



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 111868921 B

(45) 授权公告日 2023. 11. 28

(21) 申请号 201980019612.6

日高克彦

(22) 申请日 2019.03.29

(74) 专利代理机构 北京三友知识产权代理有限公司 11127

(65) 同一申请的已公布的文献号  
申请公布号 CN 111868921 A

专利代理师 孟伟青 褚瑶杨

(43) 申请公布日 2020.10.30

(51) Int.Cl.

(30) 优先权数据

H01L 23/373 (2006.01)

2018-068075 2018.03.30 JP

C08K 3/013 (2006.01)

2018-068471 2018.03.30 JP

C08L 101/00 (2006.01)

2019-046007 2019.03.13 JP

H05K 7/20 (2006.01)

(85) PCT国际申请进入国家阶段日  
2020.09.16

(56) 对比文件

(86) PCT国际申请的申请数据  
PCT/JP2019/013966 2019.03.29

JP 2017036415 A, 2017.02.16

JP 2017059704 A, 2017.03.23

(87) PCT国际申请的公布数据  
W02019/189746 JA 2019.10.03

JP 2015189609 A, 2015.11.02

WO 2012070289 A1, 2012.05.31

(73) 专利权人 三菱化学株式会社  
地址 日本东京都

JP 2015006980 A, 2015.01.15

CN 106029561 A, 2016.10.12

CN 104220533 A, 2014.12.17

CN 101809734 A, 2010.08.18

(72) 发明人 泽村敏行 田中俊行 渡边朗

审查员 秦晓彤

权利要求书1页 说明书28页 附图5页

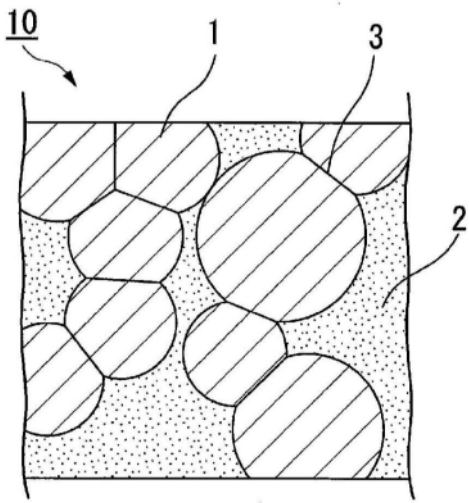
(54) 发明名称

散热片、散热构件和半导体器件

填料的假想圆的面积的总和 $S_v$ 为90%以下。

(57) 摘要

本发明提供一种具有高的导热性和绝缘性的散热片和散热构件。散热片(10)包含破坏强度为20MPa以下、弹性模量为48MPa以上的凝集无机填料(1)和基体树脂(2),散热片(10)中的凝集无机填料(1)的一半以上满足下述条件A、B,并且满足下述条件A、B的凝集无机填料满足下述条件C或D。条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。条件B:长径比超过1且为2以下。条件C:在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将该凝集无机填料的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和 $S_t$ 相对于凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 为20%以上。条件D:上述总和 $S_h$ 相对于凝集无机



1. 一种散热片, 其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,  
所述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下, 并且所述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

所述散热片中包含的所述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B, 并且满足下述条件A和条件B的所述凝集无机填料满足下述条件C,

条件A: 凝集无机填料彼此发生面接触;

条件B: 长径与短径之比、即长径/短径所表示的长径比超过1且为2以下;

条件C: 在散热片的厚度方向的截面观察中, 在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中, 将所述直线的两端与所述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和 $S_t$ 相对于凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 为20%以上。

2. 一种散热片, 其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,  
所述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下, 并且所述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

所述散热片中包含的所述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B, 并且满足下述条件A和条件B的所述凝集无机填料满足下述条件D,

条件A: 凝集无机填料彼此发生面接触;

条件B: 长径与短径之比、即长径/短径所表示的长径比超过1且为2以下;

条件D: 在散热片的厚度方向的截面观察中, 凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 相对于以凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的面积的总和 $S_v$ 为90%以下。

3. 如权利要求1或2所述的散热片, 其中, 所述凝集无机填料是具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

4. 一种散热构件, 其为含有散热片和金属基板的散热构件, 所述散热片包含凝集无机填料和树脂, 所述金属基板粘接有所述散热片,

所述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下, 并且所述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

在包含于所述散热片中且存在于与所述金属基板的界面处的凝集无机填料中, 满足下述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与所述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上,

条件E: 长径与短径之比、即长径/短径所表示的长径比超过1且为2以下;

条件F: 在散热片的厚度方向的截面观察中, 在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中, 将所述直线的两端与所述顶点连结而成的角度 $\theta_2$ 为30度以上。

5. 如权利要求4所述的散热构件, 其中, 所述凝集无机填料是具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

6. 一种半导体器件, 其包含权利要求1~3中任一项所述的散热片或权利要求4~5中任一项所述的散热构件。

## 散热片、散热构件和半导体器件

### 技术领域

[0001] 本发明涉及散热片、散热构件、半导体器件。

[0002] 本申请基于2018年3月30日在日本提交的日本特愿2018-068075号、2018年3月30日在日本提交的日本特愿2018-068471号和2019年3月13日在日本提交的日本特愿2019-046007号要求优先权,将其内容援用于此。

### 背景技术

[0003] 关于导热性良好且绝缘性优异的散热片,已进行了许多研究。特别是,持续尝试了在树脂中混合填料,由此用于获得以高水平满足导热性和绝缘性的散热树脂片。作为这种散热树脂片中含有的填料,使用了各种氧化物、氮化物,对其粒径、粒度分布等也进行了许多研究。

[0004] 作为散热片中含有的填料,尝试了使用六方晶的氮化硼。六方晶的氮化硼通常为薄板状的晶体,该薄板的平面方向的导热系数高,而薄板的厚度方向的导热系数低。另外,若将薄板状的氮化硼混配到散热片中,在片化时与片的面平行地取向,因此片的厚度方向的导热性并不好。

[0005] 作为提高片的厚度方向的导热性的材料,可以举出氮化硼凝集颗粒。

[0006] 众所周知,通过使用氮化硼凝集颗粒,能够提高向片的厚度方向的导热性。特别是,本发明人先前开发出了卡屋结构的氮化硼凝集颗粒(例如参见专利文献1)。此外,开发出了平均粒径比较大、并且即便施加压力也较少坍塌的卡屋结构的氮化硼凝集颗粒(例如参见专利文献2)。这些氮化硼凝集颗粒确保了卡屋结构带来的导热路径,因此通过含有在散热片中,向片的厚度方向的导热性优异。另外,氮化硼凝集颗粒在不另行使用粘结剂的情况下,氮化硼颗粒发生凝集。因此,即便在片化时施加外力也不容易坍塌,可维持导热路径,能够向片的厚度方向散热,能够实现优异的导热性(例如参见专利文献3)。

[0007] 另外,作为提高片的厚度方向的导热性的成型方法,已知通过使片内的氮化硼凝集颗粒彼此发生面接触而提高导热系数的方法(例如参见专利文献4)。

[0008] 现有技术文献

[0009] 专利文献

[0010] 专利文献1:日本专利第5679083号公报

[0011] 专利文献2:日本特开2016-135730号公报

[0012] 专利文献3:国际公开第2015/119198号

[0013] 专利文献4:国际公开第2012/070289号

### 发明内容

[0014] 发明所要解决的课题

[0015] 但是,上述专利文献1~3中公开的卡屋结构颗粒存在下述问题:填料间容易残存微细的空隙,难以充分地确保绝缘性。

[0016] 如专利文献4中记载的那样,为了使凝集颗粒彼此发生面接触,需要高的压力,在专利文献4中记载的方法中,使用了具有高弹性模量、具体而言为46MPa以下的弹性模量的二次颗粒。专利文献4中记载了下述内容:若二次颗粒的弹性模量超过46MPa,如专利文献4的图4所示,二次颗粒间发生点接触,因此存在无法获得充分的导热性的问题。

[0017] 因此,本发明的课题在于获得一种与上述已开发出的散热片相比具有更高的导热性和绝缘性的散热片、散热构件和半导体器件。

[0018] 用于解决课题的手段

[0019] 本发明人为了获得具有更高的导热性和绝缘性的散热片而进行了研究。深入研究的结果,发现了一种散热片,其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,在散热片的厚度方向截面观察中,凝集无机填料彼此接触,并且该凝集无机填料彼此的接触界面即外缘部在片成型时发生变形和/或破坏,由此凝集无机填料彼此发生面接触而构成直线部分。具体而言,通过使用具有比较高的弹性模量和低的破坏强度的凝集无机填料,并使变形量为适度的范围,从而在散热片中的凝集无机填料彼此接触后,发生适度的变形或破坏,由此凝集无机填料彼此以面接触,并且难以被完全破坏。其结果,发现在凝集无机填料间形成传热的粗路径,并且该氮化硼填料维持凝集结构,由此可得到具有更高的导热性和绝缘性的散热片,从而完成了本发明。

[0020] 即,本发明具有下述方案。

[0021] (1) 一种散热片,其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,

[0022] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0023] 上述散热片中包含的上述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的上述凝集无机填料满足下述条件C。

[0024] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0025] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0026] 条件C:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和 $S_t$ 相对于凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 为20%以上。

[0027] (2) 一种散热片,其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,

[0028] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0029] 上述散热片中包含的上述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的上述凝集无机填料满足下述条件D。

[0030] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0031] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0032] 条件D:在散热片的厚度方向的截面观察中,凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 相对于以凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的面积的总和 $S_v$ 为90%以下。

[0033] (3) 如(1)或(2)所述的散热片,其中,上述凝集无机填料是具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0034] (4) 一种散热构件,其为含有散热片和金属基板的散热构件,上述散热片包含凝集无机填料和树脂,上述金属基板粘接有上述散热片,

[0035] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0036] 在包含于上述散热片中且存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足下述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上。

[0037] 条件E:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0038] 条件F:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_2$ 为30度以上。

[0039] (5) 如(4)所述的散热构件,其中,上述凝集无机填料是具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0040] (6) 一种半导体器件,其包含(1)~(3)中任一项所述的散热片或(4)~(5)中任一项所述的散热构件。

[0041] 发明的效果

[0042] 根据本发明,可以提供一种具有高的导热性和绝缘性的散热片和散热构件。通过将导热性高的散热片或散热构件用于半导体器件,即便是放热量多的功率器件也能提供良好的散热性。

## 附图说明

[0043] 图1是实施方式的散热片10的放大截面示意图。

[0044] 图2是接触界面具有直线部分的凝集无机填料的放大截面示意图。

[0045] 图3是示出各凝集无机填料的最大径的截面示意图。

[0046] 图4是实施方式的散热构件100的放大截面示意图。

[0047] 图5是实施例1中制造的散热片的截面SEM图像(附图代用照片)。

[0048] 图6是实施例2中制造的散热片的截面SEM图像(附图代用照片)。

[0049] 图7是实施例3中制造的散热片的截面SEM图像(附图代用照片)。

[0050] 图8是比较例1中制造的散热片的截面SEM图像(附图代用照片)。

[0051] 图9是比较例2中制造的散热片的截面SEM图像(附图代用照片)。

## 具体实施方式

[0052] 本说明书中,表示数值范围的“~”是指包括在其前后所记载的数值作为下限值和上限值。

[0053] 下面详细说明本发明,但以下记载的构成要素的说明是本发明的实施方式的一例(代表例),本发明并不限于这些内容,可以在其要点的范围内进行各种变形来实施。

[0054] 需要说明的是,在后述图2~4中,对与图1相同的构成要素附以相同的符号,以省略其说明。

[0055] “第一方案”

[0056] 本发明的第一方案的实施方式的散热片是包含凝集无机填料和树脂的散热片,其特征在于散热片的厚度方向截面。

[0057] 本发明中使用的凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下、优选为15MPa以下、更优选为10MPa以下。若破坏强度超过上述上限值,即便在后述片化工序中进行压制处理,凝集无机填料也难以变形,凝集无机填料彼此发生点接触。若破坏强度为上述上限值以下,在压制处理时凝集无机填料的凝集结构发生变形,凝集无机填料彼此容易发生面接触。另一方面,对破坏强度的下限值没有特别限定,从易于处理的方面考虑,通常破坏强度优选为2.5MPa以上、更优选为3.0MPa以上、进一步优选为3.5MPa以上、特别优选为4.0MPa以上。

[0058] 另外,凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上、优选为50MPa以上、更优选为55MPa以上。若弹性模量为上述下限值以上,能够防止凝集无机填料在压制压力的方向上发生塑性变形、凝集结构被破坏。另一方面,对弹性模量的上限值没有特别限定,从容易获得充分的变形的方面考虑,通常弹性模量优选为2000MPa以下、更优选为1500MPa以下、进一步优选为1000MPa以下。

[0059] 这样,由于凝集无机填料具有高弹性模量,因此在压制处理时能够维持球状,但由于破坏强度为20MPa以下,因此凝集无机填料彼此接触的部分发生变形,能够进行面接触。因此,能够在维持凝集无机填料内部的高导热系数的同时,降低凝集无机填料界面和后述的金属基板与散热片的界面的接触热阻,能够提高整体的导热系数。

[0060] 由此,凝集无机填料的破坏强度优选为2.5~20MPa、更优选为3.0~20MPa、进一步优选为3.5~15MPa、特别优选为4.0~10MPa。

[0061] 另外,凝集无机填料的弹性模量优选为48~2000MPa、更优选为50~1500MPa、进一步优选为55~1000MPa。

[0062] 关于凝集无机填料的破坏强度和弹性模量,在凝集无机填料位于散热片中的情况下,为了使该凝集无机填料不发生变质,可以对散热片的树脂进行烘烤并取出凝集无机填料后对它们进行测定。测定方法如实施例记载的那样。

[0063] 散热片中含有的凝集无机填料只要是具有导热性的凝集无机填料就可以没有限制地使用,从高导热性的方面出发,优选为氮化硼凝集颗粒。其中,特别是从作为凝集无机填料的破坏强度和弹性模量的方面出发,更优选为具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。关于“卡屋结构”,例如如陶瓷43No.2(2008年日本陶瓷协会发行)中记载的那样,是指板状颗粒未取向而复杂地层积而成的结构。更具体而言,具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒是氮化硼一次颗粒的集合体,是具有一次颗粒的平面部与端面部接触、例如形成T字型的缔合体的结构的氮化硼凝集颗粒。

[0064] 凝集无机填料的凝集形态可以通过扫描型电子显微镜(SEM)进行确认。

[0065] 以下,以凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况为例进行说明。

[0066] 在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,X射线衍射(XRD)测定中的100轴与004轴的峰强度比( $I(100)/I(004)$ )通常优选为3.0以上、更优选为3.1以上、进一步优选为3.2以上、特别优选为3.3以上。对上限值没有特别限制,峰强度比( $I(100)/I(004)$ )通常优选为10以下。若峰强度比( $I(100)/I(004)$ )为上述下限值以上,在片成型时能够提高垂直方向的散热性。若峰强度比( $I(100)/I(004)$ )为上述上限值以下,在片成型时凝集无机填料难以坍塌,能够进一步提高散热性。

[0067] 由此,峰强度比(I(100)/I(004))优选为3.0~10、更优选为3.1~10、进一步优选为3.2~10、特别优选为3.3~10。

[0068] 在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,如上所述,破坏强度也为20MPa以下、优选为15MPa以下、进一步优选为10MPa以下。下限值也如上所述,破坏强度通常优选为2.5MPa以上、更优选为3.0MPa以上、进一步优选为3.5MPa以上、特别优选为4.0MPa以上。

[0069] 凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒时的比表面积通常优选为 $1\text{m}^2/\text{g}$ 以上、更优选为 $3\text{m}^2/\text{g}$ 以上 $50\text{m}^2/\text{g}$ 以下、进一步优选为 $5\text{m}^2/\text{g}$ 以上 $40\text{m}^2/\text{g}$ 以下。若比表面积为上述下限值以上,在氮化硼凝集颗粒彼此接触时,氮化硼凝集颗粒的表面部分容易变形,能够降低氮化硼凝集颗粒间的接触阻力。若比表面积为上述上限值以下,能够降低含有氮化硼凝集颗粒的树脂组合物(后述的片用组合物)的粘度。

[0070] 在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,其形状优选为球状。若氮化硼凝集颗粒的形状为球状,则各向同性优异,因此无论对哪个方向均具有均匀的热传导。“球状”是指长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下、优选超过1且为1.75以下、更优选超过1且为1.5以下、进一步优选超过1且为1.4以下。氮化硼凝集颗粒的长径比通过从利用扫描型电子显微镜(SEM)拍摄的图像求出各个氮化硼凝集颗粒的长径与短径之比而确定。

[0071] 在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,其体积基准的最大粒径 $D_{\text{max}}$ (本说明书中,有时简记为“最大粒径”)通常优选为 $2\mu\text{m}$ 以上、更优选为 $3\mu\text{m}$ 以上、进一步优选为 $5\mu\text{m}$ 以上、特别优选为 $10\mu\text{m}$ 以上。另外,最大粒径通常优选为 $300\mu\text{m}$ 以下、更优选为 $200\mu\text{m}$ 以下、进一步优选为 $100\mu\text{m}$ 以下、特别优选为 $90\mu\text{m}$ 以下。通过使最大粒径为上述范围,能够得到在散热片的厚度方向上具有充分的导热系数、且耐电压特性也良好的散热片。

[0072] 由此,在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,最大粒径优选2~ $300\mu\text{m}$ 、更优选3~ $200\mu\text{m}$ 、进一步优选5~ $100\mu\text{m}$ 、特别优选10~ $90\mu\text{m}$ 。

[0073] 另外,在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,对其体积基准的平均粒径 $D_{50}$ (以下有时简记为“平均粒径”)没有特别限制。出于与上述体积基准的最大粒径的值同样的理由,平均粒径通常优选为 $1\mu\text{m}$ 以上、更优选为 $2\mu\text{m}$ 以上、进一步优选为 $3\mu\text{m}$ 以上、特别优选为 $5\mu\text{m}$ 以上。另外,平均粒径通常优选为 $250\mu\text{m}$ 以下、更优选为 $150\mu\text{m}$ 以下、进一步优选为 $90\mu\text{m}$ 以下、特别优选为 $70\mu\text{m}$ 以下。通过使平均粒径为上述范围,能够得到在散热片的厚度方向上具有充分的导热系数、且耐电压特性也良好的散热片。

[0074] 由此,在凝集无机填料为氮化硼凝集颗粒的情况下,平均粒径优选为1~ $250\mu\text{m}$ 、更优选为2~ $150\mu\text{m}$ 、进一步优选为3~ $90\mu\text{m}$ 、特别优选为5~ $70\mu\text{m}$ 。

[0075] 上述最大粒径和平均粒径例如可以使凝集无机填料分散于适当的溶剂中并使用激光衍射/散射式粒度分布测定装置进行测定。具体而言,可以对在含有六偏磷酸钠作为分散稳定剂的纯水介质中分散凝集无机填料而得到的试样,利用激光衍射/散射式粒度分布测定装置(例如株式会社堀场制作所制造的产品名“LA-920”等)测定粒度分布,由所得到的粒度分布求出凝集无机填料的粒径和平均粒径。

[0076] 氮化硼凝集颗粒例如可以利用日本特开2015-193752号公报、日本特开2015-195287号公报、日本特开2015-195292号公报等中记载的方法制造。

[0077] 作为形成散热片的树脂(下文中也称为“基体树脂”),可以无限制地使用固化性树

脂、热塑性树脂中的任一种。

[0078] 对基体树脂的复数粘度没有特别限定,在100℃下优选为45Pa·s以下、更优选为43Pa·s以下、进一步优选为40Pa·s以下。另外,基体树脂的复数粘度在100℃下优选为5Pa·s以上、更优选为8Pa·s以上。若基体树脂的复数粘度为上述范围内,在模压成型时基体树脂不会妨碍凝集无机填料彼此的接触界面处的破坏等导致的变形,具有容易满足后述条件A~E的倾向。

[0079] 由此,基体树脂的复数粘度在100℃下优选为5~45Pa·s、更优选为5~43Pa·s、进一步优选为8~40Pa·s。

[0080] 对基体树脂的复数粘度的测定方法没有特别限定。基体树脂的复数粘度例如可以使用粘弹性测定装置进行测定。具体而言,使用粘弹性测定装置,使用直径10mm的圆板状的板作为夹具,将基体树脂0.1g夹持在夹具间距离保持为0.5mm的2片夹具之间,在应变:0.3%、测定温度:100℃、测定频率:1Hz的条件下测定基体树脂的复数粘度。

[0081] 对基体树脂的玻璃化转变温度(下文中也称为“基体树脂的Tg”)没有特别限定。基体树脂的Tg通常优选为0℃以上、更优选为10℃以上、进一步优选为25℃以上。另外,基体树脂的Tg通常优选为400℃以下、更优选为350℃以下、进一步优选为300℃以下。若基体树脂的Tg为上述下限值以上,则弹性模量不会过低,具有能够抑制高温下使用时的变形的倾向。若基体树脂的Tg为上述上限值以下,则可抑制机械冲击导致的裂纹,具有能够减少绝缘不良的倾向。

[0082] 由此,基体树脂的Tg优选为0~400℃、更优选为10~350℃、进一步优选为25~300℃。

[0083] 对基体树脂的Tg的测定方法没有特别限定。基体树脂的Tg例如可以使用差示扫描量热计(DSC)、动态粘弹性测定装置(DMS)、热机械分析装置(TMA)进行测定。

[0084] 在使用DSC时,具体而言,在氮气气氛下、升温速度:10℃/分钟、测定温度范围:-20~500℃下,基于JIS K 7121中记载的方法进行测定,将DSC曲线显示出阶梯状变化的部分的中间点作为基体树脂的Tg。

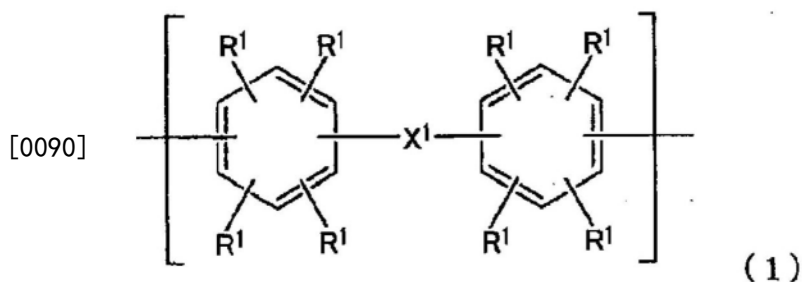
[0085] 作为能够用作基体树脂的固化性树脂,可以使用热固性树脂、光固化性树脂、电子射线固化性树脂等,优选热固性树脂。

[0086] 作为热固性树脂,例如可以使用国际公开第2013/081061号中示例的热固性树脂,特别优选使用环氧树脂。

[0087] 作为环氧树脂,优选包含具有选自例如双酚A型骨架、双酚F型骨架、双酚A/F混合型骨架、萘骨架、茛骨架、联苯骨架、蒽骨架、芘骨架、咕吨骨架、金刚烷骨架和双环戊二烯骨架组成的组中的至少1种骨架的苯氧基树脂。其中,上述苯氧基树脂更优选具有选自双酚A型骨架、双酚F型骨架、双酚A/F混合型骨架、萘骨架、茛骨架和联苯骨架组成的组中的至少一种骨架,进一步优选具有茛骨架和联苯骨架中的至少一种。通过使用具有这些优选的骨架的苯氧基树脂,能够进一步提高散热片的固化物的耐热性。

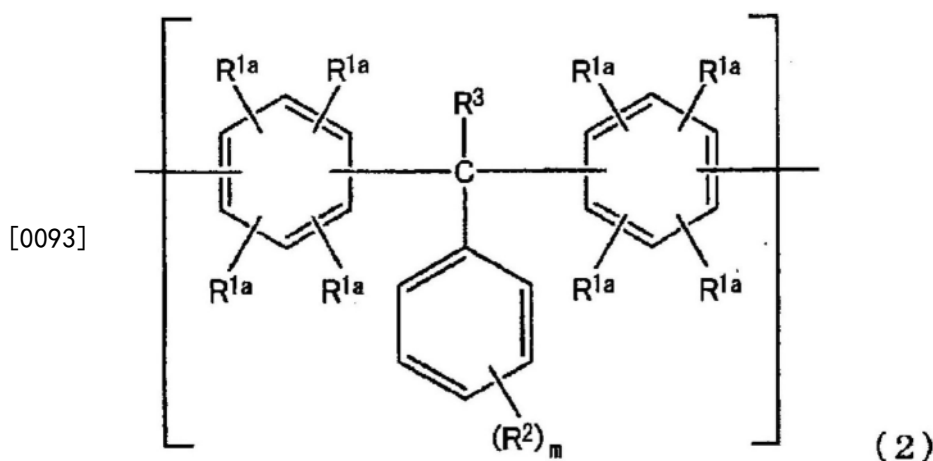
[0088] 上述苯氧基树脂优选在主链中具有多环式芳香族骨架。另外,上述苯氧基树脂更优选在主链中具有下述式(1)~(6)所示的骨架中的至少1种骨架。

[0089] 【化1】



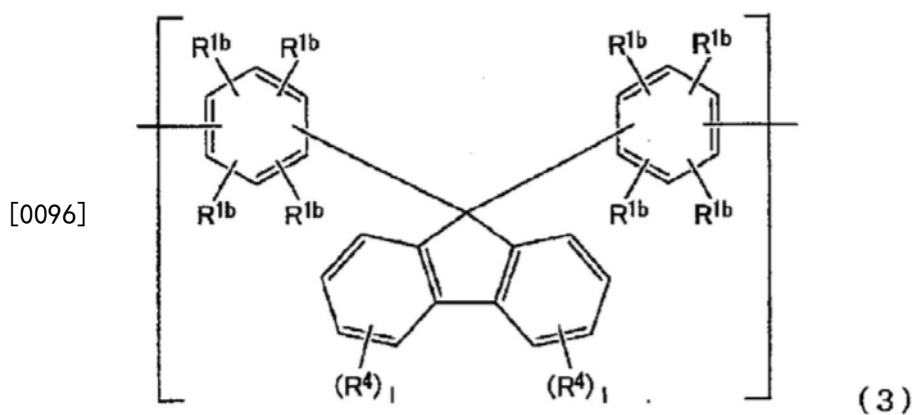
[0091] 上述式(1)中, $R^1$ 是氢原子、碳原子数为1~10的烃基或卤原子, $X^1$ 是单键、碳原子数为1~7的2价烃基、-O-、-S-、-SO<sub>2</sub>-、或者-CO-。上述式(1)中,多个 $R^1$ 分别可以相互相同,也可以相互不同。

[0092] 【化2】



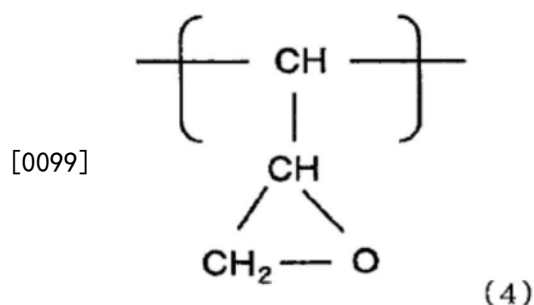
[0094] 上述式(2)中, $R^{1a}$ 是氢原子、碳原子数为1~10的烃基或卤原子, $R^2$ 是碳原子数为1~10的烃基或卤原子, $R^3$ 是氢原子或碳原子数为1~10的烃基, $m$ 是0~5的整数。上述式(2)中,多个 $R^{1a}$ 分别可以相互相同,也可以相互不同。

[0095] 【化3】

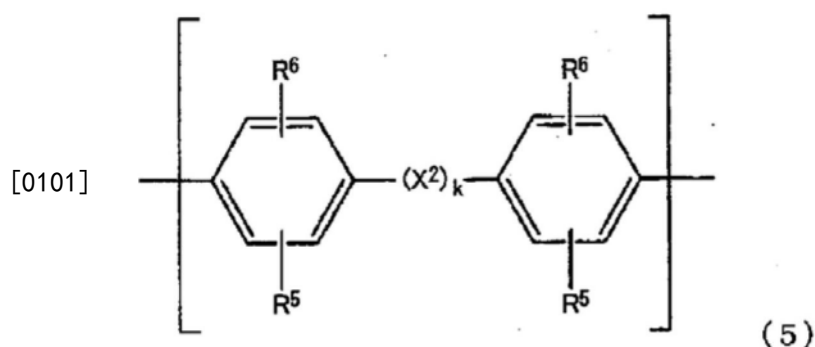


[0097] 上述式(3)中, $R^{1b}$ 是氢原子、碳原子数为1~10的烃基或卤原子, $R^4$ 是碳原子数为1~10的烃基或卤原子,1是0~4的整数。上述式(3)中,多个 $R^{1b}$ 分别可以相互相同,也可以相互不同。上述式(3)中,多个 $R^4$ 分别可以相互相同,也可以相互不同。

[0098] 【化4】

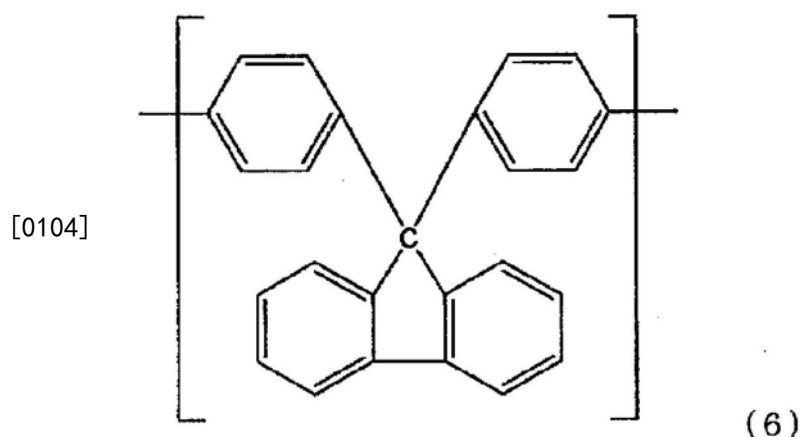


[0100] 【化5】



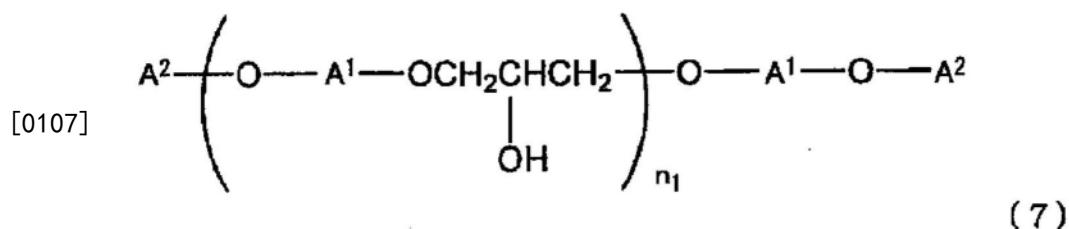
[0102] 上述式(5)中,  $\text{R}^5$ 和 $\text{R}^6$ 是氢原子、碳原子数为1~5的烷基或卤原子,  $\text{X}^2$ 是 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、或者 $-\text{O}-$ ,  $k$ 是0或1。

[0103] 【化6】



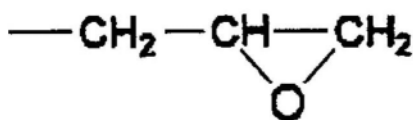
[0105] 作为上述苯氧基树脂,例如优选使用下述式(7)所示的苯氧基树脂。

[0106] 【化7】



[0108] 上述式(7)中,  $\text{A}^1$ 具有上述式(4)~(6)中的任一者所示的结构,并且其构成中上述式(4)所示的结构为0~60摩尔%、上述式(5)所示的结构为5~95摩尔%且上述式(6)所示的结构为5~95摩尔%,  $\text{A}^2$ 是氢原子或下述式(8)所示的基团,  $n_1$ 是平均值为25~500的数。

[0109] 【化8】



[0110]

(8)

[0111] 上述苯氧基树脂的重均分子量优选为10,000以上。苯氧基树脂的重均分子量的更优选的下限为30,000、进一步优选的下限为40,000。苯氧基树脂的重均分子量的优选的上限为1,000,000、更优选的上限为250,000。若苯氧基树脂的重均分子量为上述下限值以上,则散热片的热劣化减小,制膜性也提高。若苯氧基树脂的重均分子量为上述上限值以下,则苯氧基树脂与其他树脂的相容性变得良好。其结果,散热片的固化物及其层积结构体的耐热性提高。除此以外,能够减小固化不良导致的导热系数和粘接性降低的可能性。

[0112] 由此,苯氧基树脂的重均分子量优选为10,000~1,000,000、更优选为30,000~1,000,000、进一步优选为40,000~250,000。

[0113] 苯氧基树脂的重均分子量是通过凝胶渗透色谱(GPC)测定得到的基于聚苯乙烯换算的重均分子量。

[0114] 散热片优选包含重均分子量为600以下的低分子量环氧树脂。环氧树脂具有分子量越高则粘度越高的倾向。若重均分子量为上述上限值以下,在模压成型时树脂容易侵入凝集无机填料间的空隙,凝集无机填料间的空隙减少,具有绝缘性更良好的倾向。

[0115] 若散热片包含低分子量环氧树脂,则树脂整体的粘度降低,因此在模压成型时树脂能够充分地侵入凝集无机填料间。

[0116] 作为上述低分子量环氧树脂,只要重均分子量为600以下就没有特别限定。作为分子量环氧树脂的具体例,可以举出具有双酚骨架的环氧单体、具有双环戊二烯骨架的环氧单体、具有萘骨架的环氧单体、具有金刚烷骨架的环氧单体、具有茛骨架的环氧单体、具有联苯骨架的环氧单体、具有双(缩水甘油氧基苯基)甲烷骨架的环氧单体、具有咕吨骨架的环氧单体、具有蒽骨架的环氧单体、或者具有芘骨架的环氧单体等。低分子量环氧树脂可以仅使用1种,也可以合用2种以上。

[0117] 散热片也可以包含不符合上述苯氧基树脂、上述低分子量环氧树脂的其他树脂,其他树脂也可以为热塑性树脂、热固性树脂中的任一者或其两者。

[0118] 作为热塑性树脂,可以举出尼龙树脂、聚酯树脂、聚苯乙烯树脂、有机硅树脂、聚烯烃树脂等。

[0119] 作为热固性树脂,可以举出环氧树脂、丙烯酸类树脂、三聚氰胺树脂、脲树脂、聚酰亚胺树脂、聚氨酯树脂等。

[0120] 散热片也可以包含固化剂。对散热片中包含的固化剂没有特别限定。作为优选的固化剂,可以举出酚醛树脂、具有芳香族骨架或脂环式骨架的酸酐、或者该酸酐的氢化物或该酸酐的改性物。通过使用该优选的固化剂,能够得到耐热性、耐湿性和电气物性的平衡优异的散热片的固化物。固化剂可以仅使用1种,也可以合用2种以上。

[0121] 为了调整固化速度或固化物的物性等,优选将上述固化剂和固化促进剂合用。

[0122] 对上述固化促进剂没有特别限定。上述固化促进剂可根据所使用的树脂、固化剂的种类适当选择。作为固化促进剂的具体例,可以举出例如叔胺、咪唑类、咪唑啉类、三嗪

类、有机磷系化合物、季磷盐类或有机酸盐等二氮杂双环烯烃类等。另外,作为上述固化促进剂,可以举出有机金属化合物类、季铵盐类或金属卤化物等。作为上述有机金属化合物类,可以举出辛酸锌、辛酸锡或乙酰丙酮铝络合物等。它们可以单独使用1种,也可以将2种以上混合使用。

[0123] 只要是无损本发明效果的范围内,散热片也可以根据需要包含凝集无机填料以外的无机填料(下文中也称为“其他无机填料”)。作为其他无机填料,只要不发生凝集就没有特别限制,可以举出例如氧化铝(氧化铝)、氮化铝、氮化硅、沸石、二氧化硅等。

[0124] 对于散热片,在凝集无机填料为氮化硼(BN)凝集颗粒的情况下,进行X射线衍射测定得到的该片中的BN一次颗粒的(100)面与(004)面的峰强度比((100)/(004))优选为1.0以上、更优选为1.5以上、进一步优选为2.0以上、特别优选为2.5以上、最优选为3.0以上。对上限没有特别限制,峰强度比((100)/(004))通常优选为10.0以下、更优选为7.0以下、进一步优选为5.0以下。

[0125] 若峰强度比((100)/(004))为上述上限值以下,则BN一次颗粒的ab面朝向相对于片面为垂直方向的比例不会变得过高,在进行压制等成型工序时,能够抑制片内的微小的裂纹。通过抑制这种裂纹的产生,具有能够抑制耐电压等电学特性的降低的倾向。另外,若峰强度比((100)/(004))为上述下限值以上,则BN一次颗粒朝向相对于片面为垂直方向的比例不会变得过低,具有导热系数升高的倾向。

[0126] 由此,峰强度比((100)/(004))可以为1.0~10.0、可以为1.0~7.0、可以为1.0~5.0、可以为1.5~10.0、可以为1.5~7.0、可以为1.5~5.0、可以为2.0~10.0、可以为2.0~7.0、可以为2.0~5.0、可以为2.5~10.0、可以为2.5~7.0、可以为2.5~5.0、可以为3.0~10.0、可以为3.0~7.0、也可以为3.0~5.0。

[0127] 此外,在凝集无机填料为氮化硼(BN)凝集颗粒的情况下,对该片进行X射线衍射测定而得到的由该片中的BN一次颗粒的(002)面峰求出的BN一次颗粒平均微晶直径没有特别限制。BN一次颗粒平均微晶直径通常优选为300Å以上、更优选为320Å以上、进一步优选为375Å以上、更进一步优选为380Å以上、特别优选为390Å以上、最优选为400Å以上。

[0128] 另外,上述BN一次颗粒平均微晶直径通常优选为5000Å以下、更优选为2000Å以下、进一步优选为1000Å以下。

[0129] 若上述BN一次颗粒平均微晶直径为上述上限值以下,即便在压制工序等片成型时,凝集颗粒内的卡屋结构也在某种程度上得到维持,BN一次颗粒的ab面朝向相对于片面为垂直方向的比例增加,具有导热系数升高的倾向。

[0130] 另外,若上述BN一次颗粒平均微晶直径为上述下限值以上,则BN一次颗粒界面的增加受到抑制,具有传热阻力降低、导热系数升高的倾向。

[0131] 由此,上述BN一次颗粒平均微晶直径优选为300~5000Å、更优选为320~5000Å、进一步优选为375~5000Å、更进一步优选为380~5000Å、特别优选为390~2000Å、最优选为400~1000Å。

[0132] 在散热片中,对进行X射线衍射测定而得到的该片中的BN一次颗粒的(100)面与(004)面的峰面积强度比((100)/(004))没有特别限制。峰面积强度比((100)/(004))通常优选为0.6以上、更优选为0.65以上、进一步优选为0.7以上、更进一步优选为0.75以上、特

别优选为0.8以上、最优选为0.85以上。另外,对上限没有特别限制,峰面积强度比((100)/(004))通常优选为10.0以下、更优选为5.0以下、进一步优选为4.0以下。

[0133] 若峰面积强度比((100)/(004))为上述上限值以下,凝集颗粒内的卡屋结构在某种程度上得到维持,BN一次颗粒的ab面朝向相对于片面为垂直方向的比例增加,具有导热系数升高的倾向。另外,若峰面积强度比((100)/(004))为上述下限值以上,则BN一次颗粒界面的增加受到抑制,具有传热阻力降低、导热系数升高的倾向。

[0134] 由此,峰面积强度比((100)/(004))可以为0.6~10.0、可以为0.6~5.0、可以为0.6~4.0、可以为0.65~10.0、可以为0.65~5.0、可以为0.65~4.0、可以为0.7~10.0、可以为0.7~5.0、可以为0.7~4.0、可以为0.75~10.0、可以为0.75~5.0、可以为0.75~4.0、可以为0.8~10.0、可以为0.8~5.0、可以为0.8~4.0、可以为0.85~10.0、可以为0.85~5.0、也可以为0.85~4.0。

[0135] 峰面积强度比((100)/(004))可以使用进行测定的XRD装置附带的分析程序,例如荷兰PANalytical公司制造的产品名“X'PertPro MPD粉末X射线衍射装置”计算相应的峰面积的强度比。

[0136] 本实施方式的散热片的特征在于散热片的厚度方向截面,具体而言,散热片中包含的凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的凝集无机填料满足下述条件C。具体而言,使用图1进行说明。

[0137] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0138] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0139] 条件C:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和 $S_t$ 相对于凝集无机填料的截面积的总和 $S_n$ 为20%以上。

[0140] 图1是本实施方式的散热片10的放大截面示意图。

[0141] 散热片10是通过凝集无机填料1随机地配置于基体树脂2中而成的。相对于散热片10的总质量,散热片10中的凝集无机填料1的含量通常优选为5重量%以上、更优选为10重量%以上、进一步优选为15重量%以上、特别优选为20重量%以上。另外,相对于散热片10的总质量,散热片10中的凝集无机填料1的含量通常优选为90重量%以下、更优选为80重量%以下、进一步优选为70重量%以下、特别优选为60重量%以下。

[0142] 由此,相对于散热片10的总质量,散热片10中的凝集无机填料1的含量优选为5~90重量%、更优选为10~80重量%、进一步优选为15~70重量%、特别优选为20~60重量%。

[0143] 在散热片10中包含的凝集无机填料1中的一半以上,凝集无机填料彼此发生面接触(条件A)。即,其特征在于,凝集无机填料1彼此的接触界面3构成直线部分。

[0144] 本实施方式的散热片由于在基体树脂中包含凝集无机填料,因此在片化时容易在树脂·填料界面产生空隙。为了减少该空隙,对散热片的厚度方向进行压制。通过压制使散热片中的空隙减少,但压力也施加到散热片中的凝集无机填料,相邻的凝集无机填料彼此不是以点而是以面接触。并且,该以面接触的部分在厚度方向截面观察中作为“直线部分”被观察到。另外,还取决于凝集无机填料的含量,散热片中的凝集无机填料的形状能够为五

边形形状、六边形形状等多边形。

[0145] 这样,在凝集无机填料彼此的接触界面发生破坏等导致的变形而构成直线部分,但凝集结构本身不坍塌而以面接触。由此,凝集无机填料彼此的接触增加,向散热片的厚度方向的导热路径增加,并且还能够减少凝集无机填料间的空隙。由此,能够制作具有高散热性能和高绝缘性的散热片。

[0146] 只要能在散热片中取得这种形状,则对凝集无机填料的种类没有特别限定,优选为凝集无机填料的破坏强度不过高、并且填料本身具有充分的弹性模量的凝集无机填料。具体而言,凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下、弹性模量为48MPa以上。从这种方面考虑,凝集无机填料更优选为具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0147] 另外,在散热片的厚度方向的截面观察中,以接触界面构成直线部分的凝集无机填料的最大径为直径的假想圆与该直线部分的两个交点在与该假想圆的中心之间所形成的角度 $\theta_1$ 优选为30度以上。即,在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 优选为30度以上。通过图2对此进行说明。

[0148] 图2中的凝集无机填料1是接触界面构成直线部分A-B的凝集无机填料。图中左侧的以凝集无机填料的最大径d为直径的假想圆与接触界面3的直线部分的交点A和B在与假想圆的中心C之间形成的角度 $\theta_1$ 优选为30度以上。该角度 $\theta_1$ 表示填料彼此的接触导致的原本的凝集无机填料的压碎程度。角度 $\theta_1$ 可以为45度以上、也可以为60度以上。

[0149] 另一方面,角度 $\theta_1$ 通常优选为180度以下、可以为135度以下、可以为120度以下、也可以为105度以下。

[0150] 由此,角度 $\theta_1$ 可以为30~180度、可以为30~135度、可以为30~120度、可以为30~105度、可以为45~180度、可以为45~135度、可以为45~120度、可以为45~105度、可以为60~180度、可以为60~135度、可以为60~120度、也可以为60~105度。

[0151] 另外,散热片由于为了减小空隙而进行压制,因此优选空隙少。散热片的空隙率优选为10体积%以下、更优选为5体积%以下、进一步优选为3体积%以下。

[0152] 通过将固化后的散热片切断,并用光学显微镜或扫描型电子显微镜对其截面进行观察,由此能够确认散热片中的凝集无机填料彼此如何接触。

[0153] 对于散热片中包含的凝集无机填料中的一半以上,长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下(条件B)。本实施方式中,将长径比超过1且为2以下的凝集无机填料视为“维持了球形”。凝集无机填料维持了球形是指,根据散热片的截面照片,该填料维持了球形,并且形成凝集结构的一次颗粒保持了各向同性。维持了球形的凝集无机填料的长径比超过1且为2以下、优选超过1且为1.75以下、更优选为1以上1.5以下、进一步优选为1以上1.4以下。

[0154] 散热片中的凝集无机填料彼此的面接触的程度可以用以下所示的指标表示。即,在散热片的厚度方向的截面观察中,在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将连结上述直线的两端与上述顶点而成的角度设为 $\theta_1$ 。在满足上述条件A和条件B的凝集无机填料中,将上述 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和设为 $S_t$ 时,可以用总和 $S_t$ 相对于满足上述条件A和条件B的凝集无机填料的截面积的总和 $S_n$ 的数值来表示散热片中满足上述条

件A和条件B的凝集无机填料的面接触的程度。

[0155] 需要说明的是,此处所说的“接触界面所构成的直线”的“直线”无需在数学上严格地为直线,而是指接触的凝集无机填料彼此相互破坏和/或变形的状态大致呈直线状。关于直线的画法,用连结相邻的凝集无机填料彼此开始接触的点而成的直线考虑即可。

[0156] 另外,在凝集无机填料之间部分存在尺寸不同的其他种类的无机填料的情况下,例如使用粒径大的氮化硼作为凝集无机填料,为了提高无机填料的填充率,合用与上述凝集无机填料相比粒径为1/10以下的小的其他无机填料、例如氧化铝的情况下等,在作为凝集无机填料的氮化硼彼此的界面处有时会夹入有一部分的粒径小的氧化铝。即使包含该氧化铝之类的粒径小的颗粒,也不能认为直线中断或者因此中心角(角度 $\theta_1$ )小于30度。

[0157] 对求出上述总和 $S_h$ 和总和 $S_t$ 的方法没有特别限定。例如,可以举出利用图像分析软件的方法、印刷到纸上并测定重量的方法等。

[0158] 通过提高凝集无机填料彼此的面接触的程度、即上述总和 $S_t$ 相对于上述总和 $S_h$ ( $S_t/S_h$ )的数值,凝集无机填料彼此的接触增加,向散热片的厚度方向的导热路径增加,并且能够减少填料间的空隙、提高绝缘性。因此, $S_t/S_h$ 的数值越大,则散热片的散热性、绝缘性越高,故优选。

[0159] 由此,本实施方式中,在满足上述条件A和条件B的上述凝集无机填料中,上述总和 $S_t$ 相对于上述总和 $S_h$ 为20%以上(即, $S_t/S_h$ 为20%以上)(条件C)。 $S_t/S_h$ 优选为23%以上、更优选为25%以上、进一步优选为30%以上。另一方面,从模压成型时的片形状的尺寸稳定性的方面出发, $S_t/S_h$ 通常优选为99%以下、更优选为95%以下、进一步优选为80%以下。

[0160] 由此,上述 $S_t/S_h$ 可以为20~99%、可以为20~95%、可以为20~80%、可以为23~99%、可以为23~95%、可以为23~80%、可以为25~99%、可以为25~95%、可以为25~80%、可以为30~99%、可以为30~95%、也可以为30~80%。

[0161] 上述 $S_t/S_h$ 的数值可以通过凝集无机填料的破坏强度、凝集无机填料的弹性模量、散热片中的凝集无机填料的含量、树脂的组成以及制造散热片时的压制压力等进行调整。

[0162] 下面说明本实施方式的散热片的制造方法。只要可得到上述形状的散热片,则对其制造方法没有特别限定,例如可以适当参照国际公开第2015/119198号。

[0163] 散热片例如通过将片用组合物涂布到基板的表面并使其干燥后进行片化而获得。

[0164] <片用组合物的制备>

[0165] 片用组合物可以通过将作为混配成分的上述凝集无机填料、树脂、以及根据需要的其他无机填料、固化剂、固化促进剂、除此以外的其他成分利用搅拌或混炼混合均匀而获得。各混配成分的混合例如可以使用混合器、捏合机、单螺杆或双螺杆混炼机等常用的混炼装置,在混合时可以根据需要进行加热。

[0166] 需要说明的是,片用组合物包含液体状态的树脂或溶剂等、片用组合物为具有流动性的浆料状态(本说明书中也称为“涂布用浆料”)的情况下,制成浆料时的制备方法没有特别限定,可以利用现有公知的方法。需要说明的是,此时为了提高涂布用浆料的均匀性、进行脱泡等,优选使用涂料搅拌器、珠磨机、行星式搅拌机、搅拌型分散机、自转公转搅拌机、三辊机、捏合机、单螺杆或双螺杆混炼机等常用的混炼装置等对各混配成分进行混合和搅拌。

[0167] 关于各混配成分的混合顺序,也是只要没有产生反应或沉淀物等特别的问题就是

任意的,例如可以如下制备涂布用浆料。

[0168] 首先,将树脂混合、溶解于有机溶剂(例如甲基乙基酮、环己烷等)中而制备树脂液。在所得到的树脂液中加入将凝集无机填料与根据需要的其他无机填料和其他成分中的1种以上充分混合而成的混合物并进行混合,之后作为粘度调节用而进一步加入有机溶剂并混合。之后,进一步加入树脂固化剂、固化促进剂、或分散剂等添加剂并混合,得到涂布用浆料。

[0169] <涂布工序>

[0170] 首先,在另行准备的基板的表面涂布涂布用浆料。

[0171] 即,利用浸渍法、旋涂法、喷涂法、刮板法、其他任意方法将涂布用浆料涂布到基板的表面。在涂布用浆料的涂布中,通过使用旋涂机、狭缝涂布机、模涂机、刮刀涂布机、逗号涂布机、丝网印刷、刮刀、涂布器、喷雾涂布等涂布装置,可以在基板上均匀地形成规定膜厚的涂膜。在上述涂布装置中,优选能够调整间隙的刮刀涂布机。

[0172] 作为基板,可以举出金属基板、塑料基板(也称为塑料膜)等。

[0173] <干燥工序>

[0174] 接着,使涂布于基板表面的涂布用浆料干燥,得到涂布干燥物(涂膜)。

[0175] 干燥温度通常优选为15℃以上、更优选为20℃以上、进一步优选为23℃以上。另外,干燥温度通常优选为100℃以下、更优选为90℃以下、进一步优选为80℃以下、特别优选为70℃以下。

[0176] 另外,对干燥时间没有特别限定,通常优选为5分钟以上、更优选为30分钟以上、进一步优选为1小时以上、特别优选为2小时以上。另外,干燥时间通常优选为168小时以下、更优选为144小时以下、进一步优选为120小时以下、特别优选为96小时以下。

[0177] 由此,干燥时间优选为5分钟~168小时、更优选为30分钟~144小时、进一步优选为1~120小时、特别优选为2~96小时。

[0178] 进行干燥前的散热片的膜厚根据组装的器件而适当设定,通常优选为50μm以上、更优选为100μm以上、进一步优选为150μm以上、特别优选为300μm以上。另外,进行干燥前的散热片的膜厚通常优选为800μm以下、更优选为700μm以下、进一步优选为600μm以下、特别优选为500μm以下。

[0179] 由此,进行干燥前的散热片的膜厚优选为50~800μm、更优选为100~700μm、进一步优选为150~600μm、特别优选为300~500μm。

[0180] <片化工序>

[0181] 在干燥工序后,进行对涂布干燥物加压、成型的工序(片化工序)。

[0182] 在基板为金属基板的情况下,优选在涂布干燥物上层积其他金属基板并进行加压。另外,在加压之前或之后,可以将涂布干燥物切断成规定的尺寸。

[0183] 在基板为塑料膜的情况下,优选在涂布干燥物上层积其他塑料膜并进行加压。之后,优选将塑料膜剥离,在加压后的涂布干燥物的两面层积金属基板并再次加压,或者将加压后的涂布干燥物的单侧临时粘接到金属基板后再次进行加压。通过再次进行加压,涂布干燥物粘接到金属基板上。另外,可以在第一次加压之前或之后将涂布干燥物切断成规定的尺寸。

[0184] 进行片化时的加热温度(压制温度)通常优选为0℃以上、更优选为20℃以上。另

外,压制温度通常优选为300℃以下、更优选为250℃以下、进一步优选为200℃以下。

[0185] 由此,压制温度优选为0~300℃、更优选为20~250℃、进一步优选为20~200℃。

[0186] 上述片化工序(下文中也称为“压制处理”)中的压制方法可以利用公知的技术进行,例如可以利用静水压压制、真空压制、带压制、加热压制、伺服压制、压延辊等公知的方法成型。

[0187] 对塑料膜或金属基板上的涂布干燥物进行加压时的压制压力通常优选为10kgf/cm<sup>2</sup>以上、更优选为150kgf/cm<sup>2</sup>以上、进一步优选为200kgf/cm<sup>2</sup>以上、特别优选为250kgf/cm<sup>2</sup>以上。另外,压制压力通常优选为2000kgf/cm<sup>2</sup>以下、更优选为1000kgf/cm<sup>2</sup>以下、进一步优选为900kgf/cm<sup>2</sup>以下、特别优选为800kgf/cm<sup>2</sup>以下。

[0188] 由此,压制压力通常优选为10~2000kgf/cm<sup>2</sup>、更优选为150~1000kgf/cm<sup>2</sup>、进一步优选为200~900kgf/cm<sup>2</sup>、特别优选为250~800kgf/cm<sup>2</sup>。

[0189] 关于具有对本实施方式的散热片的两面贴合有铜的散热片的电路基板,因以往未有的高导热性所产生的散热效果,在高可靠性的基础上能够实现器件的高输出、高密度化,因此适合作为半导体器件、特别是功率半导体器件装置的散热基板或散热片。功率半导体器件装置包含本实施方式的散热片,但本实施方式的散热片以外的铝配线、密封材料、包装材料、散热器、热胶、焊锡等构件可以适当采用现有公知的构件。

[0190] 另外,对散热片的导热系数(W/mK)没有特别限制,通常优选为5W/mK以上、更优选为10W/mK以上、进一步优选为13W/mK以上、特别优选为15W/mK以上、最优选为17W/mK以上。

[0191] 耐电压性能通常优选为10kV/mm以上、更优选为15kV/mm以上、进一步优选为20kV/mm以上。

[0192] 另外,对散热片的玻璃化转变温度没有特别限定,通常优选为0℃以上、更优选为10℃以上、进一步优选为25℃以上。另外,散热片的玻璃化转变温度通常优选为400℃以下、更优选为350℃以下、进一步优选为300℃以下。

[0193] 另外,对散热片的粘接强度(N/cm)没有特别限制,通常优选为0.5N/cm以上、更优选为1N/cm以上、进一步优选为2N/cm、特别优选为3N/cm以上、最优选为5N/cm以上。

[0194] 以上说明的本发明的第一方案的实施方式的散热片包含特定的凝集无机填料和树脂,散热片中包含的凝集无机填料的一半以上满足上述条件A和条件B,并且满足上述条件A和条件B的凝集无机填料满足上述条件C,因此具有高的导热性和绝缘性。通过将导热性高的散热片用于半导体器件,即便是放热量多的功率器件也能提供良好的散热性。

[0195] “第二方案”

[0196] 本发明的第二方案的实施方式的散热片是包含凝集无机填料和树脂的散热片,其特征在于散热片的厚度方向截面。

[0197] 本发明的第二方案的实施方式的散热片中,散热片中包含的凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的凝集无机填料满足下述条件D,除此以外与本发明的第一方案的实施方式的散热片相同。需要说明的是,条件A和条件B与第一方案相同。另外,关于制造方法也与第一方案相同。

[0198] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0199] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0200] 条件D:在散热片的厚度方向的截面观察中,凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 相对

于以凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的面积的总和 $S_v$ 为90%以下。

[0201] 本实施方式的散热片由于在基体树脂中包含凝集无机填料,因此在片化时容易在树脂·填料界面产生空隙。为了减少该空隙,对散热片的厚度方向进行压制。通过压制使散热片中的空隙减少,但压力也施加到散热片中的凝集无机填料,相邻的凝集无机填料彼此不是以点而是以面接触。并且,该以面接触的部分在厚度方向截面观察中作为“因变形而与压制前相比面积减少的情况”被观察到。另外,还取决于凝集无机填料的含量,散热片中的凝集无机填料的形状能够为五边形形状、六边形形状等多边形。

[0202] 这样,在凝集无机填料彼此的接触界面发生破坏等导致的变形而产生面积的减少,但凝集结构本身不坍塌而以面接触。由此,凝集无机填料彼此的接触增加,向散热片的厚度方向的导热路径增加,并且还能够减少凝集无机填料间的空隙。由此,能够制作具有高散热性能和高绝缘性的散热片。

[0203] 只要能在散热片中取得这种形状,则对凝集无机填料的种类没有特别限定,优选为凝集无机填料的破坏强度不过高、并且填料本身具有充分的弹性模量的凝集无机填料。具体而言,凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下、弹性模量为48MPa以上。从这种方面考虑,凝集无机填料更优选为具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0204] 散热片中的凝集无机填料的接触变形的程度能够用以下所示的指标表示。即,在散热片的厚度方向的截面观察中,将以满足上述条件A和条件B的凝集无机填料的最大径为直径 $d$ 的假想圆的面积的总和设为 $S_v$ 时,可以用满足上述条件A和条件B的凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 的数值来表示散热片中满足上述条件A和条件B的凝集无机填料的接触变形的程度。

[0205] 例如,若用图3进行说明,则将双向箭头表示的通过凝集无机填料1的中心的 longest 线视为凝集无机填料1的粒径(直径) $d$ ,将以 $d$ 为直径的假想圆的面积的总和设为 $S_v$ ,求出相对于 $S_v$ 的实际变形的凝集无机填料1的截面积的总和 $S_h$ 。

[0206] 对求出上述总和 $S_h$ 和总和 $S_v$ 的方法没有特别限定,可以举出利用图像分析软件的方法、印刷到纸上并测定重量的方法等。

[0207] 通过减小散热片中的凝集无机填料的接触变形的程度、即上述总和 $S_h$ 相对于上述总和 $S_v$ ( $S_h/S_v$ )的数值,凝集无机填料彼此的接触增加,向散热片的厚度方向的导热路径增加,并且能够减小填料间的空隙而导致绝缘性提高。因此, $S_h/S_v$ 的数值越小则散热片的散热性、绝缘性越高,故优选。

[0208] 由此,本实施方式中,在满足上述条件A和条件B的上述凝集无机填料中,上述总和 $S_h$ 相对于上述总和 $S_v$ 为90%以下(即, $S_h/S_v$ 为90%以下)(条件D)。 $S_h/S_v$ 优选为87%以下、更优选为85%以下、进一步优选为80%以下。另一方面,从在模压成型时容易维持凝集无机填料内的散热性高的凝集结构的方面考虑, $S_h/S_v$ 通常优选为40%以上、更优选为50%以上、进一步优选为55%以上。

[0209] 由此, $S_h/S_v$ 可以为40~90%、可以为40~87%、可以为40~85%、可以为40~80%、可以为50~90%、可以为50~87%、可以为50~85%、可以为50~80%、可以为55~90%、可以为55~87%、可以为55~85%、也可以为55~80%。

[0210] 上述 $S_h/S_v$ 的数值可以通过凝集无机填料的破坏强度或弹性模量、散热片中的凝集无机填料的含量、树脂的组成以及制造散热片时的压制压力等进行调整。

[0211] 上述说明的本发明的第二方案的实施方式的散热片包含特定的凝集无机填料和树脂,散热片中包含的凝集无机填料的一半以上满足上述条件A和条件B,并且满足上述条件A和条件B的凝集无机填料满足上述条件D,因此具有高的导热性和绝缘性。通过将导热性高的散热片用于半导体器件,即便是放热量多的功率器件也能提供良好的散热性。

[0212] “第三方案”

[0213] 本发明的第三方案的实施方式的散热构件是含有散热片和金属基板的散热构件,上述散热片包含凝集无机填料和树脂,上述金属基板粘接有上述散热片,该散热构件的特征在于与金属基板的接触界面附近的散热片的厚度方向截面。

[0214] 对于本发明的第三方案的实施方式的散热构件,在包含于散热片中且存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足下述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上。

[0215] 条件E:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0216] 条件F:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_2$ 为30度以上。

[0217] 金属基板与在第一方案中说明的散热片的制造方法中使用的金属基板相同。具体而言,金属基板相当于在半导体器件的散热基板中使用的金属基板或金属电极。作为所使用的金属,优选铜、铝等高导热的导电体,金属基板的厚度优选0.01~10mm。另外,所使用的金属基板、金属电极的表面可以通过机械处理、化学处理等实施了表面粗糙化或树脂亲和性的改良。

[0218] 作为散热片中包含的凝集无机填料和树脂,可以举出第一方案的实施方式的散热片中包含的凝集无机填料和树脂。

[0219] 本实施方式的散热构件所具备的散热片由于在基体树脂中包含凝集无机填料,因此在片化时容易产生空隙。为了减少该空隙,对散热片的厚度方向进行压制。散热构件的具体制造方法与第一方案的实施方式的散热片的制造方法相同。

[0220] 通过压制使散热片中的空隙减少,但压力也施加到散热片中的凝集无机填料,与金属基板接触的凝集无机填料不是以点而是以面接触。并且,该以面接触的部分在厚度方向截面观察中作为“因变形而与压制前相比面积减少的情况”被观察到。另外,还取决于凝集无机填料的含量,散热片中的凝集无机填料的形状能够为五边形形状、六边形形状等多边形。

[0221] 这样,在金属基板与凝集无机填料的接触界面发生破坏等导致的变形而产生面积的减少,但凝集结构本身不坍塌而以面接触。由此,金属基板与凝集无机填料的接触增加,从金属基板向散热片的导热路径增加,并且还能够减少凝集无机填料间的空隙。由此,能够制作具有高散热性能和高绝缘性的散热片。

[0222] 只要能在散热片中取得这种形状,则对凝集无机填料的种类没有特别限定,优选为凝集无机填料的破坏强度不过高、并且填料本身具有充分的弹性模量的凝集无机填料。具体而言,凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下、弹性模量为48MPa以上。从这种方面考虑,凝集无机填料更优选为具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0223] 在散热片的厚度方向的截面观察中,以金属基板与凝集无机填料的接触界面构成

直线部分的凝集无机填料的最大径为直径的假想圆与该直线部分的两个交点在与该假想圆的中心之间所形成的角度 $\theta_2$ 优选为30度以上。即,在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_2$ 优选为30度以上。通过图4对此进行说明。

[0224] 图4是示出包含散热片10和粘接有散热片10的金属基板20的散热构件100的一例的放大截面示意图。图4中的凝集无机填料1是与金属基板20的接触界面4构成直线部分E-F的凝集无机填料。以与金属基板20接触的凝集无机填料1的最大径d为直径的假想圆与接触界面4的直线部分的交点E和F在与假想圆的中心G之间所形成的角度 $\theta_2$ 优选为30度以上。该角度 $\theta_2$ 表示凝集无机填料1与金属基板20的接触导致的原本的凝集无机填料的压碎程度。角度 $\theta_2$ 可以为45度以上、也可以为60度以上。另一方面,角度 $\theta_2$ 通常优选为180度以下、可以为135度以下、可以为120度以下、也可以为105度以下。

[0225] 由此,角度 $\theta_2$ 可以为30~180度、可以为30~135度、可以为30~120度、可以为30~105度、可以为45~180度、可以为45~135度、可以为45~120度、可以为45~105度、可以为60~180度、可以为60~135度、可以为60~120度、也可以为60~105度。

[0226] 通过将固化后的散热片切断,并用光学显微镜或扫描型电子显微镜对其截面进行观察,由此能够确认散热片中的凝集无机填料与金属基板如何接触。

[0227] 包含于散热片中并存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中的60%以上的凝集无机填料的长径比超过1且为2以下(条件E)。本实施方式中,将长径比超过1且为2以下的凝集无机填料视为“维持了球形”。凝集无机填料维持了球形是指,根据散热片的截面照片,该填料维持了球形,并且形成凝集结构的一次颗粒保持了各向同性。维持了球形的凝集无机填料的长径比超过1且为2以下、优选超过1且为1.75以下、更优选为1以上1.5以下、进一步优选为1以上1.4以下。

[0228] 散热片中的凝集无机填料与金属基板的面接触的程度可以用以下所示的指标表示。即,在散热片的厚度方向的截面观察中,在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将连结上述直线的两端与上述顶点而成的角度设为 $\theta_2$ 。可以用相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数的、上述 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例的数值来表示散热片中的凝集无机填料与金属基板的面接触的程度。

[0229] 需要说明的是,此处所说的“接触界面所构成的直线”的“直线”无需在数学上严格地为直线,而是指接触的金属基板与凝集无机填料相互破坏和/或变形的状态大致呈直线状。关于直线的画法,用连结接触的金属基板与凝集无机填料开始接触的点而成的直线考虑即可。

[0230] 通过增加凝集无机填料与金属基板的面接触的程度、即在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中上述 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例,凝集无机填料与金属基板的接触增加,从金属基板向散热片的导热路径增加,并且能够减少填料间的空隙、提高绝缘性。

[0231] 因此,上述 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数的个数比例越多,则散热片的散热性、绝缘性越高,故优选。

[0232] 本实施方式中,通过使存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上,与金属基板的导热性提高,使用了其的电路板由于以往未有的高导热性带来的散热效果和界面的空隙减少带来的绝缘性提高,在高可靠性的基础上能够实现器件的高输出、高密度化。

[0233] 满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例为60%以上即可,优选65%以上、更优选70%以上、进一步优选75%以上、特别优选80%以上。另外,对上限值没有特别限制,优选为高值。

[0234] 满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例可以通过凝集无机填料的破坏强度或弹性模量、散热片中的凝集无机填料的含量、树脂的组成以及制造散热片时的压制压力等进行调整。

[0235] 本实施方式中,优选散热片中包含的无机填料的一半以上满足上述条件A和条件B,并且满足上述条件A和条件B的无机填料满足上述条件C或条件D。即,本实施方式的散热构件所具备的散热片优选为第一方案或第二方案的实施方式的散热片。由此,导热性和绝缘性进一步提高。

[0236] 以上说明的本发明的第三方案的实施方式的散热构件含有:包含特定的凝集无机填料和树脂的散热片、以及粘接有上述散热片的金属基板。并且,相对于包含于散热片中并存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数,60%以上的凝集无机填料满足上述条件E和条件F,因此具有高的导热性和绝缘性。通过将导热性高的散热片用于半导体器件,即便是放热量多的功率器件也能提供良好的散热性。

[0237] 作为本发明的其他方案,如下所述。

[0238] (1) 一种散热片,其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,

[0239] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0240] 上述散热片中包含的上述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的上述凝集无机填料满足下述条件C。

[0241] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0242] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0243] 条件C:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将凝集无机填料彼此的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_1$ 为30度以上的三角形的面积的总和 $S_t$ 相对于凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 为20%以上。

[0244] (2) 如(1)所述的散热片,其中,在上述条件C中,上述总和 $S_t$ 相对于总和 $S_h$ 为23%以上。

[0245] (3) 如(2)所述的散热片,其中,在上述条件C中,上述总和 $S_t$ 相对于总和 $S_h$ 为25%以上。

[0246] (4) 如(1)~(3)中任一项所述的散热片,其中,在上述条件C中,上述总和 $S_t$ 相对于总和 $S_h$ 为99%以下。

[0247] (5) 如(4)所述的散热片,其中,在上述条件C中,上述总和 $S_t$ 相对于总和 $S_h$ 为95%以

下。

[0248] (6) 如(5)所述的散热片,其中,在上述条件C中,上述总和 $S_t$ 相对于总和 $S_h$ 为80%以下。

[0249] (7) 一种散热片,其为包含凝集无机填料和树脂的散热片,

[0250] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0251] 上述散热片中包含的上述凝集无机填料的一半以上满足下述条件A和条件B,并且满足下述条件A和条件B的上述凝集无机填料满足下述条件D。

[0252] 条件A:凝集无机填料彼此发生面接触。

[0253] 条件B:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0254] 条件D:在散热片的厚度方向的截面观察中,凝集无机填料的截面积的总和 $S_h$ 相对于以凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的面积的总和 $S_v$ 为90%以下。

[0255] (8) 如(7)所述的散热片,其中,在上述条件D中,上述总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 为87%以下。

[0256] (9) 如(8)所述的散热片,其中,在上述条件D中,上述总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 为85%以下。

[0257] (10) 如(7)~(9)中任一项所述的散热片,其中,在上述条件D中,上述总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 为40%以上。

[0258] (11) 如(10)所述的散热片,其中,在上述条件D中,上述总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 为50%以上。

[0259] (12) 如(11)所述的散热片,其中,在上述条件D中,上述总和 $S_h$ 相对于总和 $S_v$ 为55%以上。

[0260] (13) 如(1)~(12)中任一项所述的散热片,其中,上述凝集无机填料是具有卡屋结构的氮化硼凝集颗粒。

[0261] (14) 如(1)~(13)中任一项所述的散热片,其中,上述树脂包含环氧树脂。

[0262] (15) 如(14)所述的散热片,其中,上述环氧树脂包含苯氧基树脂。

[0263] (16) 如(15)所述的散热片,其中,上述苯氧基树脂在主链中包含上述式(1)~(6)所示的骨架中的至少1种骨架。

[0264] (17) 如(15)或(16)所述的散热片,其中,上述苯氧基树脂的重均分子量为10,000~1,000,000。

[0265] (18) 如(1)~(17)中任一项所述的散热片,其中,上述树脂进一步包含重均分子量为600以下的低分子量环氧树脂。

[0266] (19) 如(1)~(18)中任一项所述的散热片,其进一步包含固化促进剂。

[0267] (20) 如(1)~(19)中任一项所述的散热片,其中,上述凝集无机填料的含量相对于上述散热片的总质量为5~90重量%。

[0268] (21) 如(1)~(20)中任一项所述的散热片,其进一步包含上述凝集无机填料以外的其他无机填料。

[0269] (22) 如(21)所述的散热片,其中,上述其他无机填料为氧化铝。

[0270] (23) 如(1)~(22)中任一项所述的散热片,其中,上述凝集无机填料的体积基准的

最大粒径为2~300 $\mu\text{m}$ 。

[0271] (24) 如(1)~(23)中任一项所述的散热片,其中,上述凝集无机填料的体积基准的平均粒径为1~250 $\mu\text{m}$ 。

[0272] (25) 如(1)~(24)中任一项所述的散热片,其导热系数为10W/mK以上。

[0273] (26) 如(1)~(25)中任一项所述的散热片,其耐电压为20kV/mm以上。

[0274] (27) 一种散热构件,其为含有散热片和金属基板的散热构件,上述散热片包含凝集无机填料和树脂,上述金属基板粘接有上述散热片,

[0275] 上述凝集无机填料的破坏强度为20MPa以下,并且上述凝集无机填料的弹性模量为48MPa以上,

[0276] 在包含于上述散热片中且存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足下述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上。

[0277] 条件E:长径与短径之比(长径/短径)所表示的长径比超过1且为2以下。

[0278] 条件F:在散热片的厚度方向的截面观察中,在将金属基板与凝集无机填料的接触界面所构成的直线作为一边、将以该凝集无机填料的最大径为直径的假想圆的中心作为顶点而形成的三角形中,将上述直线的两端与上述顶点连结而成的角度 $\theta_2$ 为30度以上。

[0279] (28) 如(27)所述的散热构件,其中,在存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为65%以上。

[0280] (29) 如(28)所述的散热构件,其中,在存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为70%以上。

[0281] (30) 如(29)所述的散热构件,其中,在存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为75%以上。

[0282] (31) 如(30)所述的散热构件,其中,在存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述条件E和条件F的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与上述金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为80%以上。

[0283] (32) 如(27)~(31)中任一项所述的散热构件,其中,上述散热片为(1)~(26)中任一项所述的散热片。

[0284] (33) 一种半导体器件,其包含(1)~(26)中任一项所述的散热片、或者(27)~(32)中任一项所述的散热构件。

[0285] 实施例

[0286] 以下,通过实施例来更具体地说明本发明,但本发明不仅限于以下的实施例。

[0287] (实施例1)

[0288] 将双酚F型环氧树脂1(重均分子量:60000、环氧当量:9840g/eq)2.5质量份、芳香族环氧树脂2(重均分子量:290、3官能的芳香族环氧树脂、环氧当量:97g/eq)0.7质量份、

[0289] 非芳香族环氧树脂3(重均分子量:400、2官能的非芳香族环氧树脂、环氧当量:205g/eq)3.1质量份、

- [0290] 酚醛树脂1 (羟基当量:143g/eq) 1.6质量份、
- [0291] 作为固化促进剂的咪唑系固化促进剂1 (四国化成工业株式会社制造、商品名“C11Z-CN”) 0.14质量份、
- [0292] 球状氧化铝1 (导热系数:36W/m · K、Admatechs公司制造、体积平均粒径:7 $\mu$ m) 5.8质量份、
- [0293] 作为氮化硼填料 (凝集无机填料) 的卡屋结构氮化硼凝集颗粒1 (三菱化学株式会社制造、新莫氏硬度:2、体积平均粒径:45 $\mu$ m) 14.5质量份、以及
- [0294] 作为有机溶剂的甲基乙基酮8.4质量份以及环己酮8.4质量份混合,制备出涂布用浆料。基体树脂在100℃下的复数粘度为18Pa · s。
- [0295] 利用刮刀法将所得到的涂布用浆料涂布到PET膜上,进行加热干燥。将铜制的基板 (40mm×45mm) 层积到所得到的涂布干燥物 (涂膜) 上后,以30MPa进行压制,实施固化,由此得到在铜制的基板上粘接有散热片 (1) 的散热构件。散热片 (1) 的片厚为约130~160 $\mu$ m。将散热片 (1) 的截面SEM图像示于图5。
- [0296] (实施例2)
- [0297] 将联苯型环氧树脂4 (重均分子量:30000、环氧当量:9000g/eq) 2.0质量份、芳香族环氧树脂5 (重均分子量:380、2官能的芳香族环氧树脂、环氧当量:189g/eq) 2.0质量份、
- [0298] 非芳香族环氧树脂6 (重均分子量:400、4官能的非芳香族环氧树脂、环氧当量:100g/eq) 1.9质量份、
- [0299] 酚醛树脂1:2.1质量份、
- [0300] 作为固化促进剂的咪唑系固化促进剂2 (四国化成工业株式会社制造、商品名“2E4MZ-A”) 0.12质量份、
- [0301] 球状氧化铝1:5.8质量份、
- [0302] 卡屋结构氮化硼凝集颗粒1:14.5质量份、以及
- [0303] 作为有机溶剂的甲基乙基酮8.4质量份以及环己酮8.4质量份混合,制备出涂布用浆料。基体树脂在100℃下的复数粘度为8Pa · s。
- [0304] 利用刮刀法将所得到的涂布用浆料涂布到PET膜上,进行加热干燥。将铜制的基板 (40mm×80mm) 层积到所得到的涂布干燥物 (涂膜) 上后,以30MPa进行压制,实施固化,由此得到在铜制的基板上粘接有散热片 (2) 的散热构件。散热片 (2) 的厚度为约130~160 $\mu$ m。将所得到的散热片 (2) 的截面SEM图像示于图6。
- [0305] (实施例3)
- [0306] 与实施例2同样地制备出涂布用浆料。
- [0307] 利用刮刀法将所得到的涂布用浆料涂布到PET膜上,进行加热干燥。将所得到的涂布干燥物 (涂膜) 从PET膜剥离,用2张铜制的基板 (40mm×80mm) 夹持涂布干燥物后,以30MPa进行压制,实施固化,由此得到散热片 (3) 粘接于铜制的基板上的散热构件。散热片 (3) 的厚度为约130~160 $\mu$ m。将所得到的散热片 (3) 的截面SEM图像示于图7。
- [0308] (比较例1)
- [0309] 将双酚A/F型环氧树脂7 (重均分子量:60000、环氧当量:8800g/eq) 0.17质量份、芳香族环氧树脂8 (重均分子量:2950、多官能的芳香族环氧树脂、环氧当量:210g/eq) 0.67质量份、

- [0310] 芳香族环氧树脂5:0.17质量份、
- [0311] 分散剂(毕克化学日本株式会社制造、商品名“BYK-2155”)0.40质量份、
- [0312] 作为固化促进剂的咪唑系固化促进剂1:0.06质量份、
- [0313] 作为氮化硼填料(凝集无机填料)的5.5质量份卡屋结构氮化硼凝集颗粒1以及1.8质量份卡屋结构氮化硼凝集颗粒2(三菱化学株式会社制造、新莫氏硬度:2、体积平均粒径:14 $\mu\text{m}$ )、以及
- [0314] 作为有机溶剂的甲基乙基酮0.4质量份以及环己酮5.8质量份混合,制备出涂布用浆料。基体树脂在100℃下的复数粘度为50Pa $\cdot$ s。
- [0315] 利用刮刀法将所得到的涂布用浆料涂布到0.1mm的铜箔上,进行加热干燥。以30MPa压制所得到的涂布干燥物(涂膜),实施固化,由此得到散热片(4)粘接于铜箔上的散热构件。散热片(4)的片厚为约200 $\mu\text{m}$ 。将散热片(4)的截面SEM图像示于图8。
- [0316] (比较例2)
- [0317] 将双酚F型环氧树脂1:0.50质量份、
- [0318] 芳香族环氧树脂2:0.14质量份、
- [0319] 非芳香族环氧树脂3:0.29质量份、
- [0320] 非芳香族环氧树脂9(重均分子量:400、3官能的非芳香族环氧树脂、环氧当量:205g/eq)0.29质量份、
- [0321] 酚醛树脂1:0.36质量份、
- [0322] 作为固化促进剂的咪唑系固化促进剂1:0.02质量份、
- [0323] 球状氧化铝1:20.9质量份、以及
- [0324] 作为有机溶剂的甲基乙基酮2.4质量份混合,制备出涂布用浆料。基体树脂在100℃下的复数粘度为20Pa $\cdot$ s。
- [0325] 利用刮刀法将所得到的涂布用浆料涂布到PET膜上,进行加热干燥。将所得到的涂布干燥物(涂膜)从PET膜剥离,用2张铜制的基板(40mm $\times$ 80mm)夹持涂布干燥物后,以30MPa进行压制,实施固化,由此得到散热片(5)粘接于铜制的基板上的散热构件。散热片(5)的片厚为约130~160 $\mu\text{m}$ 。将所得到的散热片(5)的截面SEM图像示于图9。
- [0326] 以下记载实施例1~3和比较例1、2中得到的散热片和散热构件的测定条件。
- [0327] (凝集无机填料的破坏强度和弹性模量的测定)
- [0328] 凝集无机填料的破坏强度和弹性模量的测定通过下述方法实施。
- [0329] 凝集无机填料的破坏强度使用微小压缩试验机(株式会社岛津制作所制造、产品名“MCT-510”)进行测定。
- [0330] 将极微量的试样散布在设置于微小压缩试验机的下部的加压板上,对每个颗粒分别进行压缩试验,由颗粒破坏时的破坏试验力和颗粒的粒径利用下式求出破坏强度。对5个颗粒进行测定,将其平均值作为凝集无机填料的破坏强度。
- [0331]  $C_s = 2.48P/\pi d^2$
- [0332] (“ $C_s$ ”为破坏强度(MPa),“ $P$ ”为破坏试验力(N),“ $d$ ”为粒径(mm)。)
- [0333] 通常,破坏强度的计算使用断裂点的试验力来进行计算,但在断裂点不明确(例如试样变形、但未引起剧烈破坏)的情况下,作为参考强度使用给出10%变形时的试验力,并作为10%强度用于比较。10%强度通过下式算出。

[0334]  $C_x = 2.48P/\pi d^2$

[0335] (“ $C_x$ ”为10%强度(MPa),“ $P$ ”为粒径的10%位移时的试验力(N),“ $d$ ”为粒径(mm)。)

[0336] 关于凝集无机填料的弹性模量,使用破坏强度的测定中使用的装置,通过下式由发生破坏的时刻的试验力和该时刻的压缩位移算出。

[0337]  $E = 3 \times (1 - \nu^2) \times P / 4 \times (d/2)^{1/2} \times Y^{3/2}$  (“ $E$ ”为弹性模量(MPa),“ $\nu$ ”为泊松比,“ $P$ ”为破坏试验力(N),“ $d$ ”为粒径(mm),“ $Y$ ”为压缩位移(mm)。需要说明的是,泊松比假定为固定(0.13)。

[0338] (树脂的复数粘度的测定)

[0339] 树脂的复数粘度测定通过下述条件、装置来实施。

[0340] 复数粘度使用粘弹性测定装置MCR302(Anton-Paar公司制造)进行测定。

[0341] 具体而言,使用树脂约0.1g,使用直径10mm的平行板,对测定应变:0.3%、测定频率:1Hz、测定间隙(夹具间距离):0.5mm、测定温度:100℃下的复数粘度进行测定。

[0342] (关于条件A~F)

[0343] 对散热片确认是否满足下述A-1,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。需要说明的是,在不满足下述A-1的情况下,是指散热片中包含的凝集无机填料的一半以上不满足上述条件A。

[0344] A-1:对于散热片中包含的凝集无机填料的一半以上,凝集无机填料彼此发生面接触。

[0345] 对散热片确认是否分别满足下述B-1、B-2、B-3、B-4,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。

[0346] 需要说明的是,在不满足下述B-1的情况下,是指散热片中包含的凝集无机填料的一半以上不满足上述条件B。

[0347] B-1:对于散热片中包含的凝集无机填料的一半以上,上述长径比超过1且为2以下。

[0348] B-2:对于散热片中包含的凝集无机填料的一半以上,上述长径比超过1且为1.75以下。

[0349] B-3:对于散热片中包含的凝集无机填料的一半以上,上述长径比超过1且为1.5以下。

[0350] B-4:对于散热片中包含的凝集无机填料的一半以上,上述长径比超过1且为1.4以下。

[0351] 对于散热片,在厚度方向的截面观察中确认散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料是否分别满足下述C-1、C-2、C-3、C-4、C-5、C-6,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。需要说明的是,在不满足下述C-1的情况下,是指散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料不满足上述条件C。

[0352] C-1:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为20%以上。

[0353] C-2:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为20~99%。

[0354] C-3:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为20~

95%。

[0355] C-4:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为23~95%。

[0356] C-5:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为23~80%。

[0357] C-6:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_t/S_h$ 为25~80%。

[0358] 对于散热片,在厚度方向的截面观察中确认散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料是否分别满足下述D-1、D-2、D-3、D-4、D-5、D-6,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。需要说明的是,在不满足下述D-1的情况下,是指散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料不满足上述条件D。

[0359] D-1:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为90%以下。

[0360] D-2:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为40~90%。

[0361] D-3:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为50~90%。

[0362] D-4:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为50~87%。

[0363] D-5:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为55~87%。

[0364] D-6:在散热片中包含的满足上述A-1和B-1的凝集无机填料中,上述 $S_h/S_v$ 为55~85%。

[0365] 对散热构件确认是否分别满足下述E-1、E-2、E-3、E-4、E-5,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。需要说明的是,在不满足下述E-1的情况下,是指包含于散热片中并存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中的超过40%不满足上述条件E。

[0366] E-1:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,上述长径比超过1且为2以下的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上。

[0367] E-2:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,上述长径比超过1且为2以下的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为65%以上。

[0368] E-3:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,上述长径比超过1且为2以下的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为70%以上。

[0369] E-4:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,上述长径比超过1且为2以下的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为75%以上。

[0370] E-5:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,上述长径比超过1且为2以

下的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为80%以上。

[0371] 对散热构件确认是否分别满足下述F-1、F-2、F-3、F-4、F-5,满足时记为“I”,不满足时记为“II”。需要说明的是,在不满足下述F-1的情况下,是指包含于散热片中并存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中的超过40%不满足上述条件F。

[0372] F-1:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述E-1且上述角度 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为60%以上。

[0373] F-2:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述E-1且上述角度 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为65%以上。

[0374] F-3:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述E-1且上述角度 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为70%以上。

[0375] F-4:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述E-1且上述角度 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为75%以上。

[0376] F-5:在存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料中,满足上述E-1且上述角度 $\theta_2$ 为30度以上的凝集无机填料的个数比例相对于存在于与金属基板的界面处的凝集无机填料的总数为80%以上。

[0377] (散热片的厚度方向的导热系数的测定)

[0378] 使用热阻测定装置(株式会社Mentor Graphics制造、产品名“T3ster”),测定在同一组成、同一条件下制作的厚度不同的散热片的热阻值,由将热阻值相对于厚度作图得到的曲线的斜率求出导热系数。

[0379] (散热片的耐电压测定)

[0380] 在绝缘油中,每1分钟升压500V,求出样品被破坏的电压。

[0381] 对所得到的散热片(1)~(5)测定散热片中的凝集无机填料的破坏强度和弹性模量,测定树脂的复数粘度。此外,确认了散热片或散热构件是否满足条件A~F。需要说明的是,未确认散热片(1)、(2)是否满足条件E和条件F。由于散热片(5)不含凝集无机填料,因此未确认是否满足条件A~F。另外,对散热片(1)~(5)进行了散热片的厚度方向的导热系数的测定以及散热片的耐电压测定。将这些结果示于表1。

[0382] [表1]

[0383]

|                          |                   | 实施例<br>1 | 实施例<br>2 | 实施例<br>3 | 比较例<br>1 | 比较例<br>2 |
|--------------------------|-------------------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 凝集无机填料的破坏强度<br>[MPa]     |                   | 6        | 6        | 6        | 6        | 无        |
| 凝集无机填料的弹性模量<br>[MPa]     |                   | 65       | 65       | 65       | 65       | 无        |
| 树脂在100°C下的复数粘度<br>[Pa·s] |                   | 18       | 8        | 8        | 50       | 20       |
| 条件 A                     | A-1               | I        | I        | I        | I        | —        |
| 条件 B                     | B-1 (超过1且为2以下)    | I        | I        | I        | I        | —        |
|                          | B-2 (超过1且为1.75以下) | I        | I        | I        | I        | —        |
|                          | B-3 (超过1且为1.5以下)  | I        | I        | I        | I        | —        |
|                          | B-4 (超过1且为1.4以下)  | I        | I        | I        | I        | —        |
| 条件 C                     | C-1 (20%以上)       | I        | I        | I        | I I      | —        |
|                          | C-2 (20~99%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | C-3 (20~95%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | C-4 (23~95%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | C-5 (23~80%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | C-6 (25~80%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
| 条件 D                     | D-1 (90%以下)       | I        | I        | I        | I I      | —        |
|                          | D-2 (40~90%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | D-3 (50~90%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | D-4 (50~87%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | D-5 (55~87%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
|                          | D-6 (55~85%)      | I        | I        | I        | —        | —        |
| 条件 E                     | E-1 (60%以上)       | —        | —        | I        | I        | —        |
|                          | E-2 (65%以上)       | —        | —        | I        | I        | —        |
|                          | E-3 (70%以上)       | —        | —        | I        | I        | —        |
|                          | E-4 (75%以上)       | —        | —        | I        | I        | —        |
|                          | E-5 (80%以上)       | —        | —        | I        | I        | —        |
| 条件 F                     | F-1 (60%以上)       | —        | —        | I        | I I      | —        |
|                          | F-2 (65%以上)       | —        | —        | I        | —        | —        |
|                          | F-3 (70%以上)       | —        | —        | I        | —        | —        |
|                          | F-4 (75%以上)       | —        | —        | I        | —        | —        |
|                          | F-5 (80%以上)       | —        | —        | I        | —        | —        |
| 评价                       | 导热系数 [W/mK]       | 15       | 15       | 15       | 17       | 6        |
|                          | 耐电压 [kV/mm]       | 50       | 50       | 50       | 25       | 40       |

[0384] 符号说明

[0385] 1 凝集无机填料

[0386] 2 基体树脂

[0387] 3 接触界面

[0388] 4 接触界面

[0389] 10 散热片

[0390] 20 金属基板

[0391] 100 散热构件

- [0392] C 假想圆的中心
- [0393] G 假想圆的中心
- [0394] d 直径

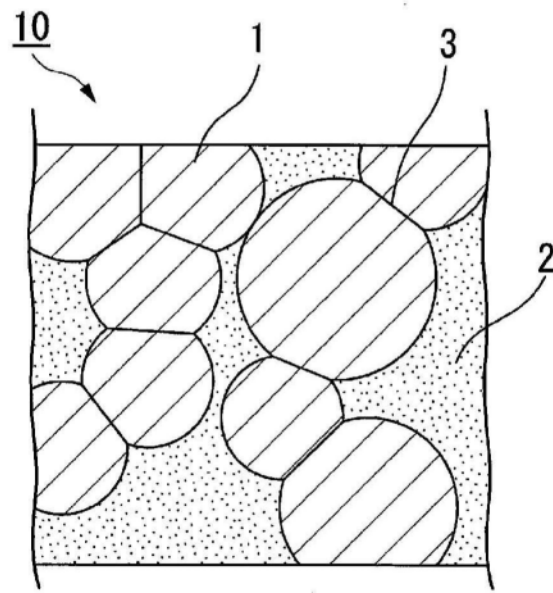


图1

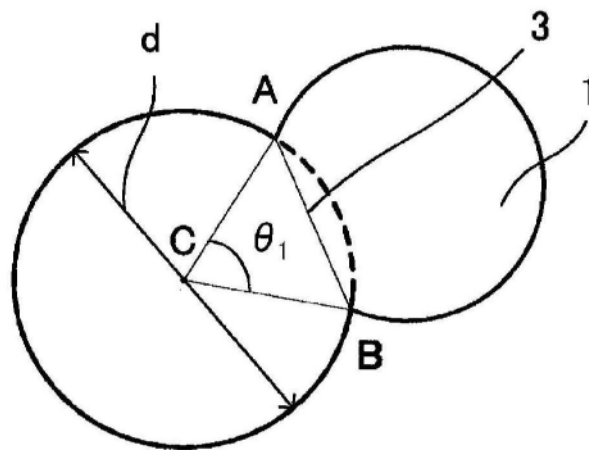


图2

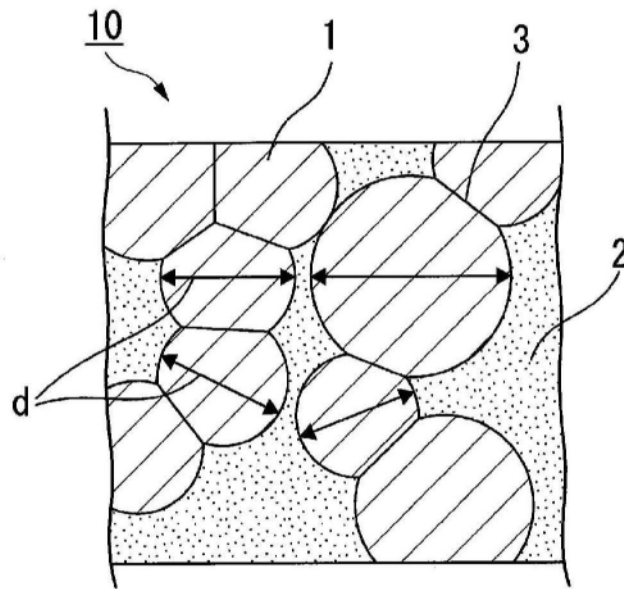


图3

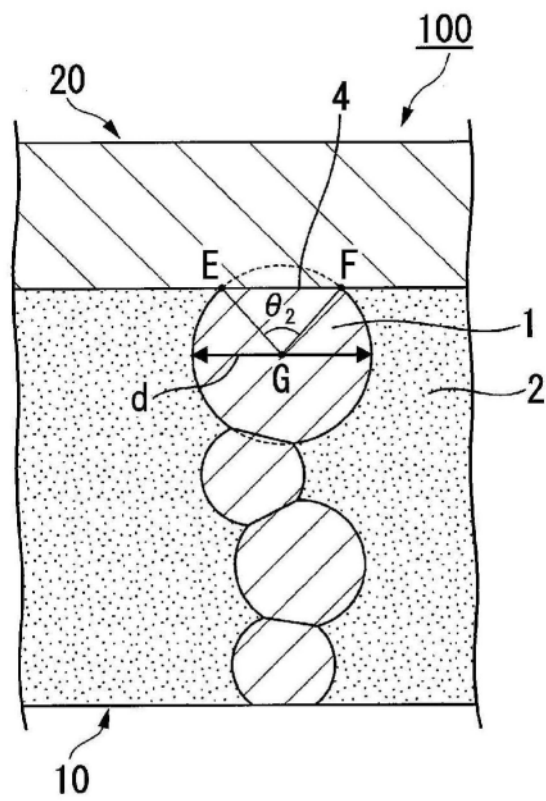


图4

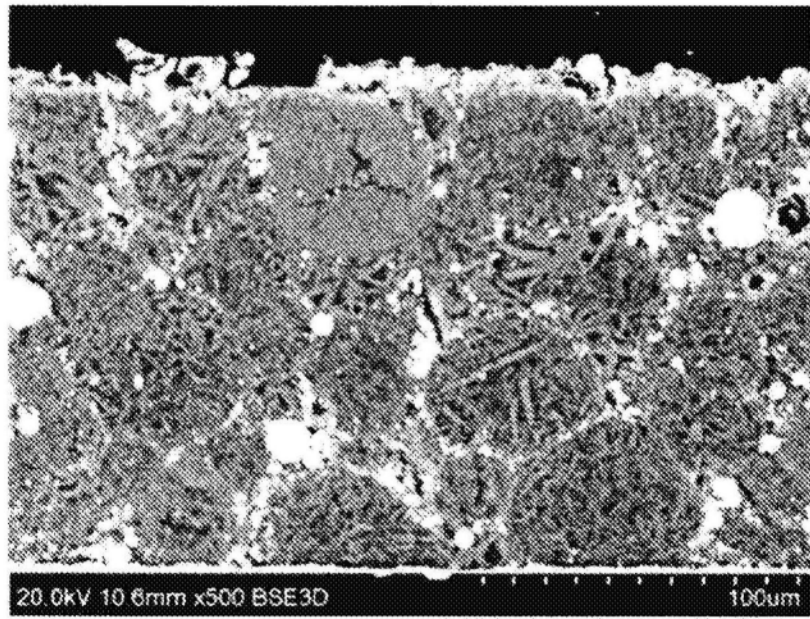


图5

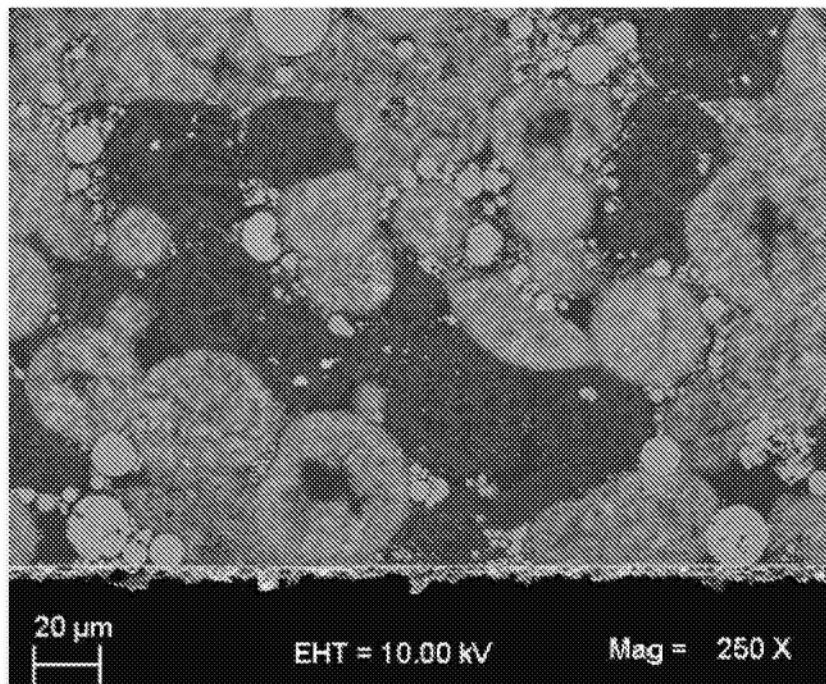


图6

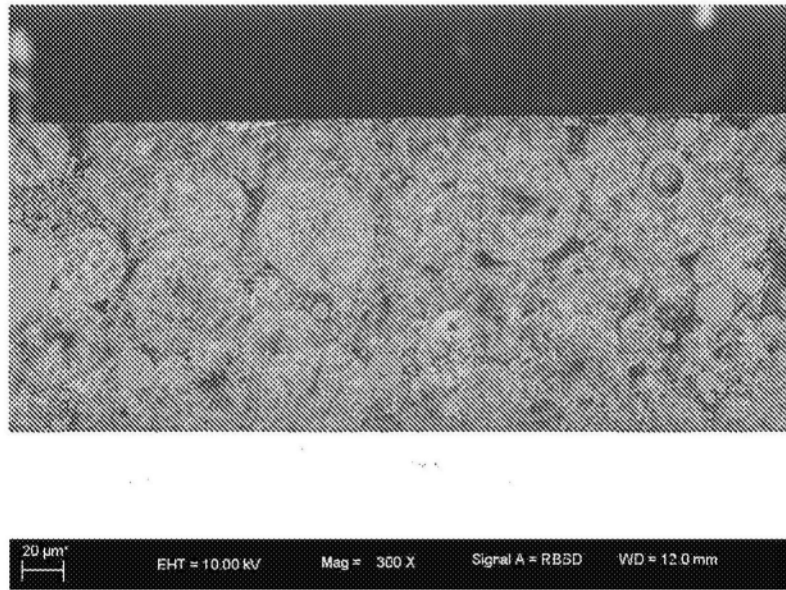


图7

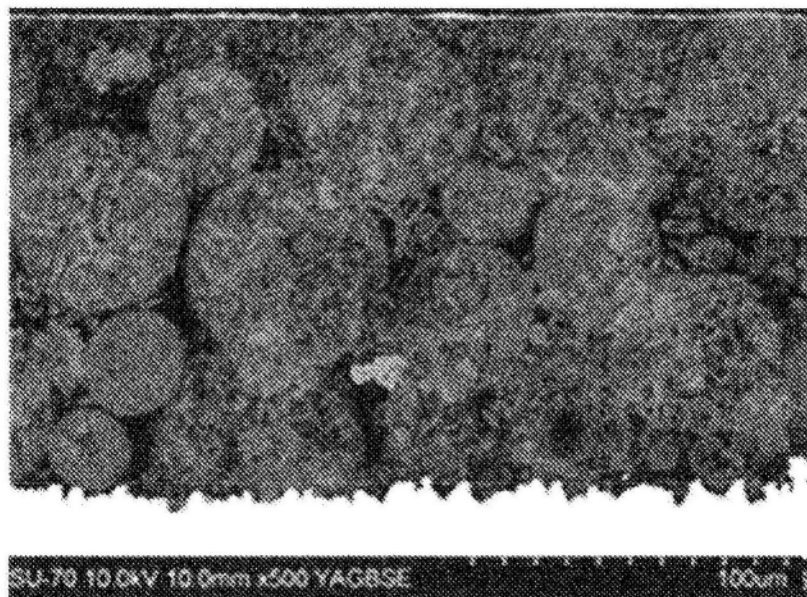


图8

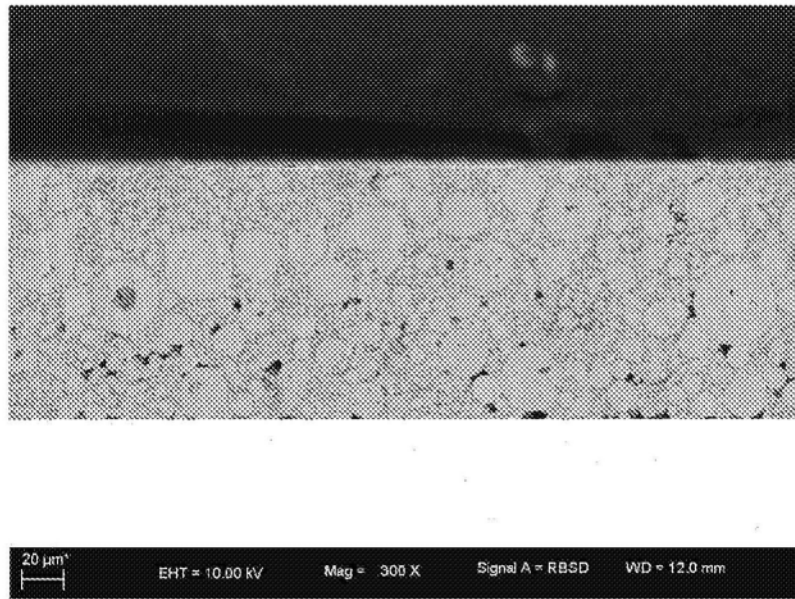


图9