vol%がより好ましく、55vol%～76vol%であることがさらに好ましい。絶縁性無機フィラーの総体積が少なすぎる場合は熱伝導率が低くなり、多すぎる場合はシート状物の形成が困難になる。

尚、樹脂組成物シート中の固形分とは、樹脂組成物シートを構成する成分から揮発性の成分を除去した残分を意味する。

[0102] 前記無機充填材群（A）～（C）としては、市販のものから適宜選択することができる。また、例えば遷移アルミナ又は熱処理することにより遷移アルミナとなるアルミナフィラーを、塩化水素を含有する雰囲気ガス中で焼成

すること（例えば、特開平6-191833号公報、特開平6-191836号公報等参照）により製造したものであってもよい。

[0103] 本発明の樹脂組成物シートは、前記無機充填材群（A）～（C）に加えて、アルミナを主成分とし、その数平均繊維径が $1\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である無機繊維を含んでいてもよい。本発明において「アルミナを主成分とする無機繊維」とは、アルミナを41vol%以上含む無機繊維を意味する。なかでも、アルミナを58vol%以上含む無機繊維であることが好ましく、アルミナを74vol%以上含む無機繊維であることがより好ましい。かかる無機繊維の数平均繊維径は、 $1\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であるが、好ましくは $1\mu\text{m}$ ～ $30\mu\text{m}$ であり、より好ましくは $1\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$ である。また、かかる無機繊維の繊維長は、通常0.1mm～100mmである。

[0104] かかる無機繊維としては、通常、市販されているものが使用され、具体的には、アルテックス（住友化学株式会社製）、デンカアルセン（電気化学工業株式会社製）、マフテックバルクファイバー（三菱化学産資株式会社製）等が挙げられる。

[0105] かかる無機繊維を用いる場合のその使用量は、前記無機充填材群（A）～（C）の質量に対して、通常4vol%～58vol%、好ましくは4vol%～41vol%であり、絶縁性無機フィラーと無機繊維の合計質量が、樹脂組成物シートの固形分中、通常30～95質量%となる量が用いられる。

[0106] 本発明の樹脂組成物シートは前記絶縁性無機フィラーに加えて、必要に応じて絶縁性無機フィラー以外の無機充填材をさらに含んでいてもよい。無機充填材としては例えば、非導電性のものとして、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、窒化ケイ素、酸化ケイ素、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム等を挙げることができる。また導電性のものとして、金、銀、ニッケル、銅等を挙げることができる。これらの無機充填材は、1種単独で用いても、又は2種以上を併用してもよい。

[0107] （その他成分）

本発明の樹脂組成物シートは上記必須成分に加えて、必要に応じてその他の成分を含んでいてもよい。その他の成分としては例えば、溶剤、シランカップリング剤、分散剤、沈降防止剤等を挙げることができる。

[0108] 前記溶剤としては樹脂組成物シートの硬化反応を阻害しないものであれば特に制限なく、通常用いられる有機溶剤を適宜選択して用いることができる。

[0109] 本発明の樹脂組成物シートにはシランカップリング剤を含むことが好ましい。シランカップリング剤を含むことで、絶縁性無機フィラーの表面とその周りを取り囲む有機樹脂の間で共有結合を形成する役割（バインダ剤に相当）を果たすことによって、熱を効率よく伝達する働きや、更には水分の浸入を妨げることにより、絶縁信頼性の向上にも寄与する。

[0110] シランカップリング剤としては、市販のものを通常使用できるが、エポキシ樹脂やフェノール樹脂との相溶性及び樹脂層と絶縁性無機フィラーとの界面での熱伝導ロスを低減することを考慮すると、末端にエポキシ基、アミノ基、メルカプト基、ウレイド基、水酸基を有するシランカップリング剤を用いることが好適である。

[0111] 具体的には例えば、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトリエトキシシラン、3-ウレイドプロピルトリエトキシシランなどを挙げることができ、またSC-6000KS2に代表されるシランカップリング剤オリゴマ（日立化成コーテッドサンド株式会社製）等も挙げられる。これらシランカップリング剤は単独又は2種類以上を併用す

ることもできる。

[0112] 本発明の樹脂組成物シートには、分散剤を添加することができ、分散剤としては絶縁性無機フィラーの分散に効果のある市販の分散剤を通常使用できる。例えば、味の素ファインテック株式会社製アジスパーシリーズ、楠本化成株式会社製H I P L A A Dシリーズ、株式会社花王製ホモゲノールシリーズ等が挙げられる。これら分散剤は二種類以上を併用することができる。

[0113] (樹脂組成物)

本発明では、樹脂組成物を用いて樹脂組成物シートを形成してもよい。樹脂組成物は、前記熱硬化性樹脂と、前記フェノール樹脂と、前記絶縁性無機フィラーとを含む。この樹脂組成物は、絶縁性無機フィラーを充填しているため、基材上に樹脂組成物を付与する時の絶縁性無機フィラーの挙動が、前述の凹部占有率に影響する。

[0114] 樹脂組成物の粘度が低すぎると、樹脂組成物に含まれる有機溶媒の蒸発よりも、絶縁性無機フィラーが塗工基材側に沈降するほうが速く、絶縁性無機フィラーの壁を形成する。その結果、絶縁性無機フィラーの壁よりも塗工基材側の樹脂組成物に含まれる溶媒等の揮発性物質は、絶縁性無機フィラーの壁によってせき止められ、凝集し、気泡となる。その結果、塗工基材側に界面気泡が発生する。そのため、発明の樹脂組成物シートの凹部占有率を低くするためには、基材上に付与する樹脂組成物の粘度制御が重要となる。特に、金属箔に樹脂組成物を塗布して、金属箔上に樹脂組成物シートを形成する場合、後述のように一般に金属箔の表面粗さは金属基板に比べて粗いため、樹脂組成物の粘度の調整が重要であることが明らかとなった。

[0115] 樹脂組成物の粘度は、25℃での粘度をB型粘度計（スピンドルNo 4、回転数30rpm）にて測定する。界面気泡の発生を効果的に抑制するには、1000～10000mPa・sであることが好ましく、1200～8000mPa・sであることがより好ましく、1500～6000mPa・sであることがさらに好ましい。粘度が低すぎると絶縁性無機フィラーの沈降が速く、界面気泡が発生させやすい。一方、粘度が高すぎると塗膜の膜厚の

制御が困難になる。特に、粘度が低い樹脂組成物を金属箔に塗布して金属箔付き樹脂組成物シートを作製する場合、粘度が1000 mPa以上の場合には、絶縁性無機フィラーの沈降が速くなりすぎるのが抑えられ、粗面化された金属箔の凹凸と絶縁性無機フィラーとの間に間隙を生じさせるのが抑えられる。

[0116] 絶縁性無機フィラーを含有する樹脂組成物は、絶縁性無機フィラー含有量が多いほど樹脂組成物の粘度が高くなり、均一な膜厚での塗工が困難になる。しかし、溶媒等の添加量を増すことで粘度を低下させると、前記のように絶縁性無機フィラーの沈降が速くなりすぎ、凹部占有率が増大する。そのため、樹脂組成物は適切な粘度に調整することが望ましい。

[0117] (樹脂組成物シート (Bステージ) の作製方法)

本発明の樹脂組成物シートは、半硬化状態 (Bステージ) のシート状物である。この半硬化状態 (Bステージ) の樹脂組成物シートが、配線板材料や配線板中に用いられ本硬化されると、熱伝導性絶縁層となる。

[0118] 樹脂組成物シートは、前記樹脂組成物を支持基材 (塗工基材) 上に付与してシート状の塗工物を形成し、これを半硬化状態 (Bステージ) となるまで加熱することで作製される。

[0119] 前記樹脂組成物の付与方法は特に制限されないが、大面積で形成する場合には塗布が好ましい。塗布は、公知の方法により実施することができる。塗布方法として、具体的には、コンマコート、ダイコート、リップコート、グラビアコート等の方法が挙げられる。所定の厚みに樹脂層を形成するための塗布方法としては、ギャップ間に被塗工物を通過させるコンマコート法、ノズルから流量を調整した樹脂ワニスを塗布するダイコート法等を適用することができる。その他、リップコートやグラビアコート等が挙げられる。

[0120] 塗布する際に粘度調整のために前記樹脂組成物に溶剤を加えてもよい。樹脂組成物が含む溶剤としては、特に限定されるものではなく、メチルエチルケトンやアセトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、シクロヘキサノール、ジメチルアセトアミド、イソプロパノール、メタノール、エタ

ノール等を用いることができる。

[0121] 塗工基材は特に限定されないが、メタルベース配線板材料を作製するときには除去されるため、安価なプラスチック基材が好ましい。プラスチック基材に用いられる樹脂としては、ポリスチレン樹脂、アクリル樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂などの熱可塑性ポリエステル樹脂、酢酸セルロース樹脂、フッ素樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、ポリウレタン樹脂、フタル酸ジアリル樹脂などの熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂が挙げられる。プラスチック基材の厚みは、0.01mm～5mmが取扱い性の観点から好ましい。樹脂組成物シートの剥離性を向上させるためにプラスチック基材の表面に離型層が形成されていてもよい。

[0122] 得られた前記塗工物は、半硬化のための加熱に先立ち、乾燥させてもよい。乾燥温度および乾燥時間は、塗工物に含まれる有機溶剤の種類に応じて適宜調整することが好ましい。乾燥温度や乾燥時間を調整することで、有機溶媒の蒸発速度と、絶縁性無機フィラーの塗工基材側への沈降速度との調整により、得られる樹脂組成物シート表面の凹部の占有率を4%以下にすることも可能である。

[0123] 具体的には、乾燥温度は30℃～90℃とすることが好ましく、40℃～100℃とすることがより好ましく、50℃～110℃とすることが更に好ましい。また、乾燥時間は0.2～60分間とすることが好ましく、0.5～40分間とすることがより好ましく、1～30分間とすることが更に好ましい。

[0124] 得られた塗工物を半硬化状態（Bステージ）となるまで加熱する。ここで「半硬化状態（Bステージ）」とは、最低溶融粘度として、常温においては

$10^3 \sim 10^6 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であるのに対して、 $80^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$ の範囲で $10 \sim 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ まで粘度が低下する状態にあることをいう。なお、本硬化後のCステージのシート（熱伝導性絶縁層）では、加温によって溶融することは無い。

[0125] 上記最低溶融粘度とは、末端変性イミドオリゴマーの溶融粘度は温度上昇による粘度低下と硬化反応による粘度の上昇により最小値をとり、この最小値を意味する。樹脂組成物シートの最低溶融粘度の測定方法は後述する。

[0126] 半硬化のための加熱温度及び加熱時間は、前記塗工物に含まれる有機溶剤の種類や量に応じて適宜調整することが好ましい。具体的には、半硬化のための加熱温度は $70^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ とすることが好ましく、 $80^\circ\text{C} \sim 150^\circ\text{C}$ とすることがより好ましく、 $90^\circ\text{C} \sim 140^\circ\text{C}$ とすることが更に好ましい。また、半硬化のための加熱時間は $0.2 \sim 60$ 分間とすることが好ましく、 $0.5 \sim 40$ 分間とすることがより好ましく、 $1 \sim 30$ 分間とすることが更に好ましい。

[0127] 樹脂組成物シート（Bステージシート）中の有機溶媒の含有量は、基材上に付与する前の樹脂組成物中の含有量の 40% 以下に減少していることが、本硬化後（Cステージシート）の熱伝導性絶縁層での空隙や気泡の発生を抑える観点から好ましい。

[0128] なお、得られた樹脂組成物シートは、単層であってもよく、また2枚の樹脂組成物シートを互いに貼り合わせたもの、あるいは3枚以上の樹脂組成物シートを積層したものであってもよい。2枚以上の樹脂組成物シートの貼り合せは、ラミネータやプレス機などの公知の方法を用いて実施してもよく、その際に加熱することで半硬化状態（Bステージ）にしてもよい。

[0129] このように2枚以上の樹脂組成物シートを貼り合わせることで、樹脂組成物シートどうしは馴染みが良好であるために樹脂組成物シート同士を接合でき、単一の樹脂シートを形成することができる。よって、例えば、樹脂組成物シートの片面が凹部の面積率が高い場合、あるいは、凹凸が形成されている場合、その面を互いに貼り合わせることで、凹み部や凹凸を消失させることがで

きる。そのため、樹脂組成物シートの表面の凹部占有率を低下させることが可能である。

[0130] 樹脂組成物シートの貼り合せは、好ましくは、 $70^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $80^{\circ}\text{C}\sim 150^{\circ}\text{C}$ 、更に好ましくは、 $90^{\circ}\text{C}\sim 140^{\circ}\text{C}$ で加熱して行うことが好ましい。

[0131] また、貼り合わせの圧力は、好ましくは $0.05\text{MPa}\sim 1\text{MPa}$ 、より好ましくは $0.1\text{MPa}\sim 0.6\text{MPa}$ 、更に好ましくは $0.2\text{MPa}\sim 0.4\text{MPa}$ である。

[0132] 更に、得られた樹脂組成物シートは、表面を平滑化して、表面の凹部占有率を低下させてもよい。平滑化の方法としては、例えば、ラミネータやプレス機などの公知の方法などが挙げられる。平滑化により、加圧によって樹脂組成物シートをわずかに流動させ、シート表面の凹部を消失させてもよい。平滑化の際に樹脂組成物シートに接触させる部材は平滑であることが望ましい。その部材の平滑性が樹脂組成物シートの平滑性に影響するためである。例えば、樹脂組成物シートに表面の平滑なプラスチックシートを接触させてもよく、同時に樹脂組成物シートがラミネータやプレス機に貼り付くことを防止してもよい。また、加圧の際に樹脂組成物シートを加熱し、樹脂組成物の流動性を向上させてもよい。この平滑化の工程において、加熱することで半硬化状態（Bステージ）にしてもよい。

[0133] 樹脂組成物シートの表面の平滑化を真空ラミネータにより行う場合、真空度は、 $0.01\text{kPa}\sim 20\text{kPa}$ が好ましく、 $0.03\text{kPa}\sim 10\text{kPa}$ がより好ましく、 $0.1\text{kPa}\sim 5\text{kPa}$ が更に好ましい。

[0134] 真空ラミネータの加熱温度は、 $70^{\circ}\text{C}\sim 170^{\circ}\text{C}$ が好ましく、 $80^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ がより好ましく、 $90^{\circ}\text{C}\sim 150^{\circ}\text{C}$ が更に好ましい。

[0135] 真空ラミネータの圧力は、好ましくは $0.1\text{MPa}\sim 3\text{MPa}$ 、より好ましくは $0.3\text{MPa}\sim 2\text{MPa}$ 、更に好ましくは $0.6\text{MPa}\sim 1.5\text{MPa}$ である。

[0136] （樹脂組成物シート（Bステージ）の物性）

樹脂組成物シートの最低溶融粘度は、BステージからCステージとする加圧加熱工程での樹脂組成物の流動性に影響する。そのため、加圧加熱工程で加えられる温度範囲20℃～200℃における最低溶融粘度を調整することが、取り扱い性や、端部からの樹脂組成物シートの流出を押さえる観点から望ましい。

[0137] 樹脂組成物シートの最低溶融粘度は、ずり粘弾性の温度依存性を測定した際に、温度上昇による粘度低下と硬化反応による粘度増加によって現れる最小値である。

ずり粘弾性を測定する条件の例として、昇温速度5℃/min（プレスの昇温速度）、周波数1～10Hzが挙げられ、シートをはさむ測定治具は円形の平板が挙げられる。サンプルは、必要に応じて樹脂組成物シートを積層したものをを用いてもよい。

[0138] 樹脂組成物シートの20℃～200℃における最低溶融粘度は、10Pa・s～1000Pa・sであることが好ましく、20Pa・s～800Pa・sであることがより好ましく、30Pa・s～600Pa・sであることがさらに好ましい。最低溶融粘度が低すぎると熱伝導性絶縁層の厚みばらつきが発生し、最低溶融粘度が高すぎると熱伝導性絶縁層が銅箔や金属基板等の被着体に十分に密着しなくなり、接着力の低下や絶縁破壊電圧の低下が発生する。よって、20℃～200℃における最低溶融粘度が上記範囲内にあると、加熱時に優れた流動性を示し、凹凸構造を有する被着体に対しても追従するため、本硬化後に高い接着力を示す。

[0139] 本発明の樹脂組成物シート（Bステージシート）の厚みは、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、平均厚みは20μm～500μmが好ましく、25μm～400μmがより好ましく、熱伝導率、電気絶縁性及びシート可とう性の観点から、30μm～300μmであることが好ましい。20μm以上の場合には電気絶縁性に優れ、500μm以下の場合には熱抵抗の増大が抑えられる。

[0140] <金属箔付き樹脂組成物シート（Bステージシート）>

金属箔付き樹脂組成物シートは、前記の樹脂組成物シートに金属箔を貼付したものである。より具体的には、樹脂組成物シートに金属箔をラミネータやプレス機等を用いて公知の方法で貼り合せ、金属箔付き樹脂組成物シートを作製することができる。また、金属箔付き樹脂組成物シートは、金属箔を基材として樹脂組成物を付与して塗工物を形成し、半硬化状態（Bステージ）まで加熱することで作製することができる。

[0141] 一般に、金属箔は樹脂組成物シートとの接着力を高めるために粗面化されている。樹脂組成物シートを金属箔に貼付することで金属箔付き樹脂組成物シートを作製する場合、樹脂組成物シートの表面に上記特定の大きさの凹部が存在すると、Cステージ化の加圧及び加熱工程において金属箔の粗面化された表面形状に追従しきれずに、界面気泡が発生しやすくなりうる。

このような界面気泡の発生を抑えるには、本発明の樹脂組成物シート、つまり、熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーとを含み、表面における、最大深さ $0.5\mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である第一の樹脂組成物シート、又は、 $20^{\circ}\text{C}\sim 200^{\circ}\text{C}$ での最低熔融粘度が、 $10\sim 1000\text{Pa}\cdot\text{s}$ であり、表面における、最大深さ $0.5\mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である第二の樹脂組成物シート、を用いることが有効であることが見出された。なお、本発明の樹脂組成物シートは、勿論、金属基板を付設する場合にも界面気泡の発生を効果的に抑制する。

[0142] 金属箔としては、銅、アルミニウム、ニッケル、スズ、又はそれらを含む合金のいずれかの材質からなる金属箔を用いることができる。また、金属箔の層構造は1層に限らず、2～3層の複合箔を用いることもできる。低コストと電気伝導率の高さを望む場合、銅箔を用いることが望ましい。

[0143] 金属箔の厚みは $3\mu\text{m}\sim 110\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $5\mu\text{m}\sim 90\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $9\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。 $3\mu\text{m}$ 以上の場合には取扱いに優れ、わずかな力で折れるのを防ぐことができる。また、 $110\mu\text{m}$ 以下の場合には、高価な金属箔の使用量が抑

えられる。

[0144] 金属箔の取扱性を向上させるために、キャリアフィルムを貼り付けた状態で金属箔を取り扱ってもよい。そのようなキャリアフィルムとして、微粘性の粘着フィルム、自己吸着性の粘着フィルム、UV硬化性の粘着フィルムを用いることができる。金属基板と金属箔の樹脂組成物シートによる接着工程、あるいは金属箔付き樹脂組成物シートを得るための塗工工程において、金属箔にキャリアフィルムが貼り付いた状態であることで金属箔の折れ等を抑制することができる。

[0145] その他の製造方法や製造条件、樹脂組成物シートの厚みの好ましい範囲や、樹脂組成物の粘度の好ましい範囲などは、前記樹脂組成物シートに関するものと同様である。

[0146] <熱伝導性絶縁層（Cステージ）>

熱伝導性絶縁層は、後述のメタルベース配線板やメタルベース配線板材料において、金属基板と配線層又は金属箔との間を絶縁させる接着層である。前記樹脂組成物シート（Bステージ）を本硬化（Cステージ化）して熱伝導性絶縁層（Cステージ）とする。

具体的には、金属基板と金属箔の間に前述の樹脂組成物シートを挟み、プレス機等で加圧加熱することにより、金属基板と金属箔とを接着させる。半硬化状態（Bステージ）である前記樹脂組成物シートは、加圧加熱工程で再溶融し、金属基板及び金属箔に樹脂組成物シートが密着し、その後、樹脂組成物シートを本硬化（Cステージ化）して熱伝導性絶縁層（Cステージ）となり、金属基板と金属箔とが接着される。本硬化した後の熱伝導性絶縁層は、加熱によって溶融することはない。

[0147] 本発明の熱伝導性絶縁層は、熱伝導性の絶縁性無機フィラーと熱硬化性樹脂のコンポジットである。熱伝導性の絶縁性無機フィラーとしては、熱伝導率が高く絶縁性である無機セラミックを用いることが好ましい。また、熱硬化性樹脂として熱伝導性の樹脂を用いると、より少ないフィラー含有量で熱伝導率を高めることができる。本発明では、熱伝導性の樹脂として、ビフェ

ニル骨格を有する2官能のエポキシ樹脂を用いることが好ましい。

[0148] ビフェニル骨格を有する2官能のエポキシ樹脂におけるビフェニル骨格は、メソゲン基となるため異方性構造を有している。熱伝導性樹脂層が内部に異方性構造を有すると、高い熱伝導率を示す。一般に、絶縁体の熱伝導は主としてフォノンによるものであり、材料中の欠陥でのフォノンの静的散乱や、分子振動や格子振動の非調和性によるフォノン同士の衝突による動的散乱によって、熱伝導率は低下する。

[0149] しかし、高分子の主鎖方向は主鎖と直角方向（分子鎖間方向）よりも熱伝導率が高い。これは、高分子の主鎖方向は、強い共役結合で結び付けられているため、主鎖方向の振動（フォノン）の調和性が高く、また、フォノンの静的散乱を引き起こす欠陥等も分子鎖間方向よりもはるかに小さいためである。そのため、高分子の主鎖を配向させることで異方的に熱伝導率を高めることができる。高分子の主鎖の配向は、延伸、電場印加、ラビングなど公知の方法により実施される。高分子の主鎖をフィルム面の垂直方向（厚み方向）に配向させると、厚み方向での熱伝導率を高めることができる。

[0150] 他方、高分子の主鎖をフィルム面の水平方向に配向させると、フィルム面内の熱伝導率を増加させることが可能となる。一方で、一般には、高分子の分子鎖間方向である垂直方向の熱伝導率は、配向させない高分子の場合よりも低下する。そのため、一般には、高分子の主鎖をフィルム面の水平方向に配向させた樹脂組成物シートでは、厚み方向での熱伝導率が小さくなる。

[0151] しかし、物質の秩序性が増大すれば、振動の調和性が増加し、欠陥も減少するために、分子鎖間方向（厚み方向）の熱伝導率も増大させることができる。ここで、物質の秩序性が最高のものは完全結晶であるが、高分子絶縁体の完全結晶は、實際上、絶縁性接着材料として適用することが不可能である。それに対して、液晶状態は結晶について高い秩序性を有し、実現も可能である。ビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂は、メソゲン基を有するものであるため、主鎖方向のみならず、分子鎖間方向においても欠陥が少なく、かつ、振動の非調和性も小さい。従って、特定の配向方向に囚われるこ

となく、大きな熱伝導性を示す。

[0152] <メタルベース配線板材料>

図 1 に、本発明のメタルベース配線板材料の一例の断面構造を示す。

メタルベース配線板材料は、金属箔 30 と、金属基板 20 とを有し、金属箔 30 と金属基板 20 との間に、前記樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層 10 を備える。熱伝導性絶縁層 10 の配置により金属基板 20 と金属箔 30 は絶縁される。

[0153] 金属基板 20 は、熱伝導率が高く、熱容量が大きい金属材料からなり、銅、アルミニウム、鉄、リードフレームに使われる合金などが例示できる。金属基板 20 が厚いほどメタルベース配線板の強度が高まるが、電子部品を搭載したメタルベース配線板が金属製シャーシ等にネジや接着性材料等によって一体化される場合は、強度が向上するために金属基板 20 は特に厚い必要はない。金属基板 20 は軽量化や加工性を優先する場合はアルミニウム、強度を優先する場合は鉄、というように目的を応じて材質を選定してもよい。

メタルベース配線板を大きなサイズで作製した後、電子部品実装後に使用するサイズにカットすることが生産性を高めるために好ましい。そのため、金属基板 20 はカットするための加工性が高いことが望ましい。

[0154] アルミニウムの金属基板 20 としては、アルミニウム又はアルミニウムを主成分とする合金を材質として選定でき、その化学組成と熱処理条件により多種類のものが入手可能であるが、高く切削しやすい等の加工性が高く、かつ強度に優れた種類を選定することが好ましい。

[0155] メタルベース配線板材料は、前記樹脂組成物シートを金属基板 20 と金属箔 30 とで挟み、プレス機等で加圧加熱する方法等により作製される。または、金属箔付き樹脂組成物シートと金属基板 20 を加圧加熱する方法等により作製される。前記樹脂組成物シートを硬化する加熱・加圧処理の条件は、樹脂組成物シートの構成に応じて適宜選択される。例えば、加熱温度が 80 ～ 250℃で、圧力が 0.5 ～ 8.0 MPa であることが好ましく、加熱温

度が130～230℃で、圧力が1.5～5.0MPaであることがより好ましい。

[0156] <メタルベース配線板>

図2に、本発明のメタルベース配線板の一例の断面構造を示す。

メタルベース配線板は、金属基板20と配線層40とを有し、金属基板20と配線層40との間に、前記樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層10を備える。熱伝導性絶縁層10の配置により金属基板20と配線層40は絶縁される。

[0157] 配線層40は、メタルベース配線板材料の金属箔30を配線加工することで得られる。金属箔30の配線加工の方法としては、エッチングが工業的に好ましい。

[0158] メタルベース配線板は電子部品を搭載するためのパッド部を除き、ソルダレジストが表面に形成されていることが望ましい。メタルベース配線板材料は回路加工及びソルダレジスト形成の後に、LED光源部材のような電子部品搭載部材のサイズにカットされることが好ましい。例えば、メタルベース配線板のパッド部にはんだ等の電気接続材料を塗布し、電子部品を配置した後に、はんだリフロー工程を通すことで、電子部品が実装される。

[0159] <LED光源部材>

図3に、電子部品としてLEDパッケージを用いたときのLED光源部材の断面構造を示す。図3に示すLED光源部材では、金属基板20と配線層40との間に熱伝導性絶縁層10を備え、配線層40に電子部品50が搭載される。このLED光源機器を用いて、LEDバックライトユニット等が作製でき、あるいはLED電灯やLED電球等を作製することができる。

[0160] LEDパッケージで発生した熱は、はんだ等の電気接続材料、金属箔30から構成されるパッド部、熱伝導性絶縁層10、金属基板20の順に伝導し、放熱させる。本発明の樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層10を用いることで、パッド部から金属基板への放熱性が向上し、LEDパッケージの温度上昇を抑制することができる。

実施例

[0161] 以下、本発明を実施例により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。尚、特に断りのない限り、「部」及び「%」は質量基準である。

[0162] [実施例 1]

<樹脂合成例 1>

攪拌機、冷却器、温度計を備えた 3 L のセパラブルフラスコにレゾルシノール 594 g、カテコール 66 g、37%ホルマリン 316.2 g、シュウ酸 15 g、水 100 g を入れ、オイルバスで加温しながら 100℃ に昇温した。還流温度で 4 時間反応を続けた。

その後水を留去しながら、フラスコ内の温度を 170℃ に昇温した。170℃ を保持しながら 8 時間反応を続けた。その後減圧下、20 分間濃縮を行い系内の水等を除去して、一般式 (I) で表される構造単位を有するフェノール樹脂を取り出した。得られたフェノール樹脂の数平均分子量は 530、重量平均分子量は 930 であった。またフェノール樹脂のフェノール当量は 65 g / eq. であった。

[0163] <ワニス状樹脂組成物>

ポリプロピレン製の 1 L 蓋付き容器中に、粒子径 D50 が 18 μm である絶縁性無機フィラー（住友化学株式会社製、スミコランダム AA18）を 56.80 g（63%（対絶縁性無機フィラー総質量））と、粒子径 D50 が 3 μm である絶縁性無機フィラー（住友化学株式会社製、スミコランダム AA3）を 20.29 g（22.5%（対絶縁性無機フィラー総質量））と、粒子径 D50 が 0.4 μm である絶縁性無機フィラー（住友化学株式会社製、スミコランダム AA04）を 13.07 g（14.5%（対絶縁性無機フィラー総質量））と、を秤量し、シランカップリング剤（信越化学工業株式会社製、KBM403）を 0.099 g、溶剤として 2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を 11.18 g、分散剤（楠本化成株式会社製、ED-113）を 0.180 g、上記樹脂合成例 1 で得られたフェノール樹脂を 5.9

6 g 加えて攪拌した。さらにビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、YL 6 1 2 1 H）を5.914 g、ナフタレン系エポキシ樹脂（DIC株式会社製、HP 4 0 3 2 D）を0.657 g、イミダゾール化合物（四国化成工業株式会社製、2 PH Z）を0.012 g 加えた。さらに、直径5 mmのジルコニア製ボールを500 g 投入し、ボールミル架台上で100 rpmで48時間攪拌した後、ジルコニア製ボールを濾別し、ワニス状の樹脂組成物1を得た。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0164] <粘度>

ワニス状の樹脂組成物1の25℃での粘度をB型粘度計（スピンドルNo. 4、回転数30 rpm）にて測定した。測定結果を表1に示した。

[0165] <樹脂組成物シート>

上記で得られた樹脂組成物1を、バーコーターを用いて、PETフィルム（帝人デュポンフィルム社製、A53）上に塗布し、100℃で20分間乾燥を行なった。乾燥後の膜厚は50 μmであった。乾燥後の樹脂組成物シートを向かい合わせに2枚載置し、ロールラミネーターを用い、110℃、0.3 MPa、送り速度0.3 m/minにて積層し、平均厚さ100 μmの樹脂組成物シート（Bステージシート）を得た。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。

[0166] <絶縁性無機フィラーの含有率>

また、樹脂組成物シート中における全絶縁性無機フィラーが占める割合を以下のように評価した。まず、樹脂組成物シートの重量を測定し、その樹脂組成物シートを400℃2時間次いで700℃3時間焼成し、樹脂分を蒸発させ、残存した絶縁性無機フィラーの質量を測定することで、絶縁性無機フィラーの樹脂組成物シート中の重量比を評価した。次いで、その絶縁性無機フィラーを水中に沈めて、水位の変化から絶縁性無機フィラーの体積を測定した。これより、絶縁性無機機フィラーの比重を評価した。次いで、同様の方法で樹脂組成物シートの比重を評価した。次いで、樹脂シート中の絶縁性

無機フィラーの重量比を絶縁性無機フィラーの比重で除し、さらに樹脂シートの比重を積算した値を絶縁性無機フィラーの体積比率として評価した。評価結果を表1に示す。

[0167] <樹脂組成物シートの最低溶融粘度>

動的粘弾性装置 (Rheometric Scientific, Inc. 製、ARES) により、樹脂組成物シートの複素弾性率の温度依存性を測定し、角周波数で除すことで複素粘度を求めた。

PETフィルムをはく離した樹脂組成物シートを8枚重ね、層厚み0.8 mmのシートを測定サンプルとした。測定サンプルを25 mm ϕ の円板状の測定冶具ではさみ、80℃で10秒間、ずり動作を行った。その後、昇温速度5℃/min、周波数10 Hz、20℃から200℃の範囲の複素粘度を測定した。20℃～200℃での複素粘度の最低値を最低溶融粘度として評価した。

[0168] <樹脂組成物シートの凹部占有率>

樹脂組成物シートの表面形状を三次元非接触表面形状計測システム（菱化システム社製、MM3200）により測定した。250 μ m $\times$ 190 μ mの視野範囲にて表面形状の測定を行った。測定画像データに対して多項式近似を2次とした面補正を行い、かつ、面補正前の測定画像データから近似面を差し引き、補正後の画像データを得た。これにより、樹脂組成物シートの表面高さの傾きが補正された。次いで、平均高さ（平坦部）よりも0.5 μ m低い値を二値化しきい値（閾値）としたベアリング解析により、しきい値（閾値）よりも高い部分の面積率を評価した。これにより、平坦部の面積率を評価した。次いで、前記面積率を100%から差し引いた値を、凹部面積率として評価した。この測定および操作を、試料に対して無作為に10回繰り返し、凹部の占める面積率を平均して、その試料の凹部占有率とした。その結果を表1に示した。

[0169] <メタルベース配線板材料>

PETを剥離した500 mm $\times$ 600 mmの樹脂組成物シートを550 m

m×650mmの銅箔（日本電解社製、35 μ m厚）の粗化面側と500mm×600mmのアルミ基板（A5052、1mm t）の間に挟んで、真空加圧プレスを用い、3kPaの真空下で2MPa加圧にて、140℃で2時間、190℃で2時間加圧加熱し、メタルベース配線板材料を得た。

[0170] ＜熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき＞

熱伝導性絶縁層の厚さばらつきを、銅箔面の凹凸の有無により評価した。なお、評価サンプルのメタルベース配線板材料を500mm×600mmと大きくすると、熱伝導性絶縁層のばらつきは、銅箔面の凹凸として現れる。

[0171] ＜ピール強度の測定＞

JIS-C6481（1996年度版）に準拠して、作製したアルミベース基板を用いて90°ピールの試験片を作製した。金属基板を25mm×100mmに切り出し、中心10mm幅で残した銅箔（35 μ m）を、テンシロン引張試験機（オリエンテック社製 TM-100）を用いて常温で50mm/minの速度で90°の方向に引き剥がし多時の平均荷重から、ピール強度を測定した。

[0172] ＜電気絶縁性＞

得られたメタルベース配線板材料の銅箔を20mm ϕ の丸型パターンを残し、過硫酸アンモニウム水溶液によりエッチングした。耐電圧測定装置（Tokyo TOA Electronics Ltd. Japan製、Puncture Tester PT-1011）により、50個以上の丸型パターンの絶縁破壊電圧を測定した。最も低かった絶縁破壊電圧を表1に示した。

[0173] ＜熱伝導率＞

得られたメタルベース配線板材料の銅箔とアルミ基板をエッチングし、本硬化後の熱伝導性絶縁層を得た。銅箔のエッチングには過硫酸アンモニウム水溶液を用いた。アルミ基板のエッチングには塩酸を用いた。得られた熱伝導性絶縁層の熱伝導率を次のようにして求めた。

[0174] まず、温度波熱分析装置（アイフェイズ社製、アイフェイズ・モバイル1

u) を用いて、温度波の位相差の周波数依存性を測定した。次いで、周波数の平方根に対する位相差の傾きを、周波数 200～400 Hz の範囲にて求めた。この位相差の傾きは $-d(\pi/\alpha)^{0.5}$ と等しく、それゆえ、熱伝導性絶縁層の厚み (d) と位相差の傾きより熱拡散係数 (α) を求めた。

次いで、比熱を示差走査熱量計 (DSC、Perkin Elmer 社製、Ryris 1) にて測定し、密度を電子比重計 (アルファーマラージュ社製、SD-200L) にて測定した。そして、熱伝導率 [W/mK] を次式から求めた。得られた熱伝導率を表 1 に示した。

$$\text{熱伝導率 [W/mK]} = \text{熱拡散率 (熱拡散係数 } (\alpha) \text{) [mm}^2\text{/s]} \times \text{比熱 [J/kg} \cdot \text{K]} \times \text{密度 [g/cm}^3\text{]}$$

[0175] [実施例 2]

<樹脂組成物>

実施例 1 において、アルミナフィラーとして、粒子径 D50 が 20 μm であるアルミナフィラー (昭和電工株式会社製、AS-20) を 62.66 g (69.5% (対アルミナフィラー総質量)) と、粒子径 D50 が 3 μm であるアルミナフィラー (住友化学製、スミコランダム AA3) を 16.77 g (18.6% (対アルミナフィラー総質量)) と、粒子径 D50 が 0.4 μm であるアルミナフィラー (住友化学製、スミコランダム AA04) を 10.73 g (11.9% (対アルミナフィラー総質量)) と、溶剤として 2-ブタノン (和光純薬株式会社製) を 13.5 g、を用いたこと以外は実施例 1 と同様にして、ワニス状の樹脂組成物 2 を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径 D50 と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表 1 に示す。

[0176] <金属箔付き樹脂組成物シート>

上記で得られた樹脂組成物 2 を、バーコーターを用いて、銅箔 (日本電解社製、35 μm) の粗化面上に塗布し、100℃で20分間乾燥を行なった。乾燥後の膜厚は100 μm であった。乾燥後の樹脂層上にPETフィルム (帝人デュポンフィルム社製、A53) を載置し、次いで真空ラミネータ (

名機製作所社製）を用い、3 k P a以下の真空下、130℃、1 M P a加圧において15秒間真空プレスを行って、金属箔付樹脂組成物シート（Bステージシート）を得た。金属箔付樹脂組成物シートにおける樹脂組成物シートの平均厚さは100 μ mであった。

得られた金属箔付樹脂組成物シートは、実施例1と同様の方法で、凹部占有率の評価を行った。

[0177] また、実施例1と同様にして、但し、樹脂組成物シートを銅箔とアルミ基板の間に挟んだところを、上記得られた金属箔付樹脂組成物シートにおける樹脂組成物シート側をアルミ基板に接触させるように変更して、メタルベース配線板材料を作製した。

得られたメタルベース配線板材料は、実施例1と同様の方法で、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を行った。評価結果を表1に示した。

[0178] 更に、上記樹脂組成物2を、実施例1と同様にして、PETフィルム上に樹脂組成物シート（Bステージシート）を作製した。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートの最低溶融粘度を評価した。評価結果を表1に示した。

[0179] [実施例3]

実施例1において、溶剤として2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を9.3 g、上記樹脂合成例1で得られたフェノール樹脂を5.32 g加えて攪拌した。さらにビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、YL6121H）を6.35 g、ナフタレン系エポキシ樹脂（DIC株式会社製、HP4032D）を0.706 g、を用いたこと以外は実施例1と同様にして、ワニス状の樹脂組成物3を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0180] <樹脂組成物シート>

上記で得られた樹脂組成物3に代えた以外は実施例1と同様にして、2枚

重ね合わせて作製した脂組成物シート（Bステージシート）を得た。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートについて、実施例 1 と同様の方法で、最低溶融粘度と凹部占有率の評価を行った。

[0181] <メタルベース配線板材料>

また、実施例 1 と同様にして、但し、樹脂組成物シートを、上記得られた樹脂組成物シートに変えて、メタルベース配線板材料を作製した。得られたメタルベース配線板材料において、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を、実施例 1 と同様の方法で行った。評価結果を表 1 に示した。

[0182] [実施例 4]

実施例 1 において、溶剤として 2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を 13.7 g 加えたこと以外は実施例 1 と同様にして、ワニス状の樹脂組成物 4 を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径 D₅₀ と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表 1 に示す。

[0183] 次いで、実施例 1 と同様にして、但し樹脂組成物 1 を樹脂組成物 4 に変えて、樹脂組成物シートを作製した。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートについて、実施例 1 と同様に、最低溶融粘度、及び凹部占有率の評価を行った。

更に、実施例と同様にして、上記得られた樹脂組成物シートに変えてメタルベース配線板材料を作製し、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を行った。評価結果を表 1 に示した。

[0184] [実施例 5]

実施例 1 において、溶剤として 2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を 9.3 g、上記樹脂合成例 1 で得られたフェノール樹脂を 5.32 g 加えて攪拌した。さらにビフェニル骨格を有する 2 官能エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、YL6121H）を 6.35 g、ナフタレン系エポキシ樹脂（DIC 株式会社製、HP4032D）を 0.706 g、を用いたこと以外は実施

例 1 と同様に、ワニス状の樹脂組成物 5 を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径 D 5 0 と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表 1 に示す。

[0185] <樹脂組成物シート>

上記で得られた樹脂組成物 5 を、バーコーターを用いて、PET フィルム（帝人デュポンフィルム社製、A 5 3）上に塗布し、100℃で20分間乾燥を行なった。乾燥後の膜厚は38 μmであった。乾燥後の樹脂組成物シートを向かい合わせに2枚載置し、ロールラミネーターを用い、110℃、0.3 MPa、送り速度0.3 m/minにて積層し、平均厚さ75 μmの樹脂組成物シート（Bステージシート）を得た。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。

[0186] <メタルベース配線板材料>

また、実施例 1 と同様に、但し、樹脂組成物シートを、上記得られた樹脂組成物シートに変えて、メタルベース配線板材料を作製した。得られたメタルベース配線板材料において、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を、実施例 1 と同様の方法で行った。評価結果を表 1 に示した。

[0187] [実施例 6]

実施例 1 において、溶剤として2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を9.3 g、上記樹脂合成例 1 で得られたフェノール樹脂を5.32 g 加えて攪拌した。さらにビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、YL 6 1 2 1 H）を6.35 g、ナフタレン系エポキシ樹脂（DIC 株式会社製、HP 4 0 3 2 D）を0.706 g、を用いたこと以外は実施例 1 と同様に、ワニス状の樹脂組成物 6 を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径 D 5 0 と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表 1 に示す。

[0188] <樹脂組成物シート>

上記で得られた樹脂組成物 6 を、バーコーターを用いて、PET フィルム

(帝人デュポンフィルム社製、A53)上に塗布し、100℃で20分間乾燥を行なった。乾燥後の膜厚は63 μ mであった。乾燥後の樹脂組成物シートを向かい合わせに2枚載置し、ロールラミネーターを用い、110℃、0.3MPa、送り速度0.3m/minにて積層し、平均厚さ125 μ mの樹脂組成物シート(Bステージシート)を得た。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。

[0189] <メタルベース配線板材料>

また、実施例1と同様にして、但し、樹脂組成物シートを、上記得られた樹脂組成物シートに変えて、メタルベース配線板材料を作製した。得られたメタルベース配線板材料において、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を、実施例1と同様の方法で行った。評価結果を表1に示した。

[0190] [実施例7]

[0191] 無機充填材混合物を粒子径D50が31 μ mであるアルミナ(AL35-63、マイクロン社製、密度3.80g/ml)63部、粒子径D50が5 μ mであるアルミナ(AX3-32、マイクロン社製、密度3.77g/ml)18部、粒子径D50が0.5 μ mであるアルミナ(LS-235、日本軽金属株式会社製、密度3.94g/ml)17部を、粒子径D50が0.7 μ mである真球状アルミナ(AO802、株式会社アドマテックス製、密度3.7g/ml)2部を混合して得た。

[0192] ポリプロピレン製の100mL蓋付き容器中に、前記の無機充填材混合物を90.16g秤量し、シランカップリング剤(信越化学工業株式会社製、KBM403)を0.099g、溶剤として2-ブタノン(和光純薬株式会社製)を14.33g、分散剤(楠本化成株式会社製、ED-113)を0.36g、上記樹脂合成例1で得られたフェノール樹脂を2.62g(固形分)加えて攪拌した。さらにビフェニル骨格を有する2官能エポキシ樹脂(三菱化学株式会社製、YL6121H)を6.24g、ナフタレン系エポキシ樹脂(DIC株式会社製、HP4032D)を0.69g、イミダゾール

化合物（四国化成工業株式会社製、2PZ-CN）を0.100g加えた。さらに、直径5mmのアルミナ製ボールを120g投入し、ボールミル架台上で、100rpmで12時間攪拌した後、アルミナ製ボールを濾別し、ワニス状の樹脂組成物7を得た。

[0193] 実施例1と同様にして、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0194] 次いで、実施例1と同様にして、但し樹脂組成物1を樹脂組成物7に変えて、樹脂組成物シートを作製した。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートについて、実施例1と同様に、最低溶融粘度、及び凹部占有率の評価を行った。

更に、実施例と同様にして、上記得られた樹脂組成物シートに変えてメタルベース配線板材料を作製し、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を行った。評価結果を表1に示した。

[0195] [実施例8]

[0196] 1-（3-メチル-4-オキシラニルメトキシフェニル）-4-（4-オキシラニルメトキシフェニル）-1-シクロヘキセン100質量部と、上記樹脂合成例1で得られたフェノール樹脂（日立化成工業試作品）32質量部と、トリフェニルホスフィン1.3質量部と、KBM-573（信越化学工業社製）1.3質量部と、アルミナ粉末1483質量部（住友化学株式会社製 α -アルミナ粉末；平均粒子径が18 μ mのアルミナ979質量部と、平均粒子径が3 μ mのアルミナ356質量部と、平均粒子径が0.4 μ mのアルミナ148質量部との混合物）と、シクロヘキサノン300質量部を混合し、ビニルシランにより疎水処理されたシリカナノ粒子（アドマテックス社製、商品名：アドマナノ、平均粒子径：15nm、NV：23質量%）スラリーを固形分換算で15.7質量部相当添加し、ワニス状の樹脂組成物8を調整し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0197] <樹脂組成物シート>

樹脂組成物について、アプリケーションでポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム上に乾燥後厚みが200 μ mとなるように塗布した後、30分室温で放置し、乾燥させた。温度100℃で、30分間更に乾燥させた後、真空プレスにて熱間加圧（プレス温度120℃、真空度1kPa、プレス圧1MPa、処理時間1分）を行い、平均厚さ200 μ mの樹脂組成物樹脂シート（Bステージシート）を得た。得られた樹脂組成物シートについて、実施例1と同様の方法で、最低溶融粘度と凹部占有率の評価を行った。

[0198] <メタルベース配線板材料>

PETを剥離した500mm×600mmの樹脂組成物シートを550mm×650mmの銅箔（日本電解社製、35 μ m厚）の粗化面側と500mm×600mmのアルミ基板（A5052、1mm厚）の間に挟んで、真空加圧プレスを用い、3kPaの真空下で4MPa加圧にて、150℃で5分間加圧加熱した。次いで、大気圧条件下にて140℃で2時間、190℃で2時間加熱し、メタルベース配線板材料を得た。

得られたメタルベース配線板材料において、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を、実施例1と同様の方法で行った。評価結果を表1に示した。

[0199] [比較例1]

実施例1において、溶剤として2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を18.2g加えたこと以外は実施例1と同様にして、ワニス状の樹脂組成物9を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0200] 次いで、実施例1と同様にして、但し樹脂組成物1を樹脂組成物9に変えて、樹脂組成物シートを作製した。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートについて、実施例1と同様に、最低溶融粘度、及び凹部占有率の評価を行った。

更に、実施例と同様にして、上記得られた樹脂組成物シートに変えてメタ

ルベース配線板材料を作製し、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を行った。評価結果を表1に示した。

[0201] [比較例2]

実施例2において、溶剤として2-ブタノン（和光純薬株式会社製）を19.3g加えたこと以外は実施例2と同様にして、ワニス状の樹脂組成物10を調製し、粘度を評価した。配合した各々の絶縁性無機フィラーの粒子径D50と絶縁性無機フィラー総質量に対する重量比を表1に示す。

[0202] 次いで、実施例1と同様にして、但し樹脂組成物1を樹脂組成物10に変えて、樹脂組成物シートを作製した。得られた樹脂組成物シートは可とう性に優れていた。得られた樹脂組成物シートについて、実施例1と同様に、最低溶融粘度、及び凹部占有率の評価を行った。

更に、実施例と同様にして、上記得られた樹脂組成物シートに変えてメタルベース配線板材料を作製し、熱伝導性絶縁層の厚さのばらつき、ピール強度、電気絶縁性、及び熱伝導率の評価を行った。評価結果を表1に示した。

[0203]

[表1]

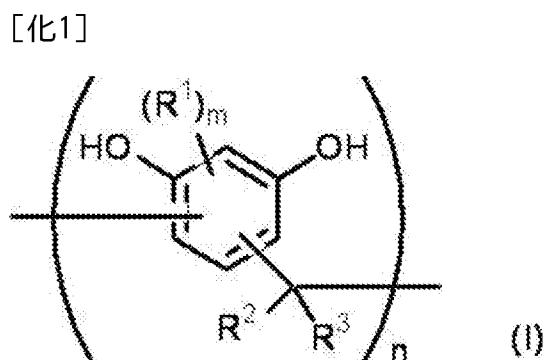
	第1のアルミナ		第2のアルミナ		第3のアルミナ-1		第3のアルミナ-2		樹脂組成物		樹脂組成物シート			銅箔面の凹凸	ピール強度 [N/m]	絶縁破壊電圧の最低値 [kV]	絶縁性 熱伝導率 [W/mK]
	粒子径 D50 [μm]	含有比率 対総アルミナ [質量%]	粒子径 D50 [μm]	含有比率 対総アルミナ [質量%]	粒子径 D50 [μm]	含有比率 対総アルミナ [質量%]	粒子径 D50 [μm]	含有比率 対総アルミナ [質量%]	粘度 [mPa·s]	総アルミナの含有率 [Vol%]	厚さ [μm]	最低粘着強度 [Pa·s]	凹部占有率 [%]				
実施例1	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	3100	73	100	40	2	なし	1.6	6.1	4.6
実施例2	20	69.5	3	18.6	0.4	11.9	—	—	2500	73	100	20	3	なし	1.7	4.5	4.8
実施例3	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	5500	73	100	100	1	なし	1.5	5.8	4.5
実施例4	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	1700	73	100	50	4	なし	1.5	2.5	4.5
実施例5	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	5500	73	75	100	1	なし	1.5	5.0	4.5
実施例6	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	5500	73	125	100	1	なし	1.5	6.7	4.5
実施例7	31	63.0	5	18.0	0.5	17.0	0.7	2.0	3000	73	100	200	1	なし	1.8	6.9	5.0
実施例8	18	65.9	3	23.9	0.4	10.0	0.015	0.2	1700	73	200	20	1	なし	1.5	7.0	8.3
比較例1	18	63.0	3	22.5	0.4	14.5	—	—	700	73	100	30	10	あり	1.5	12	4.6
比較例2	20	69.5	3	18.6	0.4	11.9	—	—	950	73	100	20	5	なし	1.5	1.5	4.5

[0204] 表 1 から実施例 1 ～ 8 の樹脂組成物シートの硬化物は、比較例 1 ～ 2 に比べて、熱伝導率と電気絶縁性に優れていることが分かる。

[0205] 尚、本発明における樹脂組成物シートは、熱硬化性樹脂として上記実施例で用いた樹脂以外のものを用いても、表面において、最大深さ $0.5 \mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で 4 % 以下である樹脂組成物シートであれば同様の効果を得ることができる。

請求の範囲

- [請求項1] 熱硬化性樹脂と、フェノール樹脂と、絶縁性無機フィラーとを含み、
- 表面における、最大深さ $0.5 \mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で 4% 以下である樹脂組成物シート。
- [請求項2] $20^\circ\text{C} \sim 200^\circ\text{C}$ での最低溶融粘度が、 $10 \sim 1000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である請求項1に記載の樹脂組成物シート。
- [請求項3] 前記絶縁性無機フィラーが、 $40 \text{ vol}\%$ 以上 $82 \text{ vol}\%$ 以下で含有される請求項1又は請求項2に記載の樹脂組成物シート。
- [請求項4] 前記絶縁性無機フィラーが、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、及びフッ化アルミニウムのフィラーからなる群より選択される少なくとも一種のフィラーである請求項1～請求項5のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。
- [請求項5] 前記フェノール樹脂が、下記一般式 (I) で表される構造単位を有する請求項1～請求項6のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。



[一般式 (I) 中、 R^1 は、アルキル基、アリール基、又はアラルキル基を表し、 R^2 及び R^3 は、各々独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、又はアラルキル基を表し、 m は $0 \sim 2$ の整数を、 n は $1 \sim 10$ の整数を表わす。]

- [請求項6] 前記熱硬化性樹脂と、前記フェノール樹脂と、前記絶縁性無機フィ

ラーとを含む樹脂組成物から形成されてなり、

前記樹脂組成物は、粘度が $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $10000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であり、

前記樹脂組成物を支持基材上に塗布して形成されてなる請求項1～請求項95のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

[請求項7] $20^{\circ}\text{C}\sim 200^{\circ}\text{C}$ での最低溶融粘度が、 $10\text{ Pa}\cdot\text{s}\sim 1000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ であり、

表面における、最大深さ $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上である凹部の占有率が、面積率で4%以下である樹脂組成物シート。

[請求項8] 平均厚みが、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $500\text{ }\mu\text{m}$ 以下である請求項1～請求項87のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート。

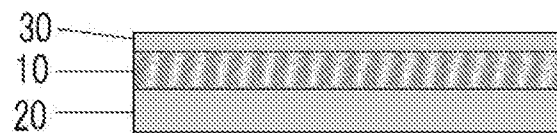
[請求項9] 請求項1～請求項8のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートと、金属箔と、を有する金属箔付樹脂組成物シート。

[請求項10] 金属箔と、
金属基板と、
前記金属箔と前記金属基板との間に、請求項1～請求項8のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層と、
を有するメタルベース配線板材料。

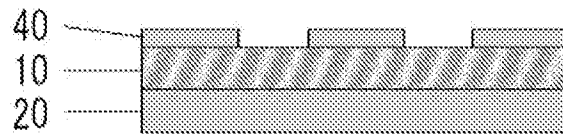
[請求項11] 配線層と、
金属基板と、
前記配線層と前記金属基板との間に、請求項1～請求項8のいずれか1項に記載の樹脂組成物シートの硬化物である熱伝導性絶縁層と、
を有するメタルベース配線板。

[請求項12] 請求項1～請求項8のいずれか1項に記載の樹脂組成物シート、請求項9に記載の金属箔付樹脂組成物シート、請求項10に記載のメタルベース配線板材料、又は請求項11のメタルベース配線板、のいずれか1つを用いて形成されたLED光源部材。

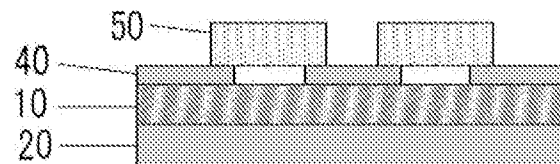
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051263

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08J5/18(2006.01)i, B32B15/08(2006.01)i, C08G59/62(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H05K1/03(2006.01)i, H05K1/05(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08J5/18, B32B15/08, C08G59/62, C08K3/00, C08L63/00, H05K1/03, H05K1/05

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2012-031402 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 16 February 2012 (16.02.2012), claims; examples (Family: none)	1-12
E, X	JP 2012-031401 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 16 February 2012 (16.02.2012), claims; examples (Family: none)	1-12
P, A	WO 2012/002546 A1 (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 05 January 2012 (05.01.2012), claims; examples (Family: none)	1-12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
06 April, 2012 (06.04.12)

Date of mailing of the international search report
24 April, 2012 (24.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051263

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, Y	JP 2011-090868 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 06 May 2011 (06.05.2011), claims; paragraphs [0010], [0020], [0022], [0030] to [0032] & WO 2011/048885 A1	1-4, 6-9 5, 10-12
Y	JP 2007-262398 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 11 October 2007 (11.10.2007), claims; paragraphs [0031], [0050] (Family: none)	5, 10-12
Y	JP 2009-117598 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 28 May 2009 (28.05.2009), claims; paragraph [0026] (Family: none)	10-12
A	JP 2006-124434 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 18 May 2006 (18.05.2006), claims; paragraphs [0025], [0034] to [0036] (Family: none)	1
A	JP 2010-132890 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 17 June 2010 (17.06.2010), claims; paragraph [0052] (Family: none)	5

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08J5/18(2006.01)i, B32B15/08(2006.01)i, C08G59/62(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H05K1/03(2006.01)i, H05K1/05(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08J5/18, B32B15/08, C08G59/62, C08K3/00, C08L63/00, H05K1/03, H05K1/05

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

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

WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
E, X	JP 2012-031402 A（日立化成工業株式会社）2012.02.16, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-12
E, X	JP 2012-031401 A（日立化成工業株式会社）2012.02.16, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-12
P, A	WO 2012/002546 A1（日立化成工業株式会社）2012.01.05, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-12

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 6 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 4 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

岩田 行剛

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

4 J

2 9 3 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X P, Y	JP 2011-090868 A (電気化学工業株式会社) 2011.05.06, 特許請求の範囲、[0010]、[0020]、[0022]、[0030]-[0032] & W0 2011/048885 A1	1-4, 6-9 5, 10-12
Y	JP 2007-262398 A (日立化成工業株式会社) 2007.10.11, 特許請求の範囲、[0031]、[0050] (ファミリーなし)	5, 10-12
Y	JP 2009-117598 A (電気化学工業株式会社) 2009.05.28, 特許請求の範囲、[0026] (ファミリーなし)	10-12
A	JP 2006-124434 A (松下電工株式会社) 2006.05.18, 特許請求の範囲、[0025]、[0034]-[0036] (ファミリーなし)	1
A	JP 2010-132890 A (日立化成工業株式会社) 2010.06.17, 特許請求の範囲、[0052] (ファミリーなし)	5