

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5192812号
(P5192812)

(45) 発行日 平成25年5月8日 (2013.5.8)

(24) 登録日 平成25年2月8日 (2013.2.8)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 L 63/00 (2006.01)

C O 8 L 63/00 C

C O 8 G 59/62 (2006.01)

C O 8 G 59/62

C O 8 K 3/20 (2006.01)

C O 8 K 3/20

C O 8 K 3/36 (2006.01)

C O 8 K 3/36

H O 1 L 23/12 (2006.01)

H O 1 L 23/12

S

請求項の数 12 (全 15 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-534408 (P2007-534408)
 (86) (22) 出願日 平成18年9月4日 (2006.9.4)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2006/317479
 (87) 国際公開番号 W02007/029657
 (87) 国際公開日 平成19年3月15日 (2007.3.15)
 審査請求日 平成21年7月10日 (2009.7.10)
 (31) 優先権主張番号 特願2005-256194 (P2005-256194)
 (32) 優先日 平成17年9月5日 (2005.9.5)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000003296
 電気化学工業株式会社
 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号
 日本橋三井タワー
 (74) 代理人 100090918
 弁理士 泉名 謙治
 (74) 代理人 100082887
 弁理士 小川 利春
 (74) 代理人 100072774
 弁理士 山本 量三
 (72) 発明者 宮田 建治
 群馬県渋川市中村1135番地 電気化学
 工業株式会社 渋川工場内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 樹脂組成物、それを用いた混成集積用回路基板

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

エポキシ樹脂と前記エポキシ樹脂の硬化剤とからなる硬化性樹脂に無機フィラーを充填してなる樹脂組成物であって、前記硬化剤がフェノールノボラック樹脂からなり、前記無機フィラーが、平均粒子径が5～20 μmである粗粉と、平均粒子径が0.2～1.5 μmである微粉とからなり、前記粗粉が結晶質二酸化珪素であり、前記微粉が結晶質二酸化珪素又は球状酸化アルミニウムであり、前記無機フィラーの充填量が50～75体積%であり、かつ、その硬化体の比誘電率が4.1～4.9であることを特徴とする樹脂組成物。

【請求項 2】

前記無機フィラーが、最大粒子径が100 μm以下で且つ粒子径5～50 μmのものを50体積%以上含有する粗粉と、粒子径2.0 μm以下のものを70体積%以上含有する微粉とからなることを特徴とする請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項 3】

硬化性樹脂が25～50体積%であり、無機フィラーの粗粉が34～70体積%であり、かつ無機フィラーの微粉が3～24体積%であることを特徴とする請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

【請求項 4】

粗粉と微粉のいずれもが、結晶質二酸化珪素であることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物。

10

20

【請求項 5】

請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物の硬化体からなることを特徴とする樹脂硬化体。

【請求項 6】

熱伝導率が $1.5 \sim 5.0 \text{ W/mK}$ であることを特徴とする請求項 5 に記載の樹脂硬化体。

【請求項 7】

金属基板上に、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる絶縁層を設け、該絶縁層上に金属箔を設けてなることを特徴とする混成集積回路用の基板。

【請求項 8】

金属基板上に、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる絶縁層を設け、該絶縁層上に金属箔を設けてなる基板を用いて、前記金属箔を加工して回路を形成してなることを特徴とする混成集積回路基板。

【請求項 9】

エポキシ樹脂とフェノールノボラック樹脂からなる硬化剤とを混合し、硬化する前に無機フィラーを配合し混合することを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物の製造方法。

【請求項 10】

金属基板上に、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる第 1 の絶縁層を設け、前記第 1 の絶縁層上に回路基板を設けるとともに、前記第 1 の絶縁層上に更に請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる第 2 の絶縁層を設け、前記第 2 の絶縁層上に高発熱性電子部品が設けられていることを特徴とする金属ベース多層回路基板。

【請求項 11】

第 1 の絶縁層と第 2 の絶縁層との間に金属層を設けたことを特徴とする請求項 10 に記載の金属ベース多層回路基板。

【請求項 12】

第 2 の絶縁層の厚さが $50 \mu\text{m}$ 以上 $200 \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項 10 又は 11 に記載の金属ベース多層回路基板。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気絶縁性に優れ、しかも熱伝導率が高い、電気部品や電子部品の放熱部材料、特に金属板との密着性にも優れることから、金属板上に絶縁層を介して回路を設けてなる金属ベース回路基板用の前記絶縁層に用いて好適な樹脂組成物に関する。また、本発明は、前記樹脂組成物の製造方法と、前記樹脂組成物を用いてなる混成集積回路用の基板、回路基板に関する。

【背景技術】

【0002】

金属板上に無機フィラーを充填した樹脂からなる絶縁層を介して回路が形成されている金属ベース回路基板が公知であり、その絶縁層として、球状の無機フィラーを高充填し、接着剤組成物としての接着力を十分に保持し、しかも高熱伝導率を兼備した樹脂組成物が知られている（特許文献 1）。

【特許文献 1】特開平 2 - 286768 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

しかし、球状の無機フィラーは、例えば球状シリカ、球状アルミナ等が知られているが、これらは火炎溶融等の特殊な製造方法により提供されているものであるから、得られる基板、回路基板等の特性は良いものの、価格的に高価とならざるを得ないという欠点を有

10

20

30

40

50

している。そのため、入手容易な破砕品の無機フィラーを用いて、前記特性を発揮できる樹脂組成物の探索が産業界に於いて重要視されている。

【0004】

すなわち、本発明の目的は、粉碎品の無機フィラーを用い、金属板や金属箔との接着性に優れ、高熱伝導性を発揮し、その結果として、信頼性の高い混成集積回路を提供できる基板、並びに回路基板を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明は、エポキシ樹脂と前記エポキシ樹脂の硬化剤とからなる硬化性樹脂に無機フィラーを充填してなる樹脂組成物であって、前記硬化剤がフェノールノボラック樹脂からなり、前記無機フィラーが、平均粒子径が $5 \sim 20 \mu\text{m}$ である粗粉と、平均粒子径が $0.2 \sim 1.5 \mu\text{m}$ である微粉とからなり、前記粗粉が結晶質二酸化珪素であり、前記微粉が結晶質二酸化珪素又は球状酸化アルミニウムであり、前記無機フィラーの充填量が $50 \sim 75$ 体積%であり、前記無機フィラーの充填量が 75 体積%以下であり、かつ、その硬化体の比誘電率が $4.1 \sim 4.9$ であることを特徴とする樹脂組成物である。また、好ましくは、硬化性樹脂 $25 \sim 50$ 体積%、無機フィラーの粗粉が $34 \sim 70$ 体積%、無機フィラーの微粉が $3 \sim 24$ 体積%であることを特徴とする前記の樹脂組成物である。また、粗粉と微粉のいずれもが結晶質二酸化珪素であることを特徴とする前記の樹脂組成物である。

10

【0006】

本発明は、前記の樹脂組成物の硬化体からなる樹脂硬化体であり、好ましくは、熱伝導率が $1.5 \sim 5.0 \text{ W/mK}$ であることを特徴とする前記の樹脂硬化体である。

20

【0007】

本発明は、金属基板上に、前記の樹脂組成物からなる絶縁層を設け、該絶縁層上に金属箔を設けてなることを特徴とする混成集積回路用の基板である。

【0008】

本発明は、金属基板上に、前記の樹脂組成物からなる絶縁層を設け、該絶縁層上に金属箔を設けてなる基板を用いて、前記金属箔を加工して回路を形成してなることを特徴とする混成集積回路用回路基板である。

【0009】

更に、本発明は、エポキシ樹脂とフェノールノボラック樹脂からなる硬化剤とを混合し、硬化する前に無機フィラーを配合し混合することを特徴とする前記の樹脂組成物の製造方法である。

30

【0010】

本発明は、金属基板上に前記の樹脂組成物からなる第1の絶縁層を設け、回路を形成した後、更に前記樹脂組成物からなる第2の絶縁層を設け、その上に回路を設けてなることを特徴とする金属ベース多層回路基板である。

【発明の効果】

【0011】

本発明の樹脂組成物は、エポキシ樹脂と特定のエポキシ樹脂硬化剤を選定し、しかも特定粒度分布の無機フィラーを選択しているため、アルミニウム、銅、或いはこれらの合金等からなる金属板や金属箔との接着性が良い。しかも高熱伝導性の樹脂硬化体を与えるので、電気部品や電子部品の電気絶縁性で熱放散性に富む部品、特に混成集積回路用の基板や回路基板に用いて好適である。

40

本発明の樹脂組成物は、高い耐熱性を有する硬化物を奏することができる。

【0012】

本発明の樹脂硬化体は、金属との接着に富み、しかも電気絶縁性と熱伝導率に優れる。好ましい実施態様に於いては、 $1.5 \sim 5.0 \text{ W/mK}$ もの高い熱伝導率を示すので、混成集積回路用の基板、回路基板を始めとするいろいろな電気部品、電子部品の放熱用材料として好適である。

【0013】

50

本発明の基板、更に本発明の回路基板、多層回路基板は、前記樹脂組成物を用いているので、樹脂硬化体の特徴を示して、電気絶縁性と熱伝導性に優れるので、これを用いて信頼性の高い混成集積回路を容易に得ることができる。

【 0 0 1 4 】

本発明の樹脂組成物の製造方法は、エポキシ樹脂と、エポキシ樹脂の硬化剤と、無機フィラーとを特定な順序で配合し、混合することにより、樹脂組成物中に泡が残留することを防止できる。その結果、樹脂硬化体の高電気絶縁性と高熱伝導性とが安定して発揮できるという効果が得られる。更にその結果として、信頼性の高い混成集積回路の提供に貢献できる。

【発明を実施するための最良の形態】

10

【 0 0 1 5 】

本発明に於いて使用するエポキシ樹脂としては、公知のエポキシ樹脂、例えばビスフェノール A 型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、水添ビスフェノール A 型エポキシ樹脂等を用いることができる。このうちビスフェノール A 型エポキシ樹脂が、電気絶縁性、熱伝導率が共に高く、耐熱性の高い樹脂硬化体を得られることから好ましく選択される。

【 0 0 1 6 】

更に、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂については、エポキシ当量 3 0 0 以下であることが一層好ましい。エポキシ当量が 3 0 0 以下であれば、高分子タイプになるときに見られる架橋密度の低下による T g の低下、従って耐熱性の低下を引き起こすことが防止されるからである。また、分子量が大きくなると、液状から固形状となり、無機フィラーを硬化性樹脂中にブレンドすることが困難になり、均一な樹脂組成物を得られなくなるという問題をも避けることができる。

20

【 0 0 1 7 】

また、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂は加水分解性塩素濃度が 6 0 0 p p m 以下であることが好ましい。加水分解性塩素濃度が 6 0 0 p p m 以下であれば、混成集積回路基板として十分な耐湿性を示すことができる。

ここで、加水分解性塩素濃度とは、エポキシ樹脂の合成時の副反応によって生じる有機塩素不純物（水の存在下で加水分解する塩素イオン）の濃度を意味する。

【 0 0 1 8 】

30

本発明では、前記エポキシ樹脂の硬化剤として、フェノールノボラック樹脂を使用する。フェノールノボラック樹脂は、数平均分子量 1 5 0 0 以下であることが好ましい。平均分子量が 1 5 0 0 以下であれば、軟化点が高温度であるために無機フィラーを硬化性樹脂中にブレンドすることが困難になるという問題を避けることができる。

【 0 0 1 9 】

フェノールノボラック樹脂は、加水分解性塩素濃度が 1 0 p p m 以下であることが好ましい。加水分解性塩素濃度が 1 0 p p m 以下であれば、混成集積回路基板として十分な耐湿性を確保できる。

【 0 0 2 0 】

本発明では、無機フィラーとして特定粒度分布のものを採用する。即ち、(a) 最大粒子径が 1 0 0 μ m 以下で且つ粒子径 5 ~ 5 0 μ m のものを 5 0 体積 % 以上含有し平均粒子径が 5 ~ 2 0 μ m である粗粉と、(b) 粒子径 2 . 0 μ m 以下のものを 7 0 体積 % 以上含有し平均粒子径が 0 . 2 ~ 1 . 5 μ m である微粉とからなる混合粉を用いる。

40

粗粉としては、粒子径 5 ~ 5 0 μ m のものを 5 0 体積 % 以上、好ましくは 6 0 体積 % 以上含有し、平均粒径が 5 ~ 2 0 μ m、好ましくは 1 0 ~ 1 5 μ m である。また、微粉としては、粒子径 2 . 0 μ m 以下のものを 7 0 体積 % 以上含有し、平均粒子径が 0 . 2 ~ 1 . 5 μ m、好ましくは 1 . 0 ~ 1 . 5 μ m である。

前記粒度特定分布を有する粗粉と微粉とを混合使用する時、粗粉と微粉との両方が球状粒子からなる無機フィラーを用いることなく、本発明の目的を達成することができる。

【 0 0 2 1 】

50

本発明に使用できる無機フィラーとしては、前記粗粉が結晶質二酸化珪素であり、前記微粉が結晶質二酸化珪素又は球状酸化アルミニウムであり、特に、前記粗粉と微粉のいずれもが、結晶質二酸化珪素であるのが好ましい。結晶質二酸化珪素（石英）が、熱伝導率が 12 W/mK （レーザーフラッシュ法）以上である。また、その誘電率（ 25 、 1 MHz ）が 4.0 以下であり、本発明の樹脂組成物とその硬化体を高周波で用いる電気、電子部品の放熱材料に用いる場合に、電気絶縁性が確保しやすいことから好ましく、選択される

【0022】

また、前記結晶質二酸化ケイ素について、その電気伝導度が $50\text{ }\mu\text{S/cm}$ 以下であること、 Cl^- や Na^+ といったイオン性不純物量が 20 ppm 以下であることが、混成集積回路用の基板として十分な耐湿性を確保し易くなるので好ましい。

10

【0023】

本発明に於いて、無機フィラーの微粉としては、前記結晶質二酸化珪素を用いれば、結晶質二酸化珪素の有する特徴を反映して、低誘電率で、高電気絶縁性で、高熱伝導性の樹脂硬化体が得られるので好ましい。また、球状酸化アルミニウム等を使用すれば、樹脂組成物の流動性が高まるので、より無機フィラーの充填量を上げることができ、その結果高電気絶縁性で高熱伝導率の樹脂硬化体を得ることができるので好ましい。

【0024】

20

本発明に於いて、硬化性樹脂と無機フィラーとの配合割合としては、硬化性樹脂 $25 \sim 50$ 体積％、無機フィラーの粗粉が $34 \sim 70$ 体積％、無機フィラーの微粉が $3 \sim 24$ 体積％であることが好ましく、より好ましくは、硬化性樹脂 $28 \sim 45$ 体積％、無機フィラーの粗粉が $40 \sim 60$ 体積％、無機フィラーの微粉が $10 \sim 22$ 体積％である。前記配合範囲内とすれば、均質で気孔の混入を防止でき、しかも無機フィラーが高充填されて、熱伝導性と電気絶縁性が共に良好な樹脂硬化体が安定して得られる。これを用いて作製した基板や回路基板、更に混成集積回路が高い信頼性を有するものとなる。

【0025】

本発明の樹脂組成物の製造方法としては、公知の方法で得ることができるが、次に示す方法が、樹脂組成物中に気泡が巻き込まれるのを防止し、安定して、金属との接着性に優れ、高電気絶縁性で熱伝導性に優れる樹脂硬化体を得ることができることから、好ましい。

30

【0026】

本発明の樹脂組成物の製造方法は、エポキシ樹脂とフェノールノボラック樹脂からなる硬化剤とを混合し、その後、硬化する前に、無機フィラーを配合し混合することの特徴とする。ここで用いる混合機については、万能混合攪拌機、遊星式攪拌脱泡装置、加圧ニーダー等の従来公知の混合機を用いればよい。また、混合条件についても適宜選択すればよく、格別な条件を設定すべき理由はない。

【0027】

本発明の樹脂硬化体は、前記樹脂組成物の硬化体であり、高電気絶縁性であると共に高熱伝導性を有し、更にアルミニウム、銅、それらの合金等の金属との接着性にも優れる特徴を有する。したがって、いろいろな電気部品や電子部品の絶縁材料として利用できるが、特に混成集積回路用の基板、回路基板の絶縁層として好適である。また、好ましい実施態様に於いては、 $1.5 \sim 5.0\text{ W/mK}$ もの高い熱伝導率を有する。

40

【0028】

本発明の基板と回路基板は、金属板上に前記樹脂組成物からなる絶縁層を有し、更に該絶縁層上にアルミニウム、銅、或いはこれらの合金等からなる金属箔、或いは前記金属箔をエッチング等の方法で加工して得た回路、を設けた構造を有している。そこで、前記樹脂組成物或いはその硬化体の特性を反映して、耐電圧特性に優れ、また熱放散性にも優れる特徴を有するので混成集積回路に用いて好適である。更に、好ましい実施態様では、無

50

機フィラーの粗粉と微粉のいずれもが結晶質二酸化ケイ素からなるので、誘電容量が小さく、高周波を使用する集積回路用の基板、回路基板としても好適である。

【0029】

本発明の金属ベース多層回路基板は、前記回路基板上に前記樹脂組成物からなる絶縁層を設け、更に該絶縁層上にアルミニウム、銅、或いはこれらの合金等からなる金属箔、或いは前記金属箔をエッチング等の方法で加工して得た回路、を設けた構造を有している。したがって、回路の実装密度が向上する特徴を有し、混成集積回路に用いて好適である。また、前記樹脂組成物或いはその硬化体の特性を反映して、耐電圧特性に優れ、また熱放散性にも優れる特徴を有するので混成集積回路に用いて好適である。更に、好ましい実施態様では、無機フィラーの粗粉と微粉のいずれもが結晶質二酸化ケイ素からなるので、誘電容量が小さく、高周波を使用する集積回路用の基板、回路基板としても好適である。

10

【実施例】

【0030】

(実施例1)

まず、無機フィラーの粗粉として、結晶質二酸化珪素（龍森社製、A-1：最大粒径が $96\mu\text{m}$ （ $100\mu\text{m}$ 以下）で、 $5\sim 50\mu\text{m}$ の粒子を60体積%含有し、平均粒子径が $12\mu\text{m}$ ）55質量部と、無機フィラーの微粉として、結晶質二酸化珪素（龍森社製、5X； $2.0\mu\text{m}$ 以下が70体積%で、平均粒子径が $1.2\mu\text{m}$ ）14質量部とを混合して、原料無機フィラーとした。

【0031】

20

ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂（ジャパンエポキシレジン社製、EP828）20質量部に、硬化剤としてフェノールノボラック樹脂（大日本インキ化学工業社製、TD-2131）を9質量部、シランカップリング剤（日本ユニカー社製、A-187）1質量部を添加して、加熱温度 90°C で混練機により混練しながら、前記原料無機フィラーを混合して、回路基板用の樹脂組成物（a）を作製した。

【0032】

樹脂組成物（a）100質量部に対して、硬化促進剤としてイミダゾール系硬化促進剤（四国化成社製、TBZ）を0.05質量部加え、樹脂組成物（b）を得た。

【0033】

樹脂組成物（b）を 150°C で1時間、更に 180°C で2時間加熱して樹脂硬化物を得た。この硬化物について、レーザーフラッシュ法での熱伝導率を測定したところ、 1.7W/mK であった。この結果を表1に示した。

30

【0034】

【表 1】

表 1

材料名		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
エポキシ樹脂	ビスフェノール A 型エポキシ樹脂	20	20	20	20	20	20
硬化剤	フェノールノボラック樹脂	9	9	9	9	9	9
	アミノ系硬化剤	—	—	—	—	—	—
硬化促進剤	イミダゾール系硬化促進剤	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
カップリング剤	シラン系カップリング剤	1	1	1	1	1	1
粗粉	結晶質二酸化ケイ素	55	71	83	99	132	163
	酸化アルミニウム(球状)	—	—	—	—	—	—
微粉	結晶質二酸化ケイ素	14	18	21	25	—	—
	酸化アルミニウム(球状)	—	—	—	—	57	70
無機フィラー充填量(体積%)		50	56	60	64	71	75

【0035】

厚み 1.5 mm のアルミニウム板上に、前記樹脂組成物 (b) を、硬化後の厚みが 80 μm となるように塗布し、100 $^{\circ}\text{C}$ 、1 時間加熱して半硬化状態にした後、樹脂組成物 (b) 上に厚さ 210 μm の銅箔を積層し、更に 180 $^{\circ}\text{C}$ 、2 時間加熱して硬化を完了させ、混成集積回路用の基板を作製した。

【0036】

得られた混成集積回路用の基板について、後述する通りに、各種の特性を調べた。その結果を表 2 に示した。

【0037】

10

20

30

40

【表 2】

表2

項目		単位	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
流動性	粘度	cps	74,000	80,000	104,000	152,000	141,000	182,000
密着性			○	○	○	○	○	○
耐電圧	初期	kV	6.5	6.0	6.0	6.0	5.0	4.8
	PCT96時間後		6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	6.0
耐熱性	200°C500hr	kV	4.7	4.3	—	—	3.6	—
	絶縁層割れ		無し	無し	無し	無し	無し	無し
厚銅箔信頼性	260°C2min	kV	6.0	5.5	5.5	5.5	4.6	4.6
		kgf/cm	2.1	2.2	2.1	1.9	2.1	1.9
引き剥し強度		°C/W	0.31	0.26	0.21	0.19	0.14	0.12
熱抵抗		W/mK	1.7	2.0	2.5	2.9	4.9	4.9
熱伝導率			4.3	4.3	4.2	4.1	4.9	4.9
比誘電率			0.004	0.004	0.003	0.003	0.002	0.002
誘電正接		mm	—	0.0	—	—	1.0	—
加工性		kV	—	3.2	—	—	3.3	—
沿面放電耐圧		W	—	5.9	—	—	6.1	—
電力損失								

【0038】

密着性：銅箔をエッチングで除去した混成集積回路基板を2cm×10cmに切断し、90度の角度に折り曲げを行った。その際に、アルミと絶縁層に剥がれが生じない物を良好、剥がれが生じた物を不良とした。

【0039】

流動性：B型粘度計にて粘度を測定し、室温(25)の粘度が200,000cpsを超えるものを不良、200,000cps以下のものを良好とした。

【0040】

耐電圧：測定用試料として銅箔の周囲をエッチングし、直径20mmの円形部分を残し試料とした。温度121、湿度100%RH、2気圧、96時間の条件下に暴露した前後の耐電圧について、試験片を絶縁油中に浸漬し、室温で交流電圧を銅箔とアルミニウム板間に印加させ、JIS C2110に基づき測定した。測定器には、菊水電子工業社製

10

20

30

40

50

のTOS-8700を用いた。また、多層回路基板では、銅箔と内層回路間に印加させて測定を行った。

【0041】

引き剥がし強度：測定用試料として幅10mmの銅箔を残すように加工して試料とした。銅箔と基板を90度の角度とし、50mm/minの引っ張り速度で剥離した。その他の条件はJIS C6481に基づいた。測定機としてはテンシロン（東洋ボールドウィン社製、U-1160）を用いた。

【0042】

誘電正接：測定用試料として銅箔の周囲をエッチングし、直径20mmの円形部分を残し試料とした。測定は、温度25℃、周波数1MHzの条件下にて、JIS C6481に基づき実施した。測定器には、LCRメータ（横河・ヒューレット・パカード社製、HP4284）を用いた。

【0043】

比誘電率：まず、静電容量（X；F）を上記誘電正接と同条件にてJIS C6481に基づき測定した。比誘電率（E）は、静電容量（X；F）と絶縁層の厚み（Y；m）と電極板の面積（Z；m²）と真空の誘電率（ 8.85×10^{-12} ；F/m）から、 $E = X \cdot Y / (Z \cdot 8.85 \times 10^{-12})$ の式を用いて、算出した。

【0044】

耐熱性：試料を200℃に設定した恒温器（エスベック社製、PHH-201）に500hr放置した後、木片上で冷却する処理を行い、処理後の試験片を絶縁油中に浸漬し、室温で交流電圧を銅箔とアルミニウム板間に印加させ、絶縁破壊する電圧を測定した。

【0045】

厚銅箔信頼性：銅箔の厚みが210μmを超えるような混成集積回路基板の評価として実施した。260℃に設定された半田浴に2分間浮かべた後、木片上で冷却する処理を行い、処理後の試験片を絶縁油中に浸漬し、室温で交流電圧を銅箔とアルミニウム板間に印加させ、絶縁破壊する電圧を測定する。また、処理後の試験片の断面観察（走査型電子顕微鏡）を行い、銅箔と絶縁層界面部における絶縁層割れの発生有無を評価した。

【0046】

熱抵抗値：測定用試料として試験片を3×4cmに切断し、10×15mmの銅箔を残した。銅箔上にTO-220型トランジスタを半田付けし、水冷した放熱フィン上に放熱グリースを介して固定した。トランジスタに通電し、トランジスタを発熱させ、トランジスタ表面と金属基板裏面の温度差を測定し、熱抵抗値を測定し、放熱グリースの熱抵抗値を補正する事により、求める試験片の熱抵抗値（A；K/W）を測定した。

【0047】

熱伝導率：熱伝導率（H；W/mK）は、前記の熱抵抗値（A；K/W）と、試片の絶縁層の厚み（B；m）及びトランジスタ実装面積（C；m²）から、 $H = B / (A \cdot C)$ の式を用いて、算出した。

【0048】

加工性：混成集積回路基板をパンチにて穴あけを行い、10,000ショット後のパンチの磨耗量を測定した。

【0049】

沿面放電耐圧：測定用試料として、混成集積回路基板の沿面から2mm距離に直線の銅回路を形成した。室温で交流電圧を銅箔回路とアルミニウム板間に印加し、沿面放電の発生電圧を測定した。

【0050】

電力損失：まず、静電容量（X；F）を上記誘電損失と同条件にてJIS C6481に基づき測定した。電力損失（G）は、静電容量（X；F）とデバイスの動作周波数（H；400kHz）と動作電圧（I；220V）から、 $G = (X \times I^2 \times H) / 2$ の式を用いて、算出した。

10

20

30

40

50

【 0 0 5 1 】

(実施例 2 ～ 6)

無機フィラーの粗粉、微粉の種類と配合量とを表 1 に示す通りに変えたこと以外は実施例 1 と同様の方法で樹脂組成物及び樹脂硬化体、更に基板、回路基板、混成集積回路を作製し、評価した。この結果を表 1、表 2 に示した。

【 0 0 5 2 】

(比較例 1 ～ 6)

硬化剤、粗粉、微粉の種類とこれらの配合量を変えたこと以外は実施例 1 と同様の操作で樹脂組成物及び樹脂硬化体、更に基板、回路基板、混成集積回路を作製し、評価した。この結果を表 3、表 4 に示す。

【 0 0 5 3 】

【表 3】

表3

材料名		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
エポキシ樹脂	ビスフェノールA型エポキシ樹脂	20	20	20	20	20	20
硬化剤	フェノールノボラック樹脂	—	—	9	9	9	9
	アミノ系硬化剤	6	6	—	—	—	—
硬化促進剤	イミダゾール系硬化促進剤	—	—	0.05	0.05	0.05	0.05
カップリング剤	シラン系カップリング剤	1	1	1	1	1	1
粗粉	結晶質二酸化ケイ素	—	—	136	—	—	—
	酸化アルミニウム(球状)	62	117	—	74	98	127
微粉	結晶質二酸化ケイ素	—	—	34	—	42	54
	酸化アルミニウム(球状)	27	50	—	32	—	—
無機フィラー充填量(体積%)		51	66	71	51	60	66

【 0 0 5 4 】

10

20

30

40

【表 4】

表 4

項目	単位	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
流動性	cps	66,000	72,000	450,000	58,000	74,000	95,000
密着性		○	○	x	○	○	○
耐電圧	kV	5.5	5.2	5.8	4.8	4.6	4.1
		5.5	5.5	6.0	5.0	4.5	4.5
耐熱性	kV	1.2	1.1	—	3.5	—	—
厚銅箔信頼性		有り	有り	無し	無し	無し	無し
絶縁層割れ		2.8	2.8	5.5	4.4	4.2	4.0
260°C2min		2.2	2.2	0.9	2.1	2.2	2.1
引き剥し強度	kgf/cm	0.11	0.26	0.13	0.26	0.18	0.13
熱抵抗	°C/W	2.0	4.0	1.1	2.0	3.0	4.0
熱伝導率	W/mK	7.1	7.9	3.9	7.1	6.9	7.4
比誘電率		0.004	0.005	0.002	0.004	0.004	0.004
誘電正接		2.0	4.0	—	2.0	—	—
加工性	mm	2.6	2.4	—	2.6	—	—
沿面放電耐圧	kV	9.5	10.6	—	9.6	—	—
電力損失	W						

【0055】

(実施例 7)

厚み 1.5 mm のアルミニウム板上に、実施例 2 で調製した樹脂組成物 (b) を、硬化後の第 1 の絶縁層厚みが 150 μm となるように塗布し、100 0.1 時間加熱して半硬化状態にした後、当該樹脂組成物 (b) 上に厚さ 35 μm の銅箔を積層し、更に 180 2 時間加熱して硬化を完了させた。得られた回路基板上に、更に前記樹脂組成物 (b) を硬化後の第 2 の絶縁層厚みが 50 μm となるように塗布し、100 0.1 時間加熱して半硬化状態にした後、樹脂組成物 (b) 上に厚さ 210 μm の銅箔を積層し、更に 180 2 時間加熱して硬化を完了させ、混成集積回路用の多層基板を作製し、評価した。この結果を表 5、表 6、表 7 に示した。

【0056】

(実施例 8)

10

20

30

40

50

第2の絶縁層厚みを200 μ mに変えたこと以外は実施例7と同様の方法で多層回路基板を作製し、評価した。この結果を表5、表6、表7に示した。

【0057】

(比較例7～8)

硬化剤、粗粉、微粉の種類とこれらの配合量、および比較例8では第2の絶縁層厚みを変えたこと以外は実施例7と同様の操作で樹脂組成物及び樹脂硬化体、更に基板、回路基板、混成集積回路を作製し、評価した。この結果を表5、表6、表7に示す。

【0058】

【表5】

表5

材料名		実施例7及び8	比較例7及び8
エポキシ樹脂	ビスフェノールA型エポキシ樹脂	20	20
硬化剤	フェノールノボラック樹脂	9	—
	アミノ系硬化剤	—	6
硬化促進剤	イミダゾール系硬化促進剤	0.05	—
カップリング剤	シラン系カップリング剤	1	1
粗粉	結晶質二酸化ケイ素	71	—
	酸化アルミニウム(球状)	—	62
微粉	結晶質二酸化ケイ素	18	—
	酸化アルミニウム(球状)	—	27
無機フィラー充填量(体積%)		56	51

【0059】

【表6】

表6

単位:mm					
構成	材質	実施例7	実施例8	比較例7	比較例8
ベース材	アルミ	1.5	1.5	1.5	1.5
第1の絶縁層	表5参照	0.15	0.15	0.15	0.15
内層回路	銅箔	0.035	0.035	0.035	0.035
第2の絶縁層	表5参照	0.05	0.2	0.05	0.2
外層回路	銅箔	0.21	0.21	0.21	0.21

【0060】

【表 7】

表7

項目		単位	実施例7	実施例8	比較例7	比較例8
流動性	粘度	cps	80,000	80,000	66,000	66,000
密着性			○	○	○	○
耐電圧	初期	kV	4.6	10.0	4.5	10.0
	PCT96時間後		5.0	10.0	4.6	10.0
耐熱性	200°C500hr	kV	—	10.0	—	10.0
厚銅箔信頼性	絶縁層割れ		無し	無し	有り	有り
	260°C2min	kV	4.2	10.0	4.2	10.0
引き剥し強度		kgf/cm	2.0	2.2	2.0	2.1
熱抵抗		°C/W	1.21	1.92	1.28	2.01
熱伝導率		W/mK	2.0	2.0	2.0	2.0
比誘電率			4.4	4.4	7.1	7.1
誘電正接			0.004	0.005	0.004	0.004
加工性		mm	—	2.0	—	4.0
沿面放電耐圧		kV	—	6.4	—	5.2
電力損失		W	2.4	1.3	3.8	2.2

10

【産業上の利用可能性】

【0061】

本発明の樹脂組成物は、特定粒度の無機フィラーと、特定樹脂との組み合わせにより、高電気絶縁性且つ高熱伝導性で、しかも金属との接着性も優れるので、例えば混成集積回路用の基板の絶縁層に好適である。また、好ましい実施態様に於いては、更に低誘電率の樹脂硬化体、一層熱伝導率に優れる樹脂硬化体を提供できるので、混成集積回路用の基板、回路基板の他、いろいろな用途の電気部品、電子部品の放熱部の材料として使用可能性があり、産業上極めて有用である。

20

【0062】

本発明の混成集積回路用の基板や回路基板は、前記の特徴のある樹脂組成物を用いているので、耐電圧特性、熱放散性、更には高周波特性にも優れるので、これを用いた混成集積回路の信頼性を高めることができ、産業上非常に有用である。

【0063】

本発明の樹脂組成物の製造方法は、原料の混合順序を特定することのみで、前記樹脂組成物の優れた特性を容易に達成し、優れた特性の樹脂硬化体、これを用いた混成集積回路用の基板や回路基板を安定して提供でき、惹いては、信頼性の高い混成集積回路を提供できるので、産業上極めて有用である。

30

なお、2005年9月5日出願された日本特許出願2005-256194号の明細書、特許請求の範囲、及び要約書の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
<i>H 0 1 L</i>	<i>23/14</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 1 L</i>	<i>23/14</i>	<i>R</i>
<i>H 0 5 K</i>	<i>1/05</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 5 K</i>	<i>1/05</i>	<i>A</i>

(72)発明者 石倉 秀則
群馬県渋川市中村 1 1 3 5 番地 電気化学工業株式会社 渋川工場内

審査官 久保 道弘

(56)参考文献 特開平 0 2 - 2 8 6 7 6 8 (J P , A)
特開平 0 6 - 0 4 4 8 2 4 (J P , A)
特開平 0 5 - 2 3 9 3 2 1 (J P , A)
特開 2 0 0 2 - 3 2 2 3 7 2 (J P , A)
特開 2 0 0 3 - 2 9 2 7 3 4 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C08L 1/00-101/14

C08G 59/00-59/72

C08K 3/00-3/40

H01L 23/12

H01L 23/14

H05K 1/05