



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 119451818 A

(43) 申请公布日 2025. 02. 14

(21) 申请号 202380050922.0

(22) 申请日 2023.11.15

(30) 优先权数据

2022-207046 2022.12.23 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.12.30

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2023/041025 2023.11.15

(87) PCT国际申请的公布数据

W02024/135166 JA 2024.06.27

(71) 申请人 株式会社力森诺科

地址 日本

(72) 发明人 高桥信行 斋藤勇人

(74) 专利代理机构 北京市中咨律师事务所

11247

专利代理师 孙丽梅 段承恩

(51) Int.Cl.

B32B 27/00 (2006.01)

B29C 65/48 (2006.01)

B32B 27/38 (2006.01)

H05K 3/46 (2006.01)

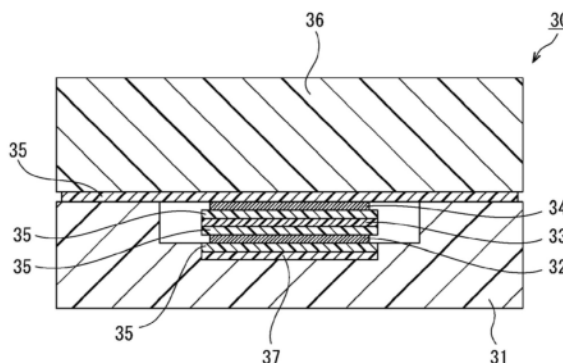
权利要求书2页 说明书21页 附图6页

(54) 发明名称

叠层体及叠层体的制造方法

(57) 摘要

提供热耐久性优异的叠层体、以及叠层体的制造方法。依次具备第1树脂层(31)、第1导电层(32)、绝缘层(33)、和第2导电层(34),第1树脂层具有收容部,第1导电层被配置在第1树脂层的收容部内,在第1导电层与绝缘层之间、和绝缘层与第2导电层之间的至少一者具备粘接层(35),粘接层包含以非晶性热塑性树脂作为主成分的固体接合剂,上述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种,非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上,或非晶性热塑性树脂不包含环氧基,非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。



1. 一种叠层体,其依次具备第1树脂层、第1导电层、绝缘层、和第2导电层,所述第1树脂层具有收容部,所述第1导电层被配置在所述第1树脂层的所述收容部内,在所述第1导电层与所述绝缘层之间、和所述绝缘层与所述第2导电层之间的至少一者具备粘接层,所述粘接层包含以非晶性热塑性树脂作为主成分的固体接合剂,所述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种,所述非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上或所述非晶性热塑性树脂不包含环氧基,所述非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。
2. 根据权利要求1所述的叠层体,所述收容部包含凹状部或凹凸状部。
3. 根据权利要求1所述的叠层体,所述第1导电层、所述绝缘层和所述第2导电层被配置在所述第1树脂层的所述收容部内。
4. 根据权利要求1或2所述的叠层体,所述第1树脂层所具有的所述收容部的面积为所述第1导电层的面积以上。
5. 根据权利要求1~3中任一项所述的叠层体,其在所述第2导电层的与所述绝缘层相反侧进一步具备第2树脂层,任意选择地在所述第1树脂层与所述第1导电层之间、和所述第2导电层与所述第2树脂层之间的至少1者具备所述粘接层。
6. 根据权利要求1~3中任一项所述的叠层体,所述第1树脂层为包含热固性树脂的树脂组合物的固化物。
7. 根据权利要求6所述的叠层体,所述热固性树脂包含不饱和聚酯。
8. 根据权利要求1~3中任一项所述的叠层体,所述第1树脂层具有将所述第1导电层、所述绝缘层和所述第2导电层固定的固定部。
9. 一种叠层体的制造方法,其包含下述工序:
接合前工序,是准备依次配置了具有收容部的第1树脂层、被配置在所述第1树脂层的所述收容部内的第1导电层、绝缘层、和第2导电层的状态的叠层体的接合前工序,在所述第1导电层与所述绝缘层之间、和所述绝缘层与所述第2导电层之间的至少一者配置固体接合剂,所述固体接合剂以非晶性热塑性树脂作为主成分,所述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种;以及
接合工序,将所述叠层体加热和加压而使所述固体接合剂熔融,将所述第1导电层与所述绝缘层接合和/或将所述绝缘层与所述第2导电层接合,
所述非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上或所述非晶性热塑性树脂不包含环氧基,
所述非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。
10. 根据权利要求9所述的叠层体的制造方法,在100°C~400°C和0.01MPa~20MPa的条件下进行所述加热和加压。

11. 根据权利要求9或10所述的叠层体的制造方法, 熔融前的所述固体接合剂具有选自膜、棒、颗粒和粉体中的任一形状。

叠层体及叠层体的制造方法

技术领域

[0001] 本公开涉及叠层体以及叠层体的制造方法。

背景技术

[0002] 被搭载于混合动力汽车等的功率模块 (PM) 具备树脂成型品与金属的叠层体 (也被称为外壳)。

[0003] 以往,外壳通过在模具内配置导电层和绝缘层,在模具内注射树脂,进行成型(以下,也称为嵌入成型。)来制造(参照专利文献1)。

[0004] 现有技术文献

[0005] 专利文献

[0006] 专利文献1:日本特开2021-122959号公报

发明内容

[0007] 发明所要解决的课题

[0008] 通常,在PM所使用的外壳粘接钎焊了元件等的散热板。

[0009] 从提高制造效率的观点考虑,期望散热板对外壳的粘接、与元件等对散热板的粘接同时进行。然而,通过元件等对散热板的钎焊,从而对外壳施加热。

[0010] 这次,本发明者们发现了,在专利文献1中被公开的以往的通过嵌入成型而被制造的外壳由于导电层埋没于树脂层,因此在叠层体被静置在高温环境下的情况、被加热了的情况下等,不能充分地缓和通过导电层与树脂层的线膨胀系数之差而产生的内部应力,产生裂缝、发生导电层和树脂层的变形等,其热耐久性具有改善的余地。

[0011] 本公开的一实施方式所要解决的课题是提供热耐久性优异的叠层体、以及叠层体的制造方法。

[0012] 用于解决课题的手段

[0013] <1>一种叠层体,其依次具备

[0014] 第1树脂层、

[0015] 第1导电层、

[0016] 绝缘层、和

[0017] 第2导电层,

[0018] 上述第1树脂层具有收容部,

[0019] 上述第1导电层被配置在上述第1树脂层的上述收容部内,

[0020] 在上述第1导电层与上述绝缘层之间、和上述绝缘层与上述第2导电层之间的至少一者具备粘接层,上述粘接层包含以非晶性热塑性树脂作为主成分的固体接合剂,上述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种,上述非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上或上述非晶性热塑性树脂不包含环氧基,

[0021] 上述非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。

- [0022] <2>根据上述<1>所述的叠层体,上述收容部包含凹状部或凹凸状部。
- [0023] <3>根据上述<1>所述的叠层体,上述第1导电层、上述绝缘层和上述第2导电层被配置在上述第1树脂层的上述收容部内。
- [0024] <4>根据上述<1>或<2>所述的叠层体,上述第1树脂层所具有的上述收容部的面积为上述第1导电层的面积以上。
- [0025] <5>根据上述<1>~<4>中任一项所述的叠层体,其在上述第2导电层的与上述绝缘层相反侧进一步具备第2树脂层,
- [0026] 任意选择地在上述第1树脂层与上述第1导电层之间、和上述第2导电层与上述第2树脂层之间的至少1者具备上述粘接层。
- [0027] <6>根据上述<1>~<5>中任一项所述的叠层体,上述第1树脂层为包含热固性树脂的树脂组合物的固化物。
- [0028] <7>根据上述<6>所述的叠层体,上述热固性树脂包含不饱和聚酯。
- [0029] <8>根据上述<1>~<7>中任一项所述的叠层体,上述第1树脂层具有将上述第1导电层、上述绝缘层和上述第2导电层固定的固定部。
- [0030] <9>一种叠层体的制造方法,其包含下述工序:
- [0031] 接合前工序,是准备依次配置了具有收容部的第1树脂层、被配置在上述第1树脂层的上述收容部内的第1导电层、绝缘层、和第2导电层的状态的叠层体的接合前工序,在上述第1导电层与上述绝缘层之间、和上述绝缘层与上述第2导电层之间的至少一者配置固体接合剂,上述固体接合剂以非晶性热塑性树脂作为主成分,上述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种;以及
- [0032] 接合工序,将上述叠层体加热和加压而使上述固体接合剂熔融,将上述第1导电层与上述绝缘层接合和/或将上述绝缘层与上述第2导电层接合,
- [0033] 上述非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上或上述非晶性热塑性树脂不包含环氧基,
- [0034] 上述非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。
- [0035] <10>根据<9>所述的叠层体的制造方法,在100°C~400°C和0.01MPa~20MPa的条件下进行上述加热和加压。
- [0036] <11>根据<9>或<10>所述的叠层体的制造方法,熔融前的上述固体接合剂具有选自膜、棒、颗粒和粉体中的任一形状。
- [0037] 发明的效果
- [0038] 根据本公开的一实施方式,可以提供热耐久性优异的叠层体、以及叠层体的制造方法。

附图说明

- [0039] 图1为显示本公开的叠层体的一实施方式的立体图。
- [0040] 图2为显示本公开的叠层体的其它实施方式的立体图。
- [0041] 图3为显示本公开的叠层体的一实施方式的立体图。
- [0042] 图4为显示本公开的叠层体的其它实施方式的截面图。
- [0043] 图5为显示本公开的叠层体的其它实施方式的截面图。

- [0044] 图6为显示本公开的叠层体所具备的第1树脂层的一实施方式的立体图。
- [0045] 图7为显示本公开的叠层体所具备的第1树脂层的一实施方式的立体图。
- [0046] 图8为显示本公开的叠层体的其它实施方式的立体图。
- [0047] 图9为第1构件与第2构件经由包含固体接合剂的粘接层而被接合了的状态的概略截面图。

具体实施方式

[0048] 以下,对用于实施本公开的方式详细地说明。但是,本公开不限于以下实施方式。在以下实施方式中,其构成要素(也包含要素步骤等)除了特别明确说明了的情况以外不是必须的。关于数值及其范围也同样,不限制本公开。

[0049] 在本公开中“工序”的术语中,除了从其它工序独立了的工序以外,在不能与其它工序明确区别的情况下只要达到该工序的目的,也包含该工序。在本公开中在使用“~”而表示的数值范围中,“~”的前后所记载的数值分别作为最小值和最大值而被包含。

[0050] 在本公开中被阶段性地记载的数值范围中,在一个数值范围中被记载的上限值或下限值可以置换为其它阶段性的记载的数值范围的上限值或下限值。

[0051] 此外,在本公开中所记载的数值范围中,该数值范围的上限值或下限值可以置换为实施例所示的值。

[0052] 在本公开中各成分可以包含多种符合的物质。在组合物中存在多种相当于各成分的物质,各成分的含有率或含量只要没有特别指明,就是指在组合物中存在的该多种物质的合计的含有率或含量。

[0053] 在本公开中在“层”的术语中,在对该层存在的区域进行了观察时,除了被形成在该区域的整体的情况以外,还包含仅被形成在该区域的一部分的情况。

[0054] 在本公开中在参照附图说明实施方式的情况下,该实施方式的构成不限于附图所示的构成。此外,各图中的构件的大小为概念性的,构件间的大小的相对关系不限于此。

[0055] 在本公开中,所谓接合,是指将物与物连接,粘接和熔接为其下位概念。所谓粘接,是指经由带、粘接剂等有机材料(固化性树脂、热塑性树脂等),使2个被粘材料(要粘接的物质)为接合状态。所谓熔接,是指将热塑性树脂等的表面通过热进行熔融,利用在进行接触加压和冷却的过程中发生的、由分子扩散引起的缠绕和结晶化、或在熔融时发生的与基材的分子间相互作用进行接合。

[0056] [叠层体]

[0057] 本公开的叠层体依次具备第1树脂层、第1导电层、绝缘层、和第2导电层,第1树脂层具有收容部,第1导电层被配置在第1树脂层的收容部内。

[0058] 本公开的叠层体的热耐久性优异。发挥上述效果的理由不清楚,但如下推测。

[0059] 本公开的叠层体能够通过不是通过嵌入成型,而是通过单独制作各层进行叠层来制造。因此,对于通过嵌入成型而制造出的叠层体,第1导电层埋没于第1树脂层,完全密合,与此相对,对于本公开的叠层体,由于第1树脂层具有收容部,因此与第1导电层之间未完全密合,能够缓和在加热时产生的内部应力。由此推测,可以抑制裂缝的产生、和导电层和树脂层的变形,热耐久性提高。

[0060] 此外,第1树脂层具有收容部,但其难以通过嵌入成型而形成,推测由此热耐久性提高。

[0061] 本公开的叠层体可以在第2导电层的与绝缘层相反侧进一步具备第2树脂层。

[0062] 本公开的叠层体在第1导电层与绝缘层之间、和绝缘层与第2导电层之间的至少1者具备粘接层,可以进一步任意选择地在第1树脂层与第1导电层之间、和第2导电层与第2树脂层之间的至少1者具备粘接层。

[0063] 从热耐久性的观点考虑,粘接层优选被配置在第1树脂层的收容部内。

[0064] 本公开的叠层体可以在第1导电层的第1树脂层侧表面或第2导电层的第2树脂层侧表面具备散热板。

[0065] 从热耐久性的观点考虑,散热板优选被配置在第1树脂层的收容部内。

[0066] (第1树脂层)

[0067] 第1树脂层具有收容部,第1导电层被配置在收容部内,

[0068] 从热耐久性的观点考虑,收容部优选包含凹状部或凹凸状部。

[0069] 所谓收容部包含凹凸状部,是指收容部包含凹状部和凸状部。凹状部可以为阶梯状。

[0070] 从热耐久性的观点考虑,第1导电层、绝缘层和第2导电层优选被配置在第1树脂层的收容部内。

[0071] 在收容部包含阶梯状的凹状部的情况下,第1导电层、绝缘层和第2导电层可以被收容在同一阶层,可以被收容在不同阶层。

[0072] 在图3~图5中,对第1导电层、与绝缘层和第2导电层被收容在阶梯状凹状部的不同阶层的方案进行显示。

[0073] 此外,第1树脂层可以具有1个收容部,也可以具有2个以上。

[0074] 图6所示的第1树脂层100具有多个收容部101。

[0075] 图6所示的第1树脂层100所具有的各收容部101包含凹状部102A和凸状部102B。

[0076] 在第1树脂层具有多个收容部的情况下,可以如图7所示那样在一部分收容部配置第1导电层105,也可以在全部收容部配置第1导电层105。

[0077] 此外,绝缘层和第2导电层不需要被叠层在被配置在全部收容部的第1导电层,可以如图8所示那样,被叠层在被配置在收容部的全部第1导电层。另外,在图8中,绝缘层未图示,将第2导电层以符号106表示。

[0078] 第1树脂层所具有的收容部的面积优选为第1导电层的面积以上。第1树脂层所具有的收容部的面积相对于第1导电层的面积之比(第1树脂层所具有的收容部的面积/第1导电层的面积)优选为1.01以上。由此,可以容易地进行第1导电层向第1树脂层的收容部的配置。此外,面积比优选为2.00以下。由此,具有可以抑制发生第1导电层在第1树脂层上的位置错位的倾向。

[0079] 在第1树脂层具有收容部的情况下,其大小优选根据第1导电层的大小、叠层体的用途等来适当变更。收容部的面积可以为例如,1cm²~1000cm²。

[0080] 收容部的深度优选为至少第1导电层的厚度以上,更优选为第1导电层、绝缘层和第2导电层的厚度的合计以上,进一步优选为第1导电层、绝缘层、第2导电层和粘接层的厚度的合计以上,特别优选为第1导电层、绝缘层、第2导电层、粘接层和散热板的厚度的合计

以上。收容部的厚度可以为例如,0.1mm~100mm。

[0081] 另外,收容部的深度可以小于第1导电层、绝缘层、第2导电层、粘接层和散热板的厚度的合计。

[0082] 从热耐久性的观点考虑,第1树脂层优选为包含热固性树脂的树脂组合物的固化物。

[0083] 热固性树脂的种类没有特别限定,只要是1分子中具有1个以上可以利用于采用加热的交联反应的官能团的树脂即可。作为官能团,可举出环氧基、丙烯酰基、甲基丙烯酰基、羟基、乙烯基、羧基、氨基、马来酰亚胺基、酸酐基、硫醇基、亚硫酰基、酰胺基、酰亚胺基等。

[0084] 作为热固性树脂,可举出酚醛树脂、不饱和酰亚胺树脂、氰酸酯树脂、异氰酸酯树脂、苯并噁嗪树脂、氧杂环丁烷树脂、氨基树脂、不饱和聚酯树脂、丙烯酸系树脂、二环戊二烯树脂、有机硅树脂、三嗪树脂、三聚氰胺树脂、间苯二酚树脂、环氧树脂等。上述中,从热耐久性的观点考虑,优选包含选自不饱和聚酯、和酚醛树脂中的1个以上,更优选包含不饱和聚酯。

[0085] 树脂组合物可以单独包含1种热固性树脂,也可以包含2种以上。

[0086] 不饱和聚酯可以通过使多元醇、与不饱和多元酸、饱和多元酸等进行缩聚(酯化)来获得。

[0087] 多元醇没有特别限定,可以使用以往公知的物质。作为多元醇,可举出乙二醇、丙二醇、丁二醇、二甘醇、双丙甘醇、三甘醇、戊二醇、己二醇、新戊二醇、氢化双酚A、双酚A、甘油等。它们可以单独使用1种,或可以组合使用2种以上。

[0088] 作为不饱和多元酸,没有特别限定,可以使用以往公知的物质。作为不饱和多元酸,可举出马来酸酐、富马酸、柠康酸、衣康酸等。它们可以单独或组合使用多个。

[0089] 作为饱和多元酸,没有特别限定,可以使用以往公知的物质。作为饱和多元酸,可举出邻苯二甲酸酐、间苯二甲酸、对苯二甲酸、氯桥酸、琥珀酸、己二酸、癸二酸、四氯邻苯二甲酸酐、四溴邻苯二甲酸酐、内次甲基四氢邻苯二甲酸酐等。它们可以单独使用1种,或也可以组合使用2种以上。

[0090] 不饱和聚酯可以使用使用上述原料通过公知的方法而合成出的物质,也可以使用市售的物质。

[0091] 不饱和聚酯可以通过在氮气等非活性气体气氛下,在140°C~230°C的温度下,使多元醇、与不饱和多元酸、饱和多元酸等进行缩聚来获得。缩聚反应可以在加压条件下或减压条件下进行。

[0092] 在缩聚反应中,可以根据需要使用交联剂、催化剂。

[0093] 作为交联剂,可举出苯乙烯单体、邻苯二甲酸二烯丙酯单体、邻苯二甲酸二烯丙酯预聚物、甲基丙烯酸甲酯、异氰脲酸三烯丙酯等。它们可以单独或组合使用多个。

[0094] 作为催化剂,可举出乙酸锰、氧化二丁锡、草酸亚锡、乙酸锌、乙酸钴等。它们可以单独使用1种,或可以组合使用2种以上。

[0095] 从热耐久性的观点考虑,热固性树脂的数均分子量优选为1,000~10,000,更优选为1,500~5,000。

[0096] 在本公开中,数均分子量为通过凝胶渗透色谱(GPC)法而测定的聚苯乙烯换算的重均分子量。

[0097] 从热耐久性的观点考虑,相对于树脂组合物的总质量的、热固性树脂的含有率优选为10质量%~60质量%,更优选为20质量%~50质量%,进一步优选为20质量%~40质量%。

[0098] 树脂组合物可以包含热塑性树脂、弹性体等。

[0099] 作为热塑性树脂的具体例,可举出聚酰亚胺树脂、聚酰胺酰亚胺树脂、聚酰胺树脂、聚醚酰亚胺树脂、聚苯并咪唑树脂、聚苯并咪唑树脂、聚苯乙烯树脂、丙烯腈/丁二烯/苯乙烯共聚树脂、丙烯腈/苯乙烯共聚树脂、聚乙烯树脂、聚丙烯树脂、聚氯乙烯树脂、聚偏1,1-二氯乙烯树脂、聚碳酸酯树脂、(甲基)丙烯酸系树脂、聚酯树脂、聚缩醛树脂、聚苯硫醚树脂(PPS)等。

[0100] 作为弹性体的具体例,可举出硅橡胶、丁苯橡胶(SBR)、腈橡胶(NBR)、氨基甲酸酯橡胶等。

[0101] 树脂组合物可以包含固化剂、固化促进剂、填充剂、脱模剂、阻燃剂、着色剂、增塑剂、硅烷偶联剂、防锈剂、铜缓蚀剂、还原剂、抗氧化剂、增粘树脂、紫外线吸收剂、消泡剂、流平调节剂、溶剂等各种添加剂。

[0102] 第1树脂层可以具有将第1导电层、绝缘层和第2导电层固定的固定部。通过第1树脂层具有固定部,从而具有可以抑制发生第1导电层、绝缘层和第2导电层在第1树脂层上的位置错位的倾向。

[0103] 第1树脂层和第2树脂层可以具有插入部和开口部中的任一者。

[0104] 在第1树脂层具有插入部和开口部中的任一者,第2树脂层至少具有另一者的情况下,通过将插入部向开口部插入,从而可以进行第1树脂层和第2树脂层的嵌合。

[0105] (第1导电层和第2导电层)

[0106] 第1导电层和第2导电层可以包含金属和金属氧化物中的至少一者。

[0107] 作为金属,可举出银、金、铜、钯、铂、钛、铬、镍、铝、锆、钨、钒、铈、铌、它们的合金等。

[0108] 作为金属氧化物,可举出氧化锌(ZnO)、氧化锡(SnO_2)、氧化铟锡(ITO)、氧化铝(Al_2O_3)、氧化钛(TiO_2)等。

[0109] 从导电性的观点考虑,第1导电层和第2导电层的平均厚度可以根据用途等来适当设定。如果考虑对第1树脂层所具有的凹状部或凹凸状部的配置容易性,则优选为0.1mm~10mm。

[0110] 在本公开中,关于平均厚度,通过测定仪在层的2点测定厚度,设为它们的平均值。

[0111] 第1导电层和第2导电层所包含的材料、层的平均厚度等可以相同,也可以不同。

[0112] (绝缘层)

[0113] 绝缘层优选为包含绝缘性树脂的树脂组合物的固化物。

[0114] 作为绝缘性树脂,可举出热塑性树脂、热固性树脂、光固化性树脂等固化性树脂等。

[0115] 作为光固化性树脂,只要是在1分子中具有1个以上通过光而发生交联反应的不饱和键的树脂即可。作为光固化性树脂的具体例,可举出例如,丙烯酸系树脂、氨基甲酸酯树脂、聚酯树脂、聚醚树脂、环氧树脂、聚丁二烯树脂、聚酰亚胺树脂、聚酰胺树脂、有机硅树脂、氟树脂等。

[0116] 由于前面已经记述了热塑性树脂和热固性树脂,因此这里省略记载。

[0117] 树脂组合物可以包含固化剂、固化促进剂、光聚合引发剂、填充剂、脱模剂、阻燃剂、着色剂、增塑剂、硅烷偶联剂、防锈剂、铜缓蚀剂、还原剂、抗氧化剂、增粘树脂、紫外线吸收剂、消泡剂、流平调节剂、溶剂等各种添加剂。

[0118] 从绝缘性的观点考虑,绝缘层的平均厚度可以根据用途等来适当设定。如果考虑对第1树脂层所具有的凹状部或凹凸状部的配置容易性,则优选为0.01mm~10mm。

[0119] (第2树脂层)

[0120] 本公开的叠层体可以在第2导电层的与绝缘层相反侧进一步具备第2树脂层。通过具备第2树脂层,从而可以抑制第1导电层、绝缘层和第2导电层在第1树脂层上的位置错位。

[0121] 第2树脂层可以具有凹状部、凸状部或凹凸状部。被设置在第2树脂层的凹状部、凸状部或凹凸状部可以与第2导电层的形状对应地设置。通过第2树脂层的凹状部、与第2导电层的形状对应,从而可以通过第2树脂层将第2导电层的位置固定。

[0122] 例如,在第1导电层、绝缘层和第2导电层的厚度的合计大于第1树脂层的凹部的深度的情况下,可以将与第2导电层的形状匹配的凹状部设置于第2树脂层。该情况下的第2树脂层的凹状部的面积优选为第2导电层的面积以上。

[0123] 此外,在第1导电层、绝缘层和第2导电层的厚度的合计小于第1树脂层的凹部的深度的情况下,可以在第2树脂层中在与第2导电层对应的位置设置凸状部。凸状部可以为1个也可以为2个以上的多个。

[0124] 第2树脂层优选为包含热固性树脂的树脂组合物的固化物。由于前面记述了热固性树脂和树脂组合物,因此这里省略记载。

[0125] 第2树脂层可以具有将第1导电层、绝缘层和第2导电层固定的固定部。通过第2树脂层具有固定部,从而具有可以抑制第1导电层、绝缘层和第2导电层在第1树脂层上的位置错位的倾向。

[0126] (粘接层)

[0127] 本公开的叠层体在第1导电层与绝缘层之间、绝缘层与第2导电层之间、第1树脂层与第1导电层之间、和第2导电层与第2树脂层之间的至少1者具备粘接层。

[0128] 通过调整在任一层间设置的粘接层的尺寸,从而可以将第1树脂层与第2树脂层粘接。

[0129] 粘接层可以包含绝缘体的中间层,在该情况下粘接层为接合材料、中间层、接合材料这3层从粘接性和绝缘性的观点考虑是优选的。通过包含绝缘体的中间层从而绝缘性的针孔等缺陷不易形成,可以提升绝缘性。

[0130] 作为中间层的树脂,可举出聚酰亚胺树脂、聚酰胺酰亚胺树脂、聚酰胺树脂、聚醚酰亚胺树脂、聚苯并咪唑树脂、聚苯并咪唑树脂、聚苯乙烯树脂、丙烯腈/丁二烯/苯乙烯共聚树脂、丙烯腈/苯乙烯共聚树脂、聚乙烯树脂、聚丙烯树脂、聚氯乙烯树脂、聚偏1,1-二氯乙烯树脂、聚碳酸酯树脂、(甲基)丙烯酸系树脂、聚酯树脂、聚缩醛树脂、聚苯硫醚树脂(PPS)酚醛树脂等。

[0131] 粘接层包含固体接合剂。由此,在第1树脂层的表面叠层第1导电层、粘接层、绝缘层等时,可以抑制粘接层的厚度变化,可以抑制第1导电层与绝缘层的距离、第1导电层与第2导电层的距离、第2导电层与绝缘层的距离等变化。

[0132] (固体接合剂)

[0133] 固体接合剂以非晶性热塑性树脂作为主成分,上述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种,上述非晶性热塑性树脂的环氧当量为1,600以上,或上述非晶性热塑性树脂不包含环氧基,上述非晶性热塑性树脂的熔化热为15J/g以下。

[0134] 上述固体接合剂的所谓“固体”,是指在常温下为固体,即在23°C的无加压的状态下没有流动性。期望上述固体接合剂可以在23°C的无加压的状态下30天以上不变形而保持外形,进一步具备不变质的特性。

[0135] 上述所谓“主成分”,是指固体接合剂中的树脂成分之中含量最高的成分并且固体接合剂中的树脂成分中的含量为50质量%以上的成分。固体接合剂优选包含50质量%以上的树脂成分,更优选包含70质量%以上,进一步优选包含80质量%以上,特别优选包含90质量%以上。

[0136] 本公开中的所谓非晶性树脂,是具有熔点(T_m),但在使用了差示扫描量热计(DSC)的测定中,不具有明确的伴随熔化的吸热峰或上述吸热峰非常小的树脂。熔化热由DSC的吸热峰的面积、和热塑性树脂成分的质量算出。在无机填充剂等被包含于固体接合剂的情况下,熔化热由除无机填充剂以外的树脂成分的质量算出。

[0137] 具体而言,本公开中的所谓非晶性热塑性树脂,是指具有通过以下步骤而测定的特性的树脂。称量2~10mg试样,加入到铝制盘中,通过DSC(株式会社リガク制DSC8231)从23°C以10°C/分钟升温直到200°C以上,获得DSC曲线。接着,利用由该DSC曲线求出的熔化时的吸热峰的面积和上述称量值算出熔化热,将熔化热为15J/g以下的物质视为非晶性热塑性树脂。

[0138] 从向固体接合剂充分赋予非晶性热塑性树脂的特性方面考虑,上述非晶性热塑性树脂的含量为固体接合剂中的树脂成分之中的优选为60质量%以上,更优选为70质量%以上,进一步优选为80质量%以上,最优选为90质量%以上。

[0139] 熔化热为15J/g以下,优选为11J/g以下,更优选为7J/g以下,进一步优选为4J/g以下,熔化时的吸热峰最优选为检测限以下。

[0140] 环氧当量为1,600以上,优选为2,000以上,更优选为5,000以上,进一步优选为9,000以上,最优选为检测限以上并且实质上检测不到环氧基。

[0141] 通过使用上述固体接合剂,从而在加热时,不发生在以往的热熔粘接剂中观察到那样的急剧的粘度降低,在超过200°C的高温度区域中也未达到低粘度(0.001~100Pa·s)状态。因此该固体接合剂即使为熔融了的状态也不从叠层体流出,可以稳定地确保粘接层的厚度,可以稳定地获得高的粘接力。

[0142] 本公开中的环氧当量(包含环氧基1摩尔的上述树脂的质量)为接合前的固体接合剂所包含的热塑性环氧树脂或苯氧基树脂成分的环氧当量的值,为通过JIS K 7236:2001中规定的方法而测定的值(单位“g/eq.”)。具体而言,树脂的环氧当量使用电位滴定装置,使用环己酮作为溶剂,将溴化四乙基铵乙酸溶液加入到树脂中,使用0.1mol/L高氯酸-乙酸溶液进行测定。关于溶剂稀释品(树脂清漆),基于不挥发成分而以作为固体成分换算值的数值的形式算出。2种以上树脂的混合物的环氧当量也可以由各个树脂的含量和环氧当量算出。

[0143] 作为固体接合剂的主成分的非晶性热塑性树脂的熔点优选为50°C~400°C,更优

选为60°C ~ 350°C,进一步优选为70°C ~ 300°C。通过熔点为50°C ~ 400°C的范围,从而上述固体接合剂通过加热而效率好地变形和熔融而在接合面有效地润湿扩展,因此可以获得高的粘接力。在本公开中,所谓非晶性热塑性树脂的熔点,是指实质上从固体软化而带热塑性,能够熔融和粘接的温度。

[0144] 对于以往的包含热固性的粘接剂的接合体,难以将接合体拆卸,难以将构成接合体的异种材料分开再循环(即,再循环性差)。此外,在使用了热固性的粘接剂的情况下,在接合体的制造工序中在具有接合位置的错位等时,或在被粘物具有缺陷而需要交换时,难以重贴(即,修复性差),缺乏便利性。另一方面,上述固体接合剂可以通过热而软化和熔融,可以容易地将2个被粘物分离,因此再循环性优异。此外,上述固体接合剂由于为热塑性,因此可以可逆地反复软化和熔融与固化(固体化),修复性也优异。

[0145] 《热塑性环氧树脂》

[0146] 热塑性环氧树脂优选为(a) 2官能环氧树脂单体或低聚物与(b) 具有选自酚性羟基、羧基、巯基、异氰酸酯基和氰酸酯基中的相同或不同的2个官能团的2官能性化合物的聚合物。通过使用这样的化合物,从而形成直链状的聚合物的聚合反应优先进行,能够形成具有所希望的特性的热塑性环氧树脂。

[0147] 上述所谓(a) 2官能环氧树脂单体或低聚物,是指在分子内具有2个环氧基的环氧树脂单体或低聚物。作为上述(a) 2官能环氧树脂单体或低聚物,可举出例如,双酚A型环氧树脂、双酚F型环氧树脂、2官能的苯酚酚醛清漆型环氧树脂、双酚AD型环氧树脂、联苯型环氧树脂、2官能的萘型环氧树脂、2官能的脂环式环氧树脂、2官能的缩水甘油酯型环氧树脂(例如邻苯二甲酸二缩水甘油酯、四氢邻苯二甲酸二缩水甘油酯、二聚酸二缩水甘油酯等)、2官能的缩水甘油基胺型环氧树脂(例如二缩水甘油基苯胺、二缩水甘油基甲苯胺等)、2官能的杂环式环氧树脂、2官能的二芳基砜型环氧树脂、氢醌型环氧树脂(例如氢醌二缩水甘油基醚、2,5-二-叔丁基氢醌二缩水甘油基醚、间苯二酚二缩水甘油基醚等)、2官能的亚烷基缩水甘油基醚系化合物(例如丁二醇二缩水甘油基醚、丁烯二醇二缩水甘油基醚、丁炔二醇二缩水甘油基醚等)、2官能的含有缩水甘油基的乙内酰脲化合物(例如1,3-二缩水甘油基-5,5-二烷基乙内酰脲、1-缩水甘油基-3-(环氧丙氧基烷基)-5,5-二烷基乙内酰脲等)、2官能的含有缩水甘油基的硅氧烷(例如1,3-双(3-环氧丙氧基丙基)-1,1,3,3-四甲基二硅氧烷、 α,β -双(3-环氧丙氧基丙基)聚二甲基硅氧烷等)和它们的改性物。它们之中,双酚A型环氧树脂、双酚F型环氧树脂、双酚S型环氧树脂、和联苯型环氧树脂从反应性和操作性方面考虑是优选的。

[0148] 作为上述(b)的具有酚羟基的2官能性化合物,可举出例如儿茶酚、间苯二酚、氢醌等具有1个苯环的一核体芳香族二羟基化合物、双(4-羟基苯基)丙烷(双酚A)、双(4-羟基苯基)甲烷(双酚F)、双(4-羟基苯基)乙烷(双酚AD)等双酚化合物、二羟基萘等具有稠环的化合物、二烯丙基间苯二酚、二烯丙基双酚A、三烯丙基二羟基联苯等导入了烯丙基的2官能酚化合物、和二丁基双酚A。

[0149] 作为上述(b)的具有羧基的2官能性化合物,可举出例如,己二酸、琥珀酸、丙二酸、环己烷二甲酸、邻苯二甲酸、间苯二甲酸、和对苯二甲酸。

[0150] 作为上述(b)的具有巯基的2官能性化合物,可举出例如,乙二醇双巯基乙酸酯、和乙二醇双巯基丙酸酯。

[0151] 作为上述 (b) 的具有异氰酸酯基的2官能性化合物,可举出例如,二苯基甲烷二异氰酸酯(MDI)、异佛尔酮二异氰酸酯(IPDI)、六亚甲基二异氰酸酯(HMDI)、和甲苯二异氰酸酯(TDI)。

[0152] 作为上述 (b) 的具有氰酸酯基的2官能性化合物,可举出例如,2,2-双(4-氰酸酯基苯基)丙烷、1,1-双(4-氰酸酯基苯基)乙烷、和双(4-氰酸酯基苯基)甲烷。

[0153] 在上述 (b) 中具有酚羟基的2官能性化合物可以形成具有适合的特性的热塑性的聚合物因此是优选的,具有2个酚性羟基,具有双酚结构或联苯结构的2官能性化合物从耐热性和粘接性的观点考虑是优选的,双酚A、双酚F和双酚S从耐热性和成本的观点考虑是优选的。

[0154] 在上述 (a) 为双酚A型环氧树脂、双酚F型环氧树脂、双酚S型环氧树脂、或联苯型环氧树脂,上述 (b) 为双酚A、双酚F或双酚S的情况下,通过上述 (a) 与 (b) 的聚合而获得的聚合物具有:具有对亚苯基结构和醚键作为主骨架,它们通过亚烷基而被连接了的主链;以及与通过加聚而生成了的羟基被配置在侧链的结构。通过起因于具有对亚苯基结构和醚键的主骨架的直链状的结构,可以提高聚合后的聚合物的机械强度,并且通过被配置在侧链的羟基,可以使对基材的密合性提高。其结果,可以在维持操作性的同时,实现与热固性树脂同等水平的高的粘接强度。进一步,通过热进行软化和熔融从而能够进行再循环和修复,可以改善作为热固性树脂中的问题的再循环性和修复性。

[0155] 《苯氧基树脂》

[0156] 苯氧基树脂为由双酚化合物、和表氯醇合成的多羟基聚醚,具有热塑性。作为苯氧基树脂的制造方法,已知采用二元酚化合物与表氯醇的直接反应的方法、和采用二元酚化合物的二缩水甘油基醚与二元酚化合物的加聚反应的方法,苯氧基树脂可以为通过任一制法而获得的物质。在二元酚化合物与表氯醇的直接反应的情况下,作为二元酚化合物,可举出例如,双酚A、双酚F、双酚S、联苯酚、亚联苯基二醇、二苯基茆等酚化合物。它们之中,从成本、粘接性、粘度和耐热性的观点考虑,优选为双酚A、双酚F、和双酚S。除了二元酚化合物以外,乙二醇、丙二醇、二甘醇等脂肪族二醇可以被包含于上述直接反应。它们可以单独使用,也可以并用2种以上。苯氧基树脂具有与环氧树脂类似的化学结构,具有以对亚苯基结构和醚键作为主骨架且它们被连接了的主链、和羟基被配置在侧链的结构。

[0157] 《热塑性环氧树脂和苯氧基树脂》

[0158] 上述热塑性环氧树脂和苯氧基树脂的重均分子量以由GPC(凝胶渗透色谱)测定的聚苯乙烯换算的值计优选为10,000~500,000,更优选为18,000~300,000,进一步优选为20,000~200,000。重均分子量为由通过GPC而检测到的溶出峰位置算出的标准聚苯乙烯换算值。如果重均分子量为上述范围则热塑性与耐热性的平衡良好,因此可以效率好地通过熔融而形成接合体,也可以提高接合体的耐热性。如果重均分子量为10,000以上则耐热性优异,如果为500,000以下则熔融时的粘度低,粘接性变高。

[0159] 《固体接合剂的制造方法》

[0160] 固体接合剂的制造方法没有特别限定,例如,可以通过将2官能环氧化合物的单体或低聚物加热使其聚合而获得。为了在聚合时使粘度减少而易于搅拌,可以加入溶剂。在加入溶剂的情况下需要将其除去,可以通过在脱模膜等上进行干燥或聚合或这两者而获得固体接合剂。

[0161] 根据需要,可以在不阻碍本发明的效果的范围内,在固体接合剂中混配其它添加剂。相对于非晶性热塑性树脂的总量的添加剂的混配量优选为50体积%以下,更优选为30体积%以下,进一步优选为20体积%以下,最优选为10体积%以下。在本公开中所谓添加剂的体积%,表示以非晶性热塑性树脂的总量的体积作为基准的、2官能环氧化合物的单体或低聚物的聚合前所含有的添加剂的体积比,添加剂的体积可以将被含有的添加剂的质量除以添加剂的真比重而求出。

[0162] 作为上述添加剂,可举出例如,粘度调节剂、无机填料、有机填料(树脂粉体)、消泡剂、硅烷偶联剂等偶联剂、和颜料。这些添加剂可以单独使用,也可以组合使用2种以上。作为粘度调节剂,可举出例如,反应性稀释剂。作为无机填料,可举出例如,球状熔融二氧化硅、铁等金属的金属粉、硅砂、滑石、碳酸钙、云母、酸性白土、硅藻土、高岭土、石英、氧化钛、二氧化硅、酚醛树脂微球、和玻璃球。

[0163] 这样操作而获得的固体接合剂由于未反应的单体或末端环氧基含量少,或实质上不包含未反应的单体或末端环氧基,因此储存稳定性优异,也能够进行常温下的长期保存。

[0164] 熔融前的固体接合剂的形态没有特别限定,优选具有选自膜、棒、颗粒和粉体中的任一形状。固体接合剂的外形的至少1边优选为5mm以下,更优选为3mm以下,进一步优选为1mm以下,特别优选为0.5mm以下,最优选为0.3mm以下。通过将外形的至少1边为5mm以下的固体接合剂夹在第1构件与第2构件之间,进行加热和加压,从而固体接合剂效率好地在粘接面扩展,因此可以获得高的粘接力。

[0165] 熔融前的固体接合剂更优选具有膜形状。膜形状的固体接合剂可以在将被接合的构件彼此遍及接合面整体以规定的间隔确实地保持的同时,将这些金属构件接合。因此,膜形状的固体接合剂从叠层体的尺寸稳定性的观点考虑是特别有利的。膜形状的固体接合剂的厚度优选为 $10\mu\text{m}$ ~5mm,更优选为 $20\mu\text{m}$ ~3mm,进一步优选为 $30\mu\text{m}$ ~0.5mm。通过使膜形状的固体接合剂的厚度为 $10\mu\text{m}$ 以上,从而可以更确实地防止第1构件与第2构件之间的电蚀,并且可以确保粘接力。通过使膜形状的固体接合剂的厚度为5mm以下,从而可以提高接合面的剪切方向的粘接力。

[0166] 固体接合剂可以在不阻碍粘接力 and 耐热性的范围具有粘性。在该情况下,可以在叠层体准备工序中,将上述固体接合剂对基材临时固定。

[0167] 从粘接性的观点考虑,粘接层的平均厚度优选为 $1\mu\text{m}$ ~5000 μm ,更优选为 $20\mu\text{m}$ ~1000 μm ,进一步优选为 $50\mu\text{m}$ ~800 μm 。

[0168] (散热板)

[0169] 本公开的叠层体可以在第1导电层的第1树脂层侧表面或第2导电层的第2树脂层侧表面具备散热板。

[0170] 作为散热板,可以使用以往公知的物质,可以粘接元件等。

[0171] (用途)

[0172] 本公开的叠层体可以适合使用于功率模块(PM)的制作。

[0173] 本公开的叠层体的用途不限于PM用途,可以使用于其它电装系部件、控制系部件、驱动系部件、弱电关系、家电、化妆部件等。

[0174] 以下,参照图1~图6说明本公开的叠层体等的一实施方式。另外,公开的叠层体不限于图1~图6所示的形态。

[0175] 图1为显示本公开的叠层体的一实施方式的立体图,图2为显示本公开的叠层体的其它实施方式的立体图。

[0176] 关于图1和图2,省略了层间的粘接层的显示。

[0177] 图1所示的叠层体10依次具备第1树脂层11、第1导电层12、绝缘层13、第2导电层14、和第2树脂层16。

[0178] 图2所示的叠层体20依次具备第1树脂层21、第1导电层22、绝缘层23、第2导电层24、和第2树脂层26。

[0179] 如图1和图2所示那样,第2树脂层可以具有开口。由此,可以在第2导电层等的表面配置散热板等。开口的形状没有特别限定,优选根据用途来适当调整。

[0180] 如图1和图2所示那样,第1导电层和第2导电层可以从第1树脂层和第2树脂层的外周向外突出。由此,可以与配线等别的构件连接。

[0181] 图3为显示本公开的叠层体的一实施方式的截面图。

[0182] 图3所示的叠层体30具备第1树脂层31、粘接层35、第1导电层32、粘接层35、绝缘层33、粘接层35、第2导电层34、粘接层35、和第2树脂层36。

[0183] 如图3所示那样,第1树脂层31具有包含阶梯状的凹状部的收容部,在收容部内配置粘接层35、第1导电层32、粘接层35、绝缘层33、粘接层35、第2导电层34和粘接层35。

[0184] 在图3中,第1导电层、与绝缘层和第2导电层被收容在阶梯状的凹状部的不同阶层。由此,可以提高热耐久性。

[0185] 在图3所示的叠层体30中,第1树脂层31与第2树脂层36通过粘接层35而被粘接。

[0186] 图4为显示本公开的叠层体的其它实施方式的截面图。

[0187] 图4所示的叠层体40具备第1树脂层41、粘接层45、第1导电层42、粘接层45、绝缘层43、粘接层45、第2导电层44、粘接层45、和第2树脂层46。

[0188] 如图4所示那样,第1树脂层41具有包含阶梯状的凹状部的收容部,在收容部内配置粘接层45、第1导电层42、粘接层45、绝缘层43、粘接层45、第2导电层44和粘接层45。

[0189] 在图4中,第1导电层、与绝缘层和第2导电层被收容在阶梯状的凹状部的不同阶层。由此,可以提高热耐久性。

[0190] 此外,如图4所示那样,第1树脂层41具有插入部47,被插入到第2树脂层46所具有的开口部(未图示)。

[0191] 此外,在图4所示的叠层体40中,第1树脂层41与第2树脂层46通过粘接层45而被粘接。

[0192] 图5为显示本公开的叠层体的其它实施方式的截面图。

[0193] 图5所示的叠层体50具备第1树脂层51、散热板57、粘接层55、第1导电层52、粘接层55、绝缘层53、粘接层55、第2导电层54、粘接层55、和第2树脂层56。

[0194] 如图5所示那样,第1树脂层51具有包含阶梯状的凹状部的收容部,在收容部内配置散热板57、粘接层55、第1导电层52、粘接层55、绝缘层53、粘接层55、第2导电层54和粘接层55。

[0195] 在图5中,第1导电层、与绝缘层和第2导电层被收容在阶梯状的凹状部的不同阶层。由此,可以提高热耐久性。

[0196] 此外,在图5所示的叠层体50中,第1树脂层51与第2树脂层56通过粘接层55而被粘

接。

[0197] 图6为显示本公开的叠层体所具备的第1树脂层的一实施方式的立体图。

[0198] 如图6所示那样,第1树脂层100具有多个收容部101,该收容部101包含凹状部102A和凸状部102B。

[0199] 此外,第1树脂层100具备固定部103、开口部104。

[0200] 如图6所示那样,第1树脂层100可以在收容部101间具有开口。由此,可以对被配置在第1树脂层100的第1树脂层等,连接配线等别的构件。

[0201] 如图3~图6所示那样,粘接层、第1导电层、绝缘层和第2导电层的外周的大小可以不同。在粘接层、第1导电层、绝缘层和第2导电层的外周的大小不同的情况下,第1树脂层所具有的凹状部的内周的大小优选为粘接层、第1导电层、绝缘层和第2导电层中具有最大的外周的层的外周的大小以上。

[0202] [叠层体的制造方法]

[0203] 本公开的叠层体的制造方法包含下述工序:

[0204] 准备在至少一个表面具有收容部的第1树脂层的准备工序;以及

[0205] 在上述第1树脂层的表面叠层第1导电层、绝缘层和第2导电层的叠层工序,

[0206] 在上述叠层工序中,在上述第1树脂层的上述收容部至少配置上述第1导电层。

[0207] 根据本公开的叠层体的制造方法,可以制造热耐久性优异的叠层体。发挥上述效果的理由不清楚,但如下推测。

[0208] 本公开的叠层体的制造方法不是通过嵌入成型,而是通过单独制作各层进行叠层来制造。因此,对于通过嵌入成型而制造出的叠层体,第1导电层埋没于第1树脂层,完全密合,与此相对,对于通过本公开的制造方法而制造出的叠层体,在第1树脂层与第1导电层之间不完全密合,能够缓和在加热时产生的内部应力。由此推测,可以抑制裂缝的产生、和导电层和树脂层的变形,热耐久性提高。

[0209] 本公开的叠层体的制造方法可以包含在第2导电层的与绝缘层相反侧进一步叠层第2树脂层的第2叠层工序。

[0210] (准备工序)

[0211] 由于前面记述了第1树脂层,因此这里省略记载。

[0212] 第1树脂层的制作方法没有特别限定,可以通过嵌入成型等而制作。

[0213] (叠层工序)

[0214] 本公开的叠层体的制造方法包含在第1树脂层的表面叠层第1导电层、绝缘层和第2导电层的叠层工序。

[0215] 在叠层工序中,在第1树脂层的收容部至少配置第1导电层。优选在树脂层的收容部配置第1绝缘层和第2导电层。

[0216] 第1导电层、绝缘层和第2导电层对第1树脂层表面的叠层可以在各层间配置粘接层进行加热而进行。

[0217] 在各层间配置粘接层的情况下,优选在叠层工序中,与第1导电层、绝缘层和第2导电层一起将粘接层配置在第1树脂层的收容部。

[0218] 可以在叠层工序中,在第1导电层的与绝缘层相反侧或第2导电层的与绝缘层相反侧配置散热板。

[0219] 在配置散热板的情况下,优选在叠层工序中,与第1导电层、绝缘层和第2导电层一起将散热板配置在第1树脂层的收容部。

[0220] 由于前面记述了第1导电层、第2导电层、绝缘层、粘接层和散热板,因此这里省略记载。

[0221] 第1导电层、第2导电层、绝缘层、粘接层和散热板可以使用通过以往公知的方法而制作出的物质,也可以使用市售品。

[0222] (第2叠层工序)

[0223] 由于前面记述了第2树脂层,因此这里省略记载。

[0224] 第2树脂层的制作方法没有特别限定,可以通过嵌入成型等而制作。

[0225] 第2树脂层的叠层可以通过在第2树脂层与第2导电层之间配置粘接层进行加热而进行。

[0226] 此外,可以通过粘接层将第1树脂层与第2树脂层粘接。

[0227] 在第1树脂层具有插入部和开口部中的任一者,第2树脂层至少具有另一者的情况下,通过将插入部向开口部插入,从而可以进行第1树脂层和第2树脂层的嵌合。

[0228] 更详细地说明使用了固体接合剂的叠层工序和第2叠层工序。

[0229] 〈接合前工序〉

[0230] 在接合前工序中,形成依次配置了第1构件、以非晶性热塑性树脂作为主成分的固体接合剂、和第2构件的状态的叠层体,上述非晶性热塑性树脂为选自热塑性环氧树脂和苯氧基树脂中的至少一种。在上述叠层体中,第1构件与固体接合剂、和固体接合剂与第2构件都彼此不接合,为各自独立的构件被重合了的状态。

[0231] 〈接合工序〉

[0232] 在接合工序中,将上述叠层体加热和加压而使上述固体接合剂熔融,然后,降低温度从而使上述固体接合剂固化,将第1构件与第2构件接合。

[0233] 上述加热和加压中的温度优选为 $100^{\circ}\text{C} \sim 400^{\circ}\text{C}$,更优选为 $120^{\circ}\text{C} \sim 350^{\circ}\text{C}$,进一步优选为 $150^{\circ}\text{C} \sim 300^{\circ}\text{C}$ 。通过在 $100^{\circ}\text{C} \sim 400^{\circ}\text{C}$ 下加热,从而上述固体接合剂效率好地变形和熔融而在接合面有效地润湿扩展,因此可以获得高的粘接力。

[0234] 上述加热和加压中的压力优选为 $0.01\text{MPa} \sim 20\text{MPa}$,更优选为 $0.1\text{MPa} \sim 10\text{MPa}$,进一步优选为 $0.2\text{MPa} \sim 5\text{MPa}$ 。这里的压力是指第1构件和第2构件的接合面中的平均压力。通过以 $0.01\text{MPa} \sim 20\text{MPa}$ 加压,从而上述固体接合剂效率好地变形而在接合面有效地润湿扩展,因此可以获得高的粘接力。在第1构件或第2构件的至少一者在接合面包含热塑性树脂的情况下,通过以 $0.01\text{MPa} \sim 20\text{MPa}$ 加压,从而可以使固体接合剂与该构件的热塑性树脂相容,获得高的粘接力。

[0235] 作为固体接合剂的主成分的热塑性环氧树脂和苯氧基树脂由于树脂内的凝集力低,并且具有羟基,因此与基材的相互作用强,与以往的结晶性的热熔粘接剂相比可以以高的粘接力将异种材料接合。

[0236] 第1构件与第2构件的接合利用了固体接合剂的相变(固体-液体-固体),由于不伴随化学反应,因此与以往的热固化型的环氧树脂相比可以在短时间完成接合。

[0237] 有时通过对第1构件或第2构件或两者分别进行适当的前处理从而获得高的粘接力。作为前处理,优选为将基材的表面进行洗涤的前处理或在表面形成凹凸的前处理。前处

理可以仅为1种,也可以实施2种以上。作为这些前处理的具体的方法,可以使用公知的方法。

[0238] 具体而言,在上述构件的材料为金属的情况下,优选为选自脱脂处理、UV臭氧处理、喷射处理、研磨处理、等离子体处理、和蚀刻处理中的至少1种。在上述构件的材料为树脂的情况下,优选为选自脱脂处理、UV臭氧处理、喷射处理、研磨处理、等离子体处理、和电晕放电处理中的至少1种。

[0239] 在图9所示的接合体1中,经由上述固体接合剂熔融后固体化了的粘接层2,第1构件3与第2构件4被接合一体化,第1构件3与第2构件4的接合体1显示优异的接合强度。接合强度除了在粘接层与基材之间起作用的界面相互作用的强度以外,还受粘接层的厚度、构成粘接剂的聚合物的分子量和化学结构、力学特性、粘弹性特性等大量因子影响。因此,本公开的接合体显示优异的接合强度的机理的详细不清楚,但推测构成粘接层的非晶性热塑性树脂的凝集力低,和在树脂中存在羟基,在粘接层与第1构件的界面和粘接层与第2构件的界面形成氢键、范德华力等化学键或分子间力为主要因素。然而,在接合体中,接合体的界面的状态或特性由于起因于厚度纳米级以下的极其薄的化学结构因此难以分析,通过对本公开的接合体的界面的状态或特性进行特定,从而能够与不包含本公开的固体接合剂的接合体区别地表现,在目前的技术中是不可能或不实际的。

[0240] 粘接层包含非晶性热塑性树脂的本公开的叠层体的再循环性和修复性优异,通过将接合体加热从而可以容易地分离为第1构件与第2构件,即第1(第2)导电层与绝缘层分离,将叠层体拆卸。

[0241] 实施例

[0242] 以下显示与本发明相关的实施试验例和比较试验例,但本发明不限于它们。在以下例子中,将第1构件和第2构件汇总称为接合基材。

[0243] 〈接合基材〉

[0244] 使用了以下接合基材。

[0245] 《PPS(树脂)》

[0246] 使用了将聚苯硫醚(DIC社制,FZ-1130-D5)进行注射成型(树脂温度:300°C,模温:140°C)而获得的注射成型体(纵45mm×横10mm×厚3mm)。未进行表面处理而使用。

[0247] 《铜》

[0248] 将铜(C1100(韧铜Tough Pitch Copper)的表面用甲基乙基酮擦拭而进行脱脂处理,获得了宽度18mm、长度45mm、厚度3mm的试验片。

[0249] 〈热塑性环氧树脂和苯氧基树脂的重均分子量、熔化热和环氧当量〉

[0250] 分别通过以下步骤测定了热塑性环氧树脂和苯氧基树脂的重均分子量、熔化热和环氧当量。

[0251] (重均分子量)

[0252] 将热塑性环氧树脂和苯氧基树脂溶解于四氢呋喃,使用Prominence 501(昭和サイエンス株式会社制,检测器:Shodex(注册商标)RI-501(昭和电工株式会社制)),在以下条件下测定了。

[0253] 柱:昭和电工株式会社制LF-804×2根

[0254] 柱温度:40°C

[0255] 试样:树脂的0.4质量%四氢呋喃溶液

[0256] 流量:1mL/分钟

[0257] 洗脱液:四氢呋喃

[0258] 校正法:采用标准聚苯乙烯的换算

[0259] (熔化热)

[0260] 称量2~10mg热塑性环氧树脂和苯氧基树脂,加入到铝制盘中,使用DSC(株式会社リガク制DSC8231)从23°C以10°C/分钟升温直到200°C,获得了DSC曲线。由所得的DSC曲线的熔化时的吸热峰的面积和上述称量值算出了熔化热。

[0261] (环氧当量)

[0262] 将按照JIS K 7236:2001而获得的测定值换算为作为树脂固体成分的值。在不伴随反应的单纯混合物的情况下由各自的环氧当量和含量算出。

[0263] 〈实施试验例1〉

[0264] (固体接合剂P-1)

[0265] 在具备搅拌机、回流冷却器、气体导入管、和温度计的反应装置中,加入jER(注册商标)1007(三菱ケミカル株式会社制,双酚A型环氧树脂,重均分子量约10,000)203g(1.0当量)、双酚S12.5g(1.0当量)、三苯基磷2.4g、和甲基乙基酮1,000g,一边在氮气气氛下搅拌一边升温直到100°C。通过目视而确认溶解了,冷却直到40°C而获得了固体成分约20质量%的树脂组合物。从树脂组合物除去溶剂而获得了固体。在加压机的上板和下板设置非粘着氟树脂膜(ニトフロン(注册商标)No.900UL,日东电工株式会社制),在下板的非粘着氟树脂膜上配置了上述固体后,将上述加压机加热到160°C,将上述树脂组合物加热压缩2小时而获得了固体成分100质量%的厚度100 μ m的膜状的固体接合剂(P-1)。重均分子量为约37,000。环氧当量为检测限以上。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0266] (接合体)

[0267] 作为接合体,制作出下述1种(树脂/金属)。

[0268] 《树脂/金属》

[0269] 在上述铜基材(第1构件)上配置裁切为10×15mm的大小的上述固体接合剂P-1,然后迅速地在其上配置了上述PPS基材(第2构件)。这些基材彼此的重叠设为宽度10mm、进深5mm。上述固体接合剂P-1以全部覆盖上述基材彼此的重叠区域的方式配置了。即,上述第1构件与第2构件彼此不直接接触,作为介于其间而存在上述固体接合剂的状态,准备了未接合的叠层体。

[0270] 使用高频感应熔接机(精电舍电子工业株式会社制,振动器UH-2.5K,压机JIIP30S)通过高频感应而使金属发热,通过加热和加压从而将试验片彼此接合了。加压力设为110N(压力2.2MPa),振动频率设为900kHz。振动时间设为6秒。

[0271] 通过以下步骤而制作出开放时间评价用接合体。在上述铜基材(第1构件)上配置裁切为10×15mm的大小的上述固体接合剂P-1,然后静置了3天后,在其上配置了上述PPS基材(第2构件)。这些基材彼此的重叠设为宽度10mm、进深5mm。上述固体接合剂P-1以全部覆盖上述基材彼此的重叠区域的方式配置了。即,上述第1构件与第2构件彼此不直接接触,作为介于其间而存在上述固体接合剂的状态,准备了未接合的叠层体。

[0272] 使用高频感应熔接机(精电舍电子工业株式会社制,振动器UH-2.5K,压机

JIIP30S)通过高频感应而使金属发热,通过加热和加压从而将试验片彼此接合了。加压力设为110N(压力2.2MPa),振动频率设为900kHz。振动时间设为5秒。

[0273] 〈实施试验例2〉

[0274] (固体接合剂P-2)

[0275] 在具备搅拌机、回流冷却器、气体导入管、和温度计的反应装置中,加入フェノトート(注册商标)YP-50S(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制,苯氧基树脂,重均分子量约50,000)20g、环己酮80g,一边搅拌一边升温直到60°C,通过目视而确认溶解了,冷却直到40°C而获得了固体成分20质量%的树脂组合物。从树脂组合物除去溶剂而获得了固体。在加压机的上板和下板设置非粘着氟树脂膜(ニトフロン(注册商标)No.900UL,日东电工株式会社制),在下板的非粘着氟树脂膜上配置了上述固体后,将上述加压机加热到160°C,将上述树脂组合物加热压缩2小时而获得了固体成分100质量%的厚度100 μ m的膜状的固体接合剂(P-2)。重均分子量为50,000,环氧当量为检测限以上。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0276] (接合体)

[0277] 使用了P-2作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0278] 〈实施试验例3〉

[0279] (固体接合剂P-3)

[0280] 将上述树脂组合物P-2与结晶性环氧树脂YSLV-80XY(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制)以98:2的质量比进行混合,获得了固体接合剂(P-3)。重均分子量为36,000,环氧当量为9600g/eq,熔化热为2J/g。

[0281] (接合体)

[0282] 使用了P-3作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0283] 〈实施试验例4〉

[0284] (固体接合剂P-4)

[0285] 将上述树脂组合物P-2与结晶性环氧树脂YSLV-80XY(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制)以94:6的质量比进行混合,获得了固体接合剂(P-4)。重均分子量为35,000,环氧当量为2100g/eq,熔化热为4J/g。

[0286] (接合体)

[0287] 使用了P-4作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0288] 〈实施试验例5〉

[0289] (固体接合剂P-5)

[0290] 将上述树脂组合物P-2与结晶性环氧树脂YSLV-80XY(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制)以89:11的质量比进行混合,获得了固体接合剂(P-5)。重均分子量为33,000,环氧当量为1745g/eq,熔化热为11J/g。

[0291] (接合体)

[0292] 使用了P-5作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0293] 〈实施试验例6〉

[0294] (固体接合剂P-6)

[0295] 在具备搅拌机、回流冷却器、气体导入管、和温度计的反应装置中,加入jER(注册商标)1007(三菱ケミカル株式会社株式会社制,双酚A型环氧树脂,分子量约4060)203g(1.0当量)、双酚S(分子量250)12.5g(0.6当量)、三苯基磷2.4g、和甲基乙基酮1,000g,一边在氮气气氛下搅拌一边升温直到100°C。通过目视而确认溶解了,冷却直到40°C而获得了固体成分约20质量%的树脂组合物。从树脂组合物除去溶剂而获得了固体。在加压机的上板和下板设置非粘着氟树脂膜(ニトフロン(注册商标)No.900UL,日东电工株式会社制),在下板的非粘着氟树脂膜上配置了上述固体后,将上述压机加热到160°C,将上述树脂组合物加热压缩2小时而获得了固体成分100质量%的厚度100 μ m的膜状的固体接合剂(P-6)。重均分子量为约30,000,环氧当量为检测限以上。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0296] (接合体)

[0297] 使用了P-6作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0298] 〈比较试验例1〉

[0299] (固体接合剂Q-1)

[0300] 将热固性液态环氧粘接剂E-250(コニシ株式会社制,双酚型环氧树脂与胺固化剂的双组分型)的2液进行混合,涂布于脱模膜,在100°C下使其固化1小时后,进行冷却,从脱模膜剥落而获得了厚度100 μ m的膜状的固体接合剂(Q-1)。在DSC中未检测到熔化热峰。环氧当量和重均分子量由于不溶于溶剂因此不能测定。

[0301] (接合体)

[0302] 使用了Q-1作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0303] 〈比较试验例2〉

[0304] (固体接合剂Q-2)

[0305] 使用了非晶性的聚碳酸酯膜(ユーピロン(注册商标)FE2000,三菱エンジニアリングプラスチック株式会社制,厚度100 μ m)作为固体接合体Q-2。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0306] (接合体)

[0307] 使用了Q-2作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0308] 〈比较试验例3〉

[0309] (固体接合剂Q-3)

[0310] 使用了结晶性环氧树脂YSLV-80XY(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制)作为固体接合剂(Q-3)。环氧当量为192g/eq。重均分子量为340。熔化热为70J/g。

[0311] (接合体)

[0312] 使用了Q-3作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。

[0313] 〈比较试验例4〉

[0314] (接合体)

[0315] 将热固性液态环氧粘接剂E-250(コニシ株式会社制,双酚型环氧树脂与胺固化剂的双组分型)的2液进行混合,分别涂布于与上述实施试验例1同样的第1构件和第2构件,在1分钟以内进行贴合,然后,在利用夹具进行了固定的状态下在100°C的烘箱内静置1小时从而使粘接成分固化,然后,冷却直到室温从而制作出表1所示的接合体。在将上述热固性液态环氧粘接剂E-250分别涂布于第1构件和第2构件后,在静置了3天后进行了贴合,除此以外,与上述同样地操作,也制作出开放时间评价用接合体。

[0316] (比较试验例5)

[0317] 在烧瓶中加入jER(注册商标)1007(三菱ケミカル株式会社制,双酚A型环氧树脂,重均分子量约10,000)203g(1.0当量)、双酚S12.5g(1.0当量)、三苯基磷2.4g、和甲基乙基酮1,000g,在常温下搅拌从而获得了固体成分约20质量%的液态树脂组合物。在与上述实施试验例1同样的第2构件上,棒涂涂布上述液态树脂组合物,在室温下使其干燥了30分钟后,在160°C的烘箱中静置2小时,从而将厚度100 μm 的固体的热塑性环氧树脂聚合物涂布层形成在第2构件的表面上。涂布层的重均分子量为约40,000。环氧当量为检测限以上。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0318] (接合体)

[0319] 在具有上述涂布层的第2构件上直接配置了第1构件,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体。为了进行开放时间评价,在将热塑性环氧树脂聚合物涂布层形成在第2构件的表面上后,静置3天,然后与第1构件叠层了,除此以外,与上述同样地操作,也制作出开放时间评价用接合体。

[0320] (比较试验例6)

[0321] 在具备搅拌机、回流冷却器、气体导入管、和温度计的反应装置中,加入フェノトール(注册商标)YP-50S(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社制,苯氧基树脂,重均分子量约50,000)20g、环己酮80g,一边搅拌一边升温直到60°C,通过目视而确认溶解了,冷却直到40°C而获得了固体成分20质量%的液态树脂组合物。在与上述实施试验例1同样的第2构件上,棒涂涂布上述液态树脂组合物,在70°C的烘箱中静置30分钟,从而将厚度100 μm 的苯氧基树脂涂布层形成在第2构件的表面上。上述涂布层的重均分子量为约50,000。环氧当量为检测限以上。在DSC中未检测到熔化热峰。

[0322] (接合体)

[0323] 在具有上述苯氧基树脂涂布层的第2构件上直接配置了第1构件,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体。为了进行开放时间评价,将苯氧基树脂涂布层形成在第2构件的表面上后,静置3天,然后与第1构件叠层了,除此以外,与上述同样地操作,也制作出开放时间评价用接合体。

[0324] (比较试验例7)

[0325] (接合体)

[0326] 使用了结晶性的聚酰胺系热熔粘接剂膜NT-120(日本マタイ株式会社制,厚度100 μm)作为固体接合剂,除此以外,与实施试验例1同样地操作,制作出表1所示的接合体和开放时间评价用接合体。熔化热为60J/g。

[0327] [剪切粘接力]

[0328] 将在实施试验例1~6、比较试验例1~7中获得的接合体在测定温度(23°C或80°C)下静置30分钟以上后,按照ISO19095,利用拉伸试验机(万能试验机オートグラフ“AG-X plus”(株式会社岛津制作所制);测力传感器10kN,拉伸速度10mm/分钟),进行23°C和80°C气氛下的拉伸剪切粘接强度试验,测定了接合强度。将测定结果示于表1中。

[0329] [接合工艺时间]

[0330] 接合工艺时间如下测定了。将接合剂与构成接合体的一个或两个基材最初接触时设为起点,将接合体的制作完成时设为终点,测定了从起点到终点的时间。关于加热和加压时间,将表1所示的接合体中的各个数值进行了平均。

[0331] [再循环性]

[0332] 将表1所示的接合体置于200°C的电热板而加热了1分钟后,判断是否可以以1N以下的力容易地剥离。如果可以剥离则设为良好(OK),如果不能剥离则设为不合适(NG)。

[0333] [修复性]

[0334] 在上述拉伸剪切强度试验的23°C下的试验后的接合面断裂了的各个试验片(在第1构件或第2构件或这两者的表面残存有接合固体的层)之中的第2构件上配置第1构件,与上述实施试验例1同样地制作接合体从而获得了修复接合体。与上述试验方法同样地测定上述修复接合体的23°C的剪切粘接力,如果为第1次的剪切粘接力的80%以上则设为良好(OK),如果小于80%则设为不合适(NG)。

[0335] [开放时间评价]

[0336] 使用开放时间评价用接合体,在23°C下实施了上述拉伸剪切粘接强度试验。与通过上述实施试验例和比较试验例的方法而制作出的试验片相比如果剪切粘接力为80%以上则为良好(OK),如果小于80%则设为不合适(NG)。所谓开放时间评价良好(OK),是指开放时间长,便利性优异。

[0337] 表@

[0338]

接合剂的性质		接合剂的形态	实施试验例1	实施试验例2	实施试验例3	实施试验例4	实施试验例5	实施试验例6	
		树脂主成分	膜	膜	膜	膜	膜	膜	膜
		重均分子量	热塑性环氧树脂	热塑性环氧树脂	苯氧基树脂	热塑性环氧树脂	热塑性环氧树脂	热塑性环氧树脂	热塑性环氧树脂
		熔化热[J/g]	37,000	50,000	36,000	35,000	33,000	30,000	无熔化峰
		环氧当量[g/eq]	无熔化峰	无熔化峰	2	4	11	无熔化峰	检测限以上
粘接力	23°C剪切粘接力 [MPa]	树脂/金属	19	20	18	15	14	20	
	80°C剪切粘接力 [MPa]	树脂/金属	15	20	15	13	12	10	
便利性	接合工艺时间		5秒	5秒	5秒	5秒	5秒	5秒	
	再循环性		OK	OK	OK	OK	OK	OK	
	修复性		OK	OK	OK	OK	OK	OK	
	开放时间评价		OK	OK	OK	OK	OK	OK	

[0339] (表1的续)

[0340]

接合剂的性质		接合剂的形态	比较试验例1	比较试验例2	比较试验例3	比较试验例4	比较试验例5	比较试验例6	比较试验例7
		树脂主成分	膜	膜	膜	液态	涂布层	涂布层	膜
		重均分子量	热固性环氧树脂	聚碳酸酯	环氧树脂	热固性环氧树脂	热塑性环氧树脂	苯氧基树脂	聚酰胺
		熔化热[J/g]	-	-	340	-	40,000	50,000	-
		环氧当量[g/eq]	无熔化峰	无熔化峰	70	无熔化峰	无熔化峰	无熔化峰	60
粘接力	23°C剪切粘接力 [MPa]	树脂/金属	0	3	0	5	20	21	5
	80°C剪切粘接力 [MPa]	树脂/金属	0	3	0	3	18	19	1
便利性	接合工艺时间		5秒	5秒	5秒	70分钟	150分钟	32分钟	5秒
	再循环性		NG	OK	OK	NG	OK	OK	OK
	修复性		NG	OK	OK	NG	OK	OK	OK
	开放时间评价		NG	OK	OK	NG	OK	OK	OK

[0341] 根据本发明,可以以短的接合工艺时间、并且长的开放时间制造第1导电层和/或第2导电层(第1构件)、与绝缘层(第2构件)被牢固地接合了的叠层体。

[0342] 产业可利用性

[0343] 本发明能够利用于叠层体的制造方法。

[0344] 符号的说明

[0345] 10、20、30、40、50:叠层体,11、21、31、41、51:第1树脂层,12、22、32、42、52:第1导电层,13、23、33、43、53:绝缘层,14、24、34、44、54:第2导电层,15、25、35、45、55:粘接层,16、26、36、46、56:第2树脂层,47:插入部,57:散热板,100:第1树脂层,101:收容部,102A:凹状部,102B:凸状部,103:固定部,104:开口部,105:第1导电层,106:第2导电层。

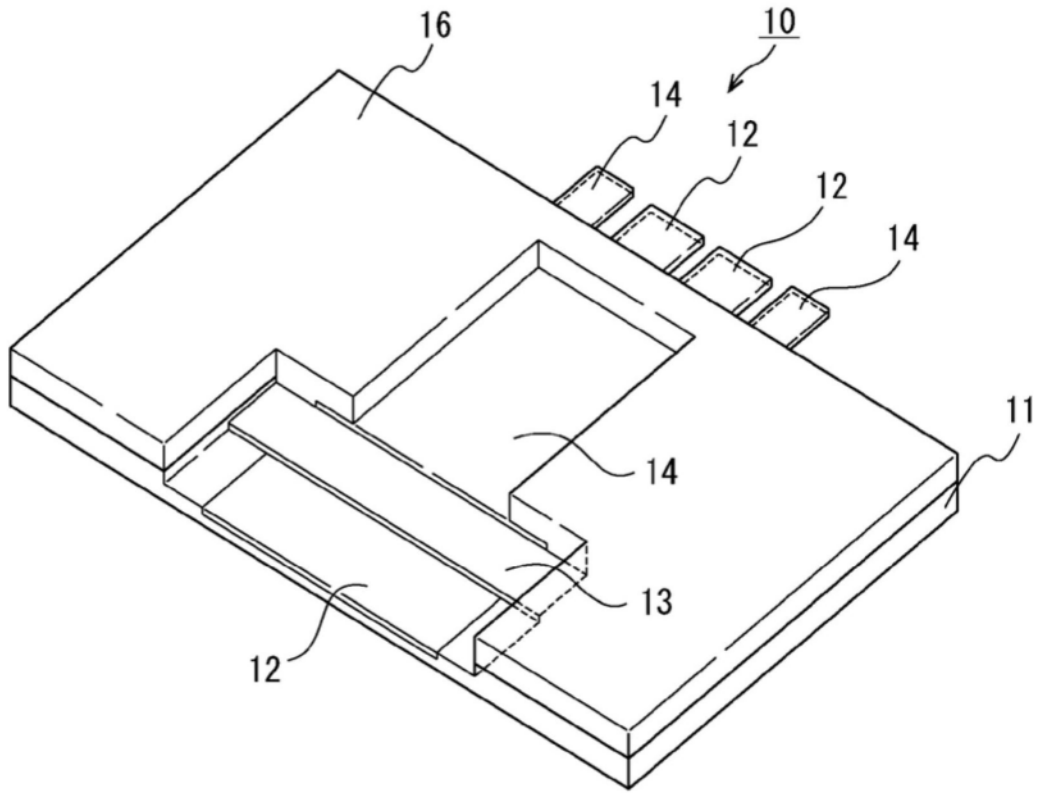


图1

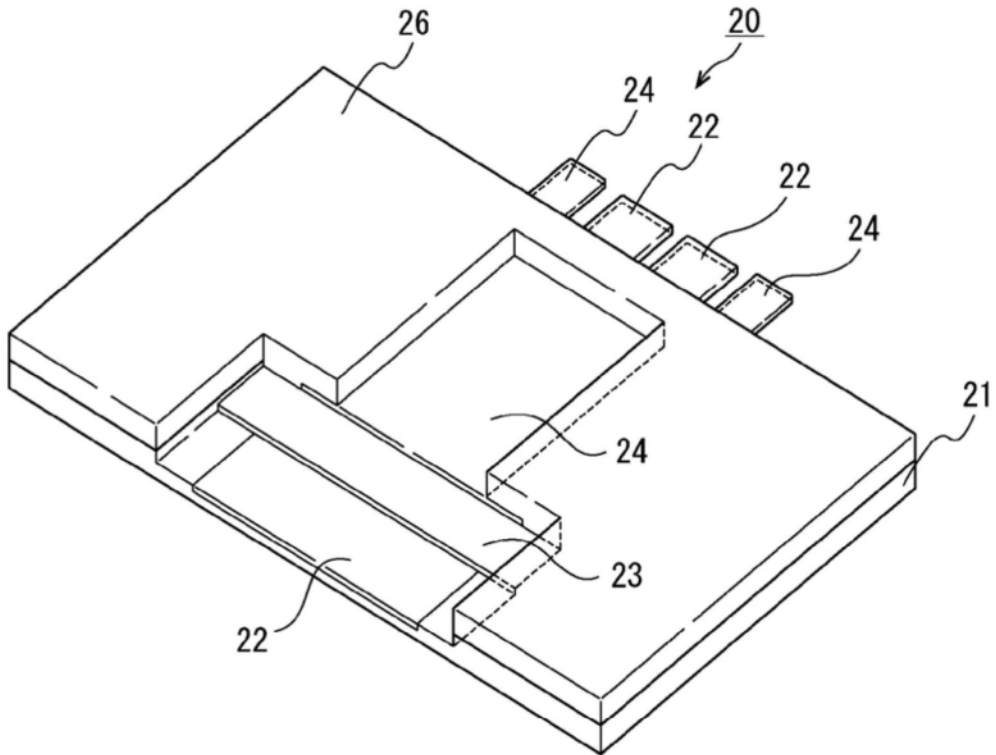


图2

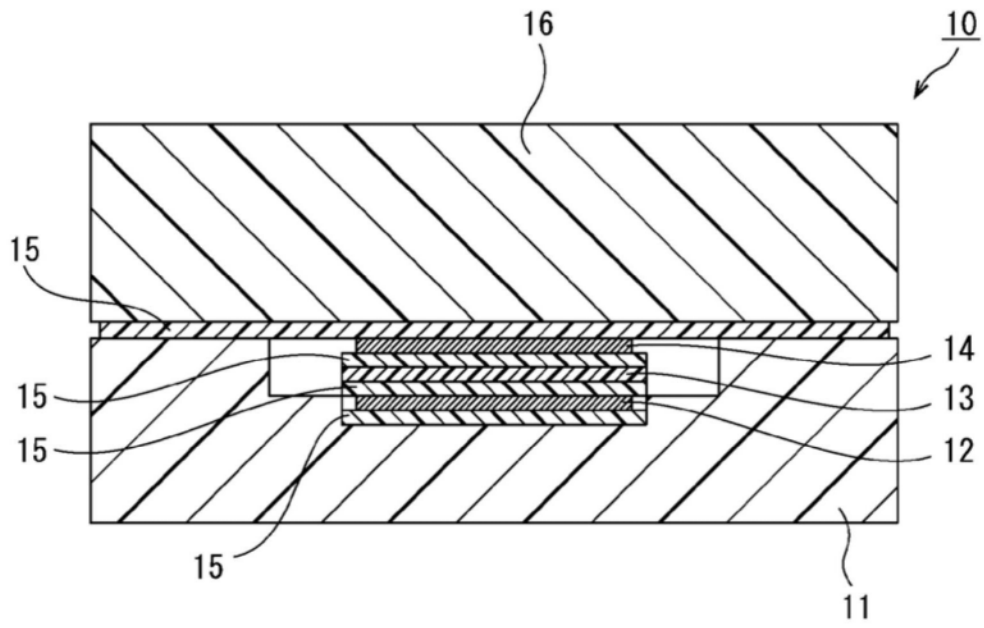


图3

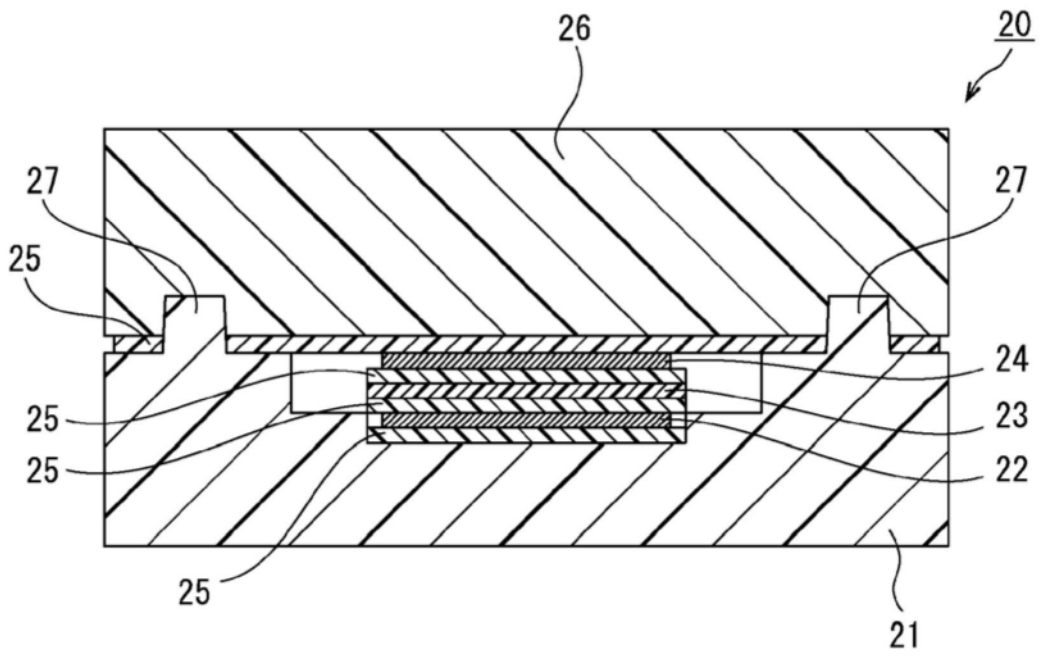


图4

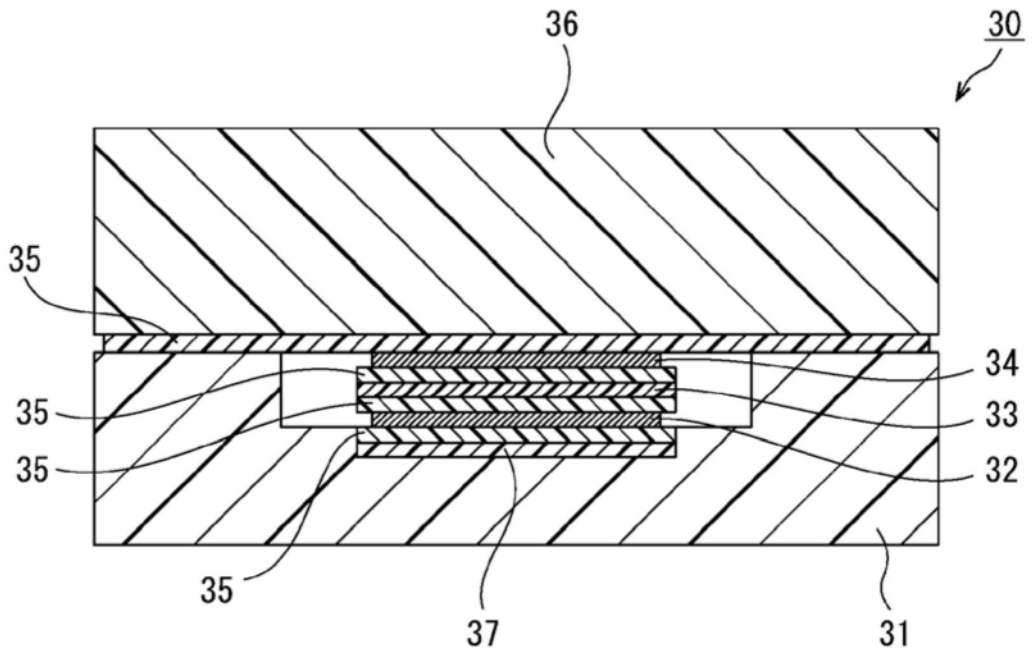


图5

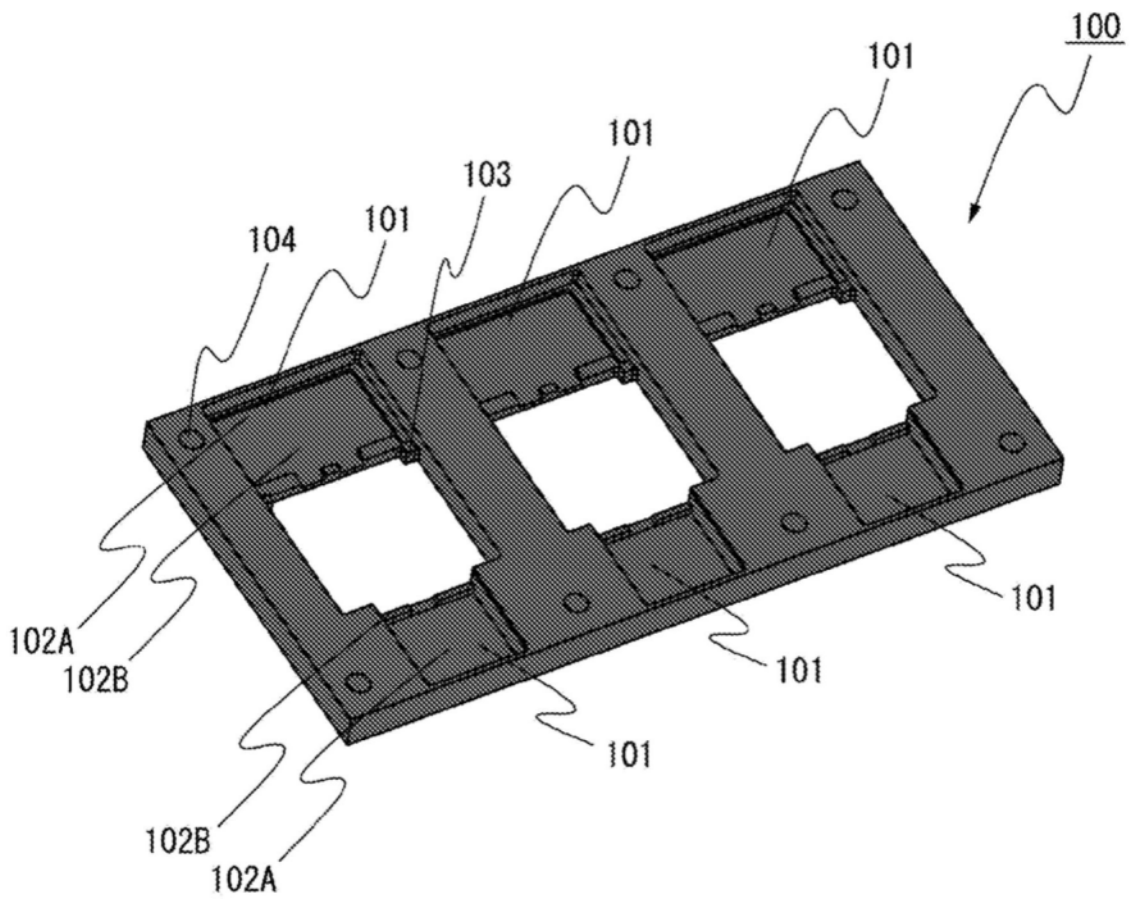


图6

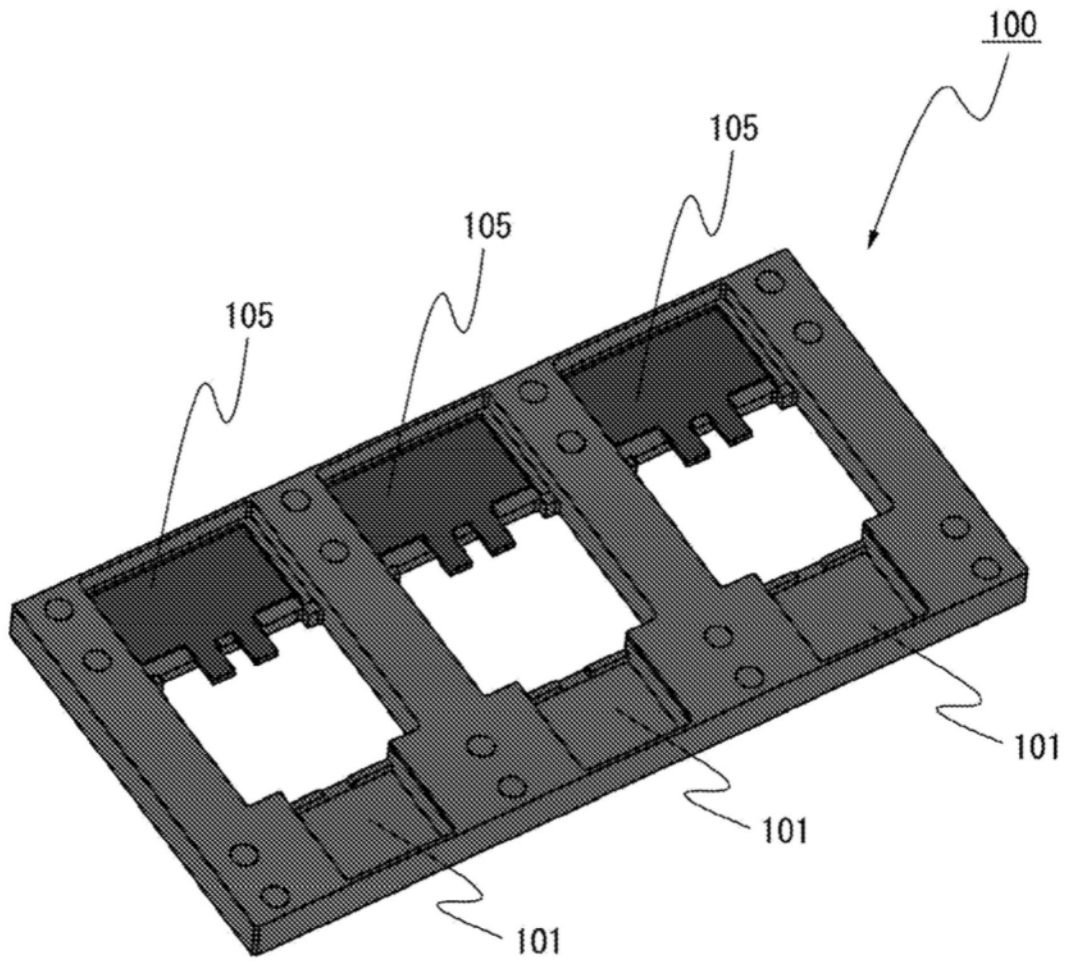


图7

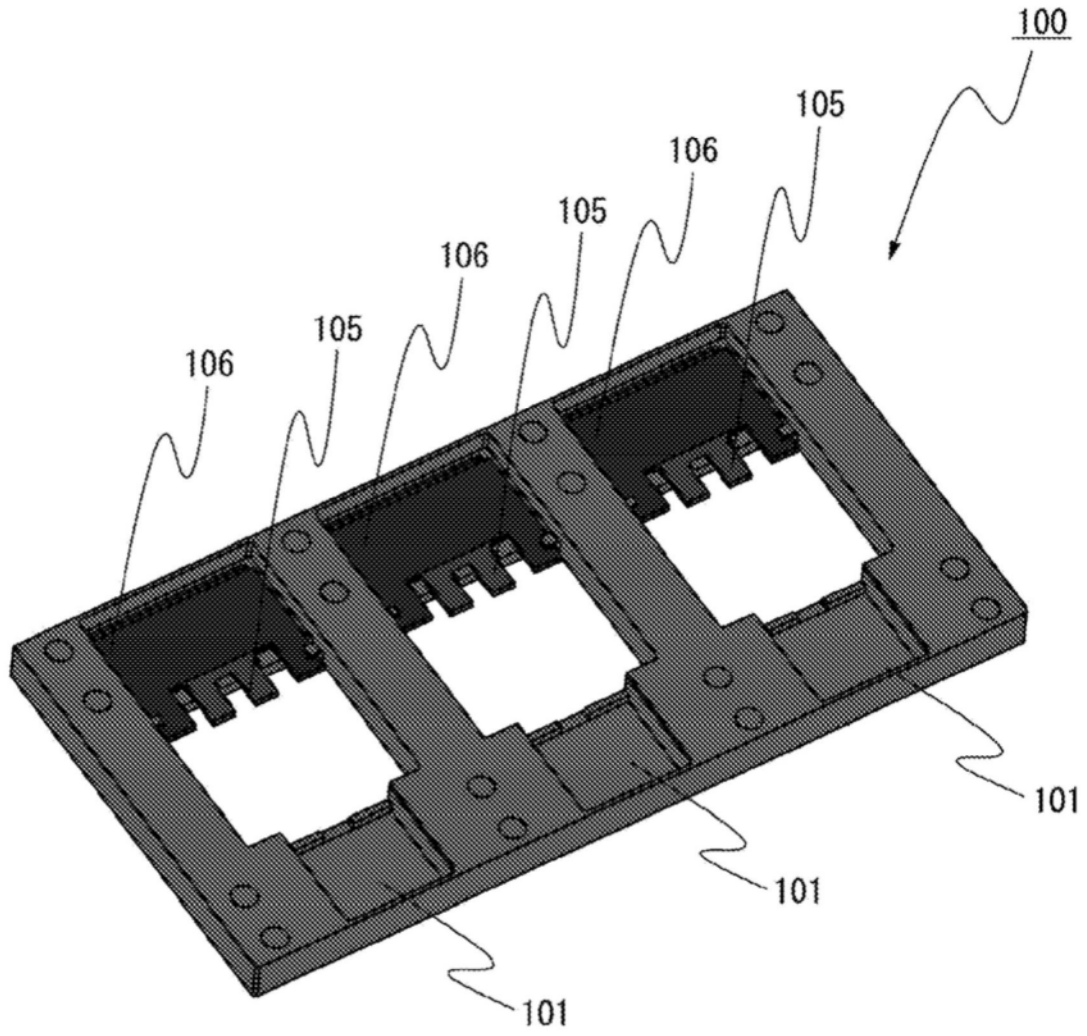


图8

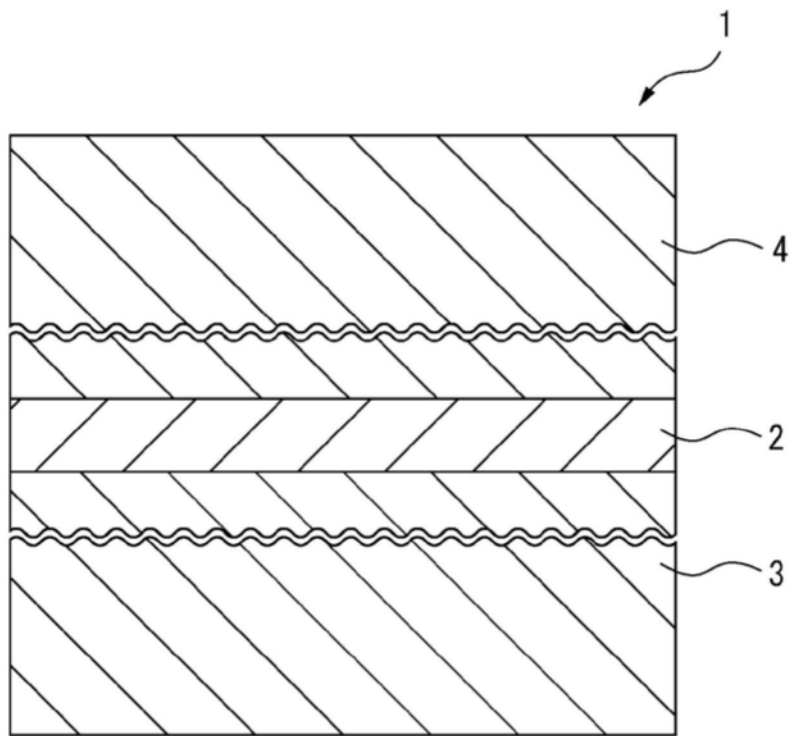


图9