



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本 (11)公開編號：TW 202402902 A

(43)公開日：中華民國 113 (2024) 年 01 月 16 日

(21)申請案號：112112287 (22)申請日：中華民國 112 (2023) 年 03 月 30 日

(51)Int. Cl. : C08J5/18 (2006.01) C08L101/00 (2006.01)  
C08K3/38 (2006.01) C09K5/14 (2006.01)  
B32B15/08 (2006.01) H01L23/36 (2006.01)

(30)優先權：2022/03/30 日本 2022-056573

(71)申請人：日商積水化學工業股份有限公司 (日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)  
日本

(72)發明人：金島雄輝 KANESHIMA, YUKI (JP)；足羽剛兒 ASHIBA, KOUJI (JP)；五枝香音  
GOEDA, KANON (JP)；西村貴史 NISHIMURA, TAKASHI (JP)

(74)代理人：閻啓泰；林景郁

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：2 共 49 頁

(54)名稱  
絕緣性片、積層體、及半導體裝置

(57)摘要

本發明之絕緣性片係包含熱硬化性樹脂與無機填充材者，且上述無機填充材包含氮化硼凝集粒子，上述氮化硼凝集粒子之含量相對於絕緣性片 100 質量%，為 50 質量%以上，使用示差熱熱重量同步測定裝置，以乾燥氮氣氣流下且升溫速度 10°C/分鐘之條件，使上述絕緣性片自 50°C 升溫至 200°C 時之重量減少率為 0.10%以上 1.00%以下。

根據本發明，可提供一種絕緣性片，其儘管使氮化硼凝集粒子為高填充，但即便進行熱處理亦能抑制絕緣性下降，且與金屬板之密接性變得良好，電路剝離等亦得到抑制。

無



## 【發明摘要】

【中文發明名稱】 絕緣性片、積層體、及半導體裝置

【英文發明名稱】 無

### 【中文】

本發明之絕緣性片係包含熱硬化性樹脂與無機填充材者，且上述無機填充材包含氮化硼凝集粒子，上述氮化硼凝集粒子之含量相對於絕緣性片100質量%，為50質量%以上，使用示差熱重量同步測定裝置，以乾燥氮氣氣流下且升溫速度10°C/分鐘之條件，使上述絕緣性片自50°C升溫至200°C時之重量減少率為0.10%以上1.00%以下。

根據本發明，可提供一種絕緣性片，其儘管使氮化硼凝集粒子為高填充，但即便進行熱處理亦能抑制絕緣性下降，且與金屬板之密接性變得良好，電路剝離等亦得到抑制。

### 【英文】

無

【指定代表圖】 無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 絕緣性片、積層體、及半導體裝置

【英文發明名稱】 無

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種絕緣性片、具備該絕緣性片之硬化物之積層體、及具備該積層體之半導體裝置。

【先前技術】

【0002】 以往，於產業用機器、家用電氣設備、資訊終端等廣泛之領域內，使用功率模組（power module）。於功率模組中，進行了使用樹脂片作為基板之嘗試，且期待將使用樹脂片之功率模組向例如高電壓用途展開。樹脂片必須製成具有絕緣性之絕緣性片，且亦要求提高導熱性而具有優異之散熱性。

【0003】 作為提高導熱性之技術，於導熱性片等領域已知有使氮化硼為高填充。作為氮化硼，廣泛地使用一次粒子凝聚而構成之凝集粒子。例如，專利文獻1中揭示有一種導熱材料形成用組成物，其含有環氧化合物、酚化合物及無機物，且使氮化硼凝集粒子作為無機物高填充至87質量%。此處示出了導熱材料形成用組成物例如於加熱乾燥後，半硬化至所謂B-階段狀態，然後使其完全硬化而製成導熱性片。再者，專利文獻1中示出了於進行半硬化時，在以12 MPa進行加壓之狀態下於65°C加熱1分鐘。

先前技術文獻

專利文獻

【0004】 專利文獻1：國際公開2020/067364號

**【發明內容】****[發明所欲解決之課題]**

**【0005】** 如專利文獻1所示，若使氮化硼凝集粒子為高填充，則能夠提高散熱性，另一方面，可能會使摻合於組成物中之溶劑等低分子量成分有一定量殘存於與樹脂摻合之氮化硼凝集粒子內部之空隙部、細孔部。

**【0006】** 但，就基板所使用之絕緣性片而言，若有低分子量成分殘存，藉由與構成電極等之金屬板貼合時之熱壓會將一定量排出至外部，但在貼合於金屬基板之後亦會有一部分殘存於絕緣性片內部，因其後之回焊（reflow）等熱處理等而發泡，從而成為絕緣性下降之原因。進而，基板所使用之絕緣性片亦必須對於用以形成電路圖案之金屬板密接性優異。

**【0007】** 因此，本發明之課題在於提供一種絕緣性片，其即便使氮化硼凝集粒子為高填充，亦能抑制熱處理時之絕緣性下降，且與金屬板之密接性變得良好，電路剝離等亦得到抑制。

**[解決課題之技術手段]**

**【0008】** 本發明人等為了達成上述課題而反覆進行銳意研究。結果發現，在使氮化硼凝集粒子為高填充之絕緣性片中，藉由使自50°C升溫至200°C時之重量減少率為一定範圍內，能夠解決上述課題，從而完成了以下之本發明。即，本發明提供以下之[1]至[12]。

[1]一種絕緣性片，其係包含熱硬化性樹脂與無機填充材者，且

上述無機填充材包含氮化硼凝集粒子，

上述氮化硼凝集粒子之含量相對於絕緣性片100質量%，為50質量%以上，

使用示差熱重量同步測定裝置，以乾燥氮氣氣流下且升溫速度10°C/分鐘之條件，使上述絕緣性片自50°C升溫至200°C時之重量減少率為0.10%以上1.00%以下。

[2]如上述[1]所記載之絕緣性片，其中，上述無機填充材含有絕緣性實心填料。

[3]如上述[2]所記載之絕緣性片，其中，絕緣性實心填料含有多面體氧化鋁。

[4]如上述[1]至[3]中任一項所記載之絕緣性片，其中，上述絕緣性片含有硬化劑，

上述硬化劑含有：具有萘骨架之氰酸酯樹脂或醯亞胺寡聚物。

[5]如上述[1]至[4]中任一項所記載之絕緣性片，其進而含有分散劑。

[6]如上述[1]至[5]中任一項所記載之絕緣性片，其中，上述熱硬化性樹脂含有重量平均分子量為10000以上之熱硬化性樹脂與重量平均分子量未達10000之熱硬化性樹脂。

[7]如上述[1]至[6]中任一項所記載之絕緣性片，其中，將鋁板重疊於一面且將銅箔重疊於另一面並使絕緣性片硬化而獲得之積層體中，依據JIS C648將上述銅箔自絕緣性片之硬化物剝離時之剝離強度所表示之剝離強度為1.0 N/cm以上。

[8]一種絕緣性片之硬化物，其係上述[1]至[7]中任一項所記載之絕緣性片之硬化物。

[9]一種積層體，其具備上述[8]所記載之絕緣性片之硬化物、金屬基底板及金屬板，且於上述金屬基底板上依序具備上述絕緣性片之硬化物與上述金屬板。

[10]如上述[9]所記載之積層體，其中，上述積層體為電路基板。

[11]如上述[9]或[10]所記載之積層體，其中，上述金屬板具有電路圖案。

[12]一種半導體裝置，其具備上述[9]至[11]中任一項所記載之積層體與設置於上述金屬板之上之半導體元件。

[發明之效果]

【0009】 根據本發明，可提供一種絕緣性片，其儘管使氮化硼凝集粒子為高填充，但即便進行熱處理亦能抑制絕緣性下降，且與金屬板之密接性變得良

好，電路剝離等亦得到抑制。

## 【圖式簡單說明】

### 【0010】

[圖1]係表示本發明之一實施方式之積層體之示意性剖視圖。

[圖2]係表示本發明之一實施方式之半導體裝置之示意性剖視圖。

## 【實施方式】

### 【0011】 <絕緣性片>

本發明之絕緣性片包含熱硬化性樹脂與無機填充材，且無機填充材至少包含氮化硼凝集粒子。

### 【0012】 [重量減少率]

本發明之絕緣性片係使用示差熱重量同步測定裝置，以乾燥氮氣氣流下且升溫速度10°C/分鐘之條件，自50°C升溫至200°C時之重量減少率成為0.10%以上1.00%以下者。於本發明中，藉由使重量減少率為上述範圍內，即便使氮化硼凝集粒子為高填充，且即便於硬化後藉由回焊等進行熱處理，亦能抑制絕緣性下降。又，硬化後與金屬板貼合時對金屬板之密接性亦變得良好，亦能夠抑制電路剝離等。

【0013】 另一方面，若上述重量減少率未達0.10%，則溶劑等低分子量成分之含量變少，絕緣性片之流動性下降，而與金屬板之密接性下降，有發生電路剝離之虞。又，若重量減少率超過1.00%，則導熱性片中之溶劑等低分子量成分之含量變得過多，低分子量成分會殘存於氮化硼凝集粒子內部之空隙部、細孔部等。因此，有時會因利用回焊等進行之熱處理而發泡，導致絕緣性下降。此處，作為低分子量成分，除了溶劑以外，重量平均分子量未達10000之低分子樹脂、

或硬化劑、分散劑等屬於低分子量成分。

關於上述重量減少率，就提高絕緣性之觀點而言，較佳為0.80%以下，更佳為0.60%以下，進而較佳為0.50%以下，且就與金屬板之密接性之觀點而言，較佳為0.12%以上，更佳為0.15%以上，進而較佳為0.20%以上。

【0014】 再者，重量減少率可如下述之製造方法中所詳細敘述那般，藉由製造條件，更具體而言藉由乾燥步驟之乾燥時間及乾燥溫度、預成形之溫度、壓力及時間、進而硬化性樹脂組成物中所摻合之溶劑之種類及量等進行調整。又，亦可基於絕緣性片之原料進行調整，例如亦可藉由氮化硼凝集粒子中之空隙部（或氣孔部）之比率、及氮化硼凝集粒子之含量等進行調整。例如，若延長乾燥時間、預成形之時間、或提高乾燥溫度或預成形之溫度、提高預成形之壓力，則呈現出重量減少率降低之趨勢。又，使用沸點較低者作為溶劑或減少溶劑之摻合量，亦呈現出重量減少率降低之趨勢。進而，減小氮化硼凝集粒子中之空隙部（或氣孔部）之比率或氮化硼凝集粒子之含量，亦呈現出重量減少率降低之趨勢。

#### 【0015】 [熱硬化性樹脂]

本發明之絕緣性片所含之熱硬化性樹脂並無特別限定，例如可例舉：脲樹脂及三聚氰胺樹脂等胺基樹脂、酚系樹脂、熱硬化性胺基甲酸酯樹脂、環氧樹脂、熱硬化性聚醯亞胺樹脂及胺基醇酸樹脂等。絕緣性片所使用之熱硬化性樹脂可單獨使用1種，亦可併用2種以上。作為熱硬化性樹脂，上述之中，較佳為環氧樹脂。

【0016】 作為熱硬化性樹脂，亦較佳為併用重量平均分子量為10000以上之熱硬化性樹脂（以下，亦稱為「高分子量樹脂」）與重量平均分子量未達10000之熱硬化性樹脂（以下，亦稱為「低分子量樹脂」）。作為熱硬化性樹脂，若併用高分子量樹脂與低分子量樹脂，則對熱硬化性樹脂賦予一定之流動性而變得容易利用熱硬化性樹脂填埋氮化硼凝集粒子內部之空隙部、氣孔部，並且亦變得容

易賦予一定之耐熱性。因此，不僅使初始絕緣性良好，耐熱性亦提高，從而即便於在硬化後藉由回焊等進行熱處理後，亦容易維持良好之絕緣性。

【0017】 低分子量樹脂之重量平均分子量只要未達10000即可，較佳為5000以下，更佳為3000以下。又，低分子量樹脂之重量平均分子量並無特別限定，例如只要為200以上即可，較佳為250以上。

又，高分子量樹脂之重量平均分子量只要為10000以上即可，較佳為20000以上，更佳為30000以上，且較佳為1000000以下，更佳為250000以下。

【0018】 再者，重量平均分子量係藉由凝膠滲透層析法（GPC）進行測定且以聚苯乙烯換算之重量平均分子量。於凝膠滲透層析法（GPC）測定中，宜使用四氫呋喃作為溶析液。但是，於分子量未達1000之低分子量樹脂中，重量平均分子量只要利用結構式計算即可。又，於絕緣性片中，熱硬化性樹脂存在局部硬化之情況，重量平均分子量係指硬化前之狀態之熱硬化性樹脂之重量平均分子量。

【0019】 於併用高分子量樹脂與低分子量樹脂之情形時，高分子量樹脂相對於低分子量樹脂之含量之比（高分子量樹脂/低分子量樹脂）以質量基準計，較佳為0.2以上3以下，更佳為0.2以上2以下，進而較佳為0.3以上1以下。若高分子量樹脂相對於低分子量樹脂之含量之比為上述下限值以上及上述上限值以下，則能夠更良好地提高絕緣性。

於本發明中，作為低分子量樹脂及高分子量樹脂，均較佳為使用環氧樹脂。但是，若使用環氧樹脂作為熱硬化性樹脂，則環氧樹脂亦可僅使用低分子量樹脂及高分子量樹脂之任一者。

【0020】 作為環氧樹脂，例如上述低分子量樹脂可例舉：含苯乙烯骨架之環氧樹脂、雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、雙酚S型環氧樹脂、酚系酚醛清漆型環氧樹脂、聯苯酚型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、萘型環



氧樹脂、苯酚芳烷基型環氧樹脂、萘酚芳烷基型環氧樹脂、雙環戊二烯型環氧樹脂、蒽型環氧樹脂、具有金剛烷骨架之環氧樹脂、具有三環癸烷骨架之環氧樹脂、具有三吡核作為骨架之環氧樹脂、環氧丙基胺型環氧樹脂。

【0021】 該等之中，較佳為使用雙酚A型環氧樹脂、環氧丙基胺型環氧樹脂、萘型環氧樹脂。雙酚A型環氧樹脂或環氧丙基胺型環氧樹脂一般而言於常溫下為液體，故絕緣性片之柔軟性提高且於預成形時被賦予流動性，變得容易藉由熱硬化性樹脂填埋絕緣性片內部之空隙部、氣孔部，故變得容易防止因硬化後之熱處理而引起絕緣性下降。又，若使用萘型環氧樹脂，則耐熱性提高，因此即便進行加熱，絕緣性亦變得不易下降，且即便於硬化後進行熱處理亦容易良好地維持絕緣性。

進而，環氧丙基胺型環氧樹脂宜使用例如官能基數為3以上者，於此種情形時，硬化後之交聯度提高，而變得易於提高導熱性。

作為該等低分子量樹脂之環氧樹脂可單獨使用1種，亦可併用2種以上。於併用2種以上之情形時，例如較佳為併用選自由雙酚A型環氧樹脂及環氧丙基胺型環氧樹脂所組成之群之至少1種與萘型環氧樹脂。

【0022】 又，作為上述低分子量樹脂之環氧樹脂之環氧當量並無特別限定，例如為70 g/eq以上500 g/eq以下。環氧樹脂之環氧當量較佳為80 g/eq以上，而且較佳為400 g/eq以下，更佳為350 g/eq以下。再者，環氧當量例如可按照JIS K 7236所規定之方法進行測定。

【0023】 又，環氧樹脂亦可為苯氧樹脂。一般而言，苯氧樹脂之重量平均分子量為10000以上，可用作上述高分子量樹脂。苯氧樹脂例如為使表鹵醇（epihalohydrin）與二價酚化合物反應而獲得之樹脂、或使二價環氧化合物與二價酚化合物反應而獲得之樹脂。作為上述苯氧樹脂，可例舉具有雙酚A型骨架、雙酚F型骨架、萘骨架、萘骨架、聯苯骨架、蒽骨架、芘骨架、吡啶骨架、雙酚

TMC骨架、金剛烷骨架或雙環戊二烯骨架者。該等之中，較佳為具有雙酚A型骨架、雙酚F型骨架、萘骨架、雙酚TMC骨架、蒽骨架或聯苯骨架，其中，更佳為具有聯苯骨架或雙酚TMC骨架之至少任一者。

苯氧樹脂可於一分子中具有1種上述各骨架，亦可具有2種以上之骨架。例如，作為具有2種以上之骨架者，可例舉具有雙酚TMC骨架與聯苯骨架者。

【0024】 上述熱硬化性樹脂之摻含量相對於絕緣性片100質量%，宜為例如2質量%以上45質量%以上。藉由設為2質量%以上，能夠使氮化硼凝集粒子等無機填充材充分地黏結而獲得具有一定以上之機械強度之絕緣性片。又，亦能夠使絕緣性片對金屬板之密接性良好。另一方面，藉由設為45質量%以下，能夠含有一定量以上之氮化硼凝集粒子等無機填充材，故能夠使絕緣性良好並且使導熱性優異。就該等觀點而言，熱硬化性樹脂之摻含量較佳為4質量%以上，更佳為5質量%以上，進而較佳為7質量%以上，且較佳為35質量%以下，更佳為25質量%以下，進而較佳為18質量%以上。

#### 【0025】 [硬化劑]

上述絕緣性片較佳為進而含有硬化劑。硬化劑係用以使熱硬化性樹脂硬化之成分。作為硬化劑，例如可例舉：醯亞胺寡聚物、氰酸酯樹脂、胺化合物（胺硬化劑）、硫醇化合物（硫醇硬化劑）、膦化合物、二氰二胺（dicyandiamide）、咪唑化合物、酚化合物（酚硬化劑）、酸酐、活性酯（active ester）化合物、碳二亞胺（carbodiimide）化合物（碳二亞胺硬化劑）及苯并咪唑化合物（苯并咪唑硬化劑）等。硬化劑可單獨使用1種，亦可併用2種以上。

【0026】 作為硬化劑，上述之中，較佳為氰酸酯樹脂。作為氰酸酯樹脂，可例舉：以雙酚A二氰酸酯、四亞甲基雙酚F二氰酸酯、多酚氰酸酯(寡(3-亞甲基-1,5-伸苯基氰酸酯)、六氟雙酚A二氰酸酯、2,2-雙(4-氰酸酯)苯基丙烷、1,1-雙(4-氰酸酯)苯基甲烷、雙(4-氰酸酯-3,5-二甲基苯基)甲烷、1,3-雙(4-氰酸酯)苯基-1-(甲

基亞乙基))苯、雙(4-氰酸酯苯基)硫醚、雙(4-氰酸酯苯基)醚為代表之雙酚型等具有苯骨架之二官能氰酸酯樹脂；使二官能氰酸酯樹脂之1種或2種以上多量化之氰酸酯樹脂；由含有苯酚酚醛清漆、甲酚酚醛清漆、雙環戊二烯結構之酚系樹脂等衍生之多官能氰酸酯樹脂；具有萘骨架之氰酸酯樹脂；上述例示之氰酸酯樹脂之一部分三吡化而成之預聚物（prepolymer）等。

作為氰酸酯樹脂，使用上述中之具有萘骨架之氰酸酯樹脂較佳。若使用具有萘骨架之氰酸酯樹脂，則耐熱性變得良好，例如即便於硬化後藉由回焊等進行熱處理，亦變得容易抑制絕緣性下降。

【0027】 作為氰酸酯樹脂之市售品，可例舉：具有苯酚酚醛清漆結構之氰酸酯樹脂（日本龍沙公司製造之「PT-30」及「PT-60」）、雙酚型氰酸酯樹脂（日本龍沙公司製造之「BA-230S」、「BA-3000S」、「BTP-1000S」及「BTP-6020S」）、具有萘骨架之氰酸酯樹脂（三菱氣體化學公司製造之「NCN」）等。

氰酸酯樹脂可單獨使用1種，亦可併用2種以上。又，作為硬化劑，亦可將氰酸酯樹脂與其他硬化劑併用。

【0028】 又，作為硬化劑，上述之中，亦較佳為醯亞胺寡聚物。藉由使硬化劑為醯亞胺寡聚物，能夠提高耐熱性。再者，上述醯亞胺寡聚物係主鏈上具有醯亞胺骨架之化合物，較佳為骨架上具有芳香族環之化合物。藉由在骨架上具有芳香族環，絕緣性片之熱分解變得不易發生，耐熱性變得易於提高。又，就耐熱性提高之觀點而言，醯亞胺寡聚物較佳為於骨架上不具有碳數16以上之直鏈飽和烴鏈。

【0029】 上述醯亞胺寡聚物較佳為於分子之兩末端或單末端具有能夠與上述熱硬化性樹脂進行反應之反應性官能基，且該反應性官能基為酸酐基、胺基或羥基。上述胺基並無特別限定，可為一級胺基、二級胺基及三級胺基之任一者。上述羥基可為酚性羥基，亦可為除酚性羥基以外之羥基。藉由使用具有此種反應

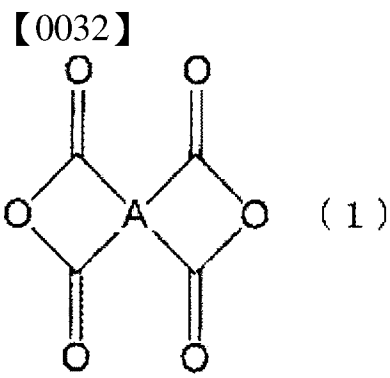
性官能基之醯亞胺寡聚物，而絕緣性片之耐熱性變得容易提高。作為醯亞胺寡聚物所具有之反應性官能基，就耐熱性之觀點而言，更佳為酸酐基或酚性羥基。

【0030】 醯亞胺寡聚物之分子量較佳為500～10000。若分子量為此種範圍，則絕緣性片之耐熱性變得容易提高。醯亞胺寡聚物之分子量更佳為700～7000，進而較佳為900～5000。上述醯亞胺寡聚物之分子量較佳為500以上，更佳為700以上，進而較佳為900以上，且較佳為10000以下，更佳為7000以下，進而較佳為5000以下。

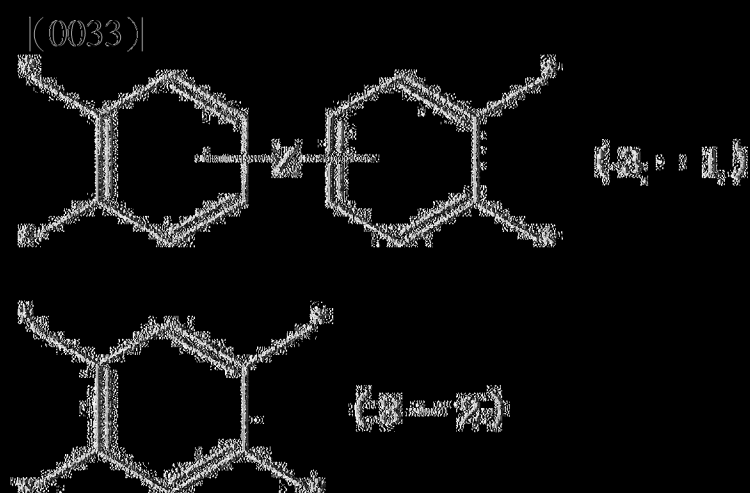
再者，分子量係藉由凝膠滲透層析法（GPC）進行測定且藉由聚苯乙烯換算而求出之數量平均分子量。作為藉由GPC測定利用聚苯乙烯換算之數量平均分子量時所用之管柱，例如可例舉JAIGEL-2H-A（日本分析工業公司製造）等。

具體而言，可使用四氫呋喃作為溶劑，於室溫下，以流速1 mL/min之條件進行測定。再者，溶劑只要為可使要測定之樣品溶解者則並無特別限定，且流速可結合管柱或裝置而進行選擇。

【0031】 上述醯亞胺寡聚物例如可例舉具有源自下述式（1）所示之酸二酐之鏈段（segment）與源自聚胺化合物之鏈段的醯亞胺寡聚物等。於該情形時，較佳為於主鏈之末端具有源自式（1）所示之酸二酐之鏈段，更佳為於主鏈之兩末端具有源自式（1）所示之酸二酐之鏈段。又，作為上述聚胺化合物，可例舉：芳香族二胺化合物、脂肪族二胺化合物、脂肪族三胺化合物等。



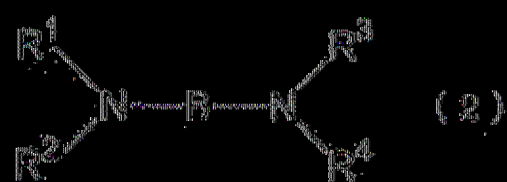
式（1）中，A係下述式（3-1）或下述式（3-2）所示之四價基。



於式(3-1)及式(3-2)中，\*係鍵結位置，於式(3-1)中，%係鍵結鍵、氧原子、羰基、硫原子、磺醯基、可於鍵結位置具有氧原子之直鍵狀或支鍵狀之二價烴基、或者可於鍵結位置具有氧原子之具有芳香環之二價基。式(3-1)及式(3-2)中之芳香環之氮原子可經取代。

[(0034)] 作為上述聚胺化合物，可例舉：芳香族聚胺化合物、脂肪族聚胺化合物，其中，較佳為芳香族聚胺化合物。藉由使用具有源自芳香族聚胺化合物之鏈段之醯亞胺寡聚物，變得容易獲得耐熱性優異之絕緣性片。

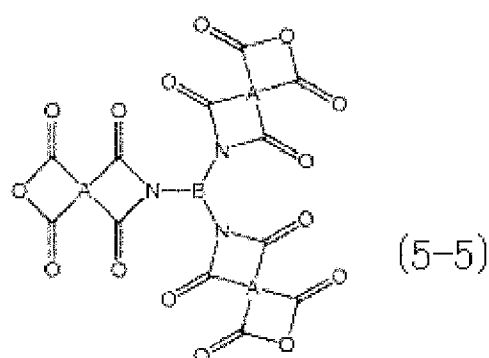
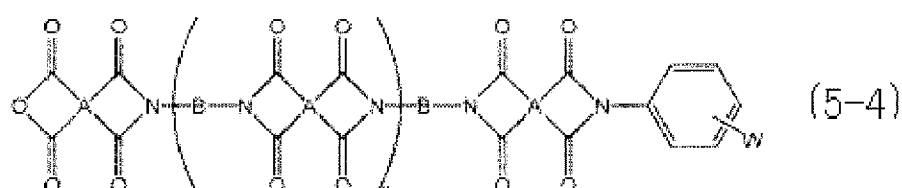
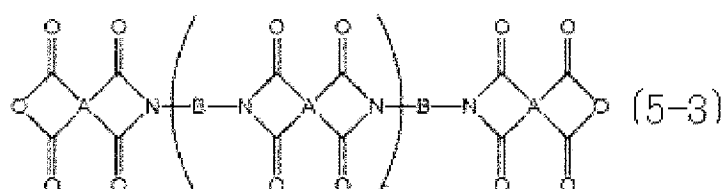
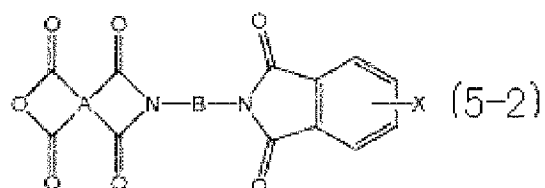
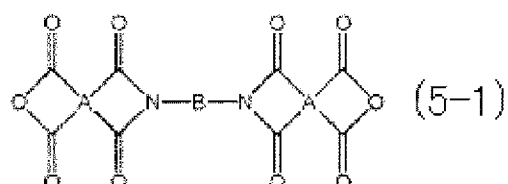
[(0035)] 作為芳香族聚胺化合物，較佳為下述式(2)所示之芳香族二胺化合物。



於式(2)中，B係下述式(4-1)或下述式(4-2)所示之二價基， $R^1 \sim R^4$ 分別獨立地為氮原子或一價烴基。

[(0036)]





【0039】 於式 (5-1) ~ (5-5) 中，A 係酸二酐殘基，可為與上述式 (1) 相同者。於式 (5-1) ~ (5-5) 中，A 可分別相同，亦可互不相同。於式 (5-1) ~ (5-5) 中，B 係脂肪族二胺殘基或芳香族二胺殘基、或者脂肪族三胺殘基或芳香族三胺殘基，於式 (5-3) 及式 (5-4) 中，B 可分別相同，亦可互不相同。於式 (5-2) 中，X 係氫原子、鹵素原子或可經取代之一價烴基，於式 (5-4) 中，W 係氫原子、鹵素原子或可經取代之一價烴基。於式 (5-3) 及式 (5-4) 中，n 為重複數。

【0040】 作為製造具有酸酐基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物之方法，例如可例舉使上述式 (1) 所示之酸二酐與上述芳香族二胺化合物、脂肪族二胺





或一價羥基。

【0044】 作為製造具有羥基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物之方法，例如可例舉以下之方法等。

即，可例舉：使上述式（1）所示之酸二酐與上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺進行反應之方法；或使上述式（1）所示之酸二酐與上述聚胺化合物進行反應之後，進而與上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺進行反應之方法等。

【0045】 以下示出使上述式（1）所示之酸二酐與上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺進行反應之方法之具體例。

首先，預先使上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺溶解於可使藉由反應而獲得之醯胺酸寡聚物溶解之溶劑（例如，N-甲基吡咯啉酮、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺等）中，向獲得之溶液中添加上述式（1）所示之酸二酐而進行反應，從而獲得醯胺酸寡聚物溶液。繼而，藉由加熱或減壓等將溶劑自獲得之醯胺酸寡聚物溶液去除，或者將獲得之醯胺酸寡聚物溶液投入至水、甲醇、己烷等不良溶劑中使其再沈澱，藉此回收醯胺酸寡聚物，進而以約200°C以上進行1小時以上之加熱而使醯亞胺化反應進行。藉由調整上述式（1）所示之酸二酐與上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺之莫耳比、及醯亞胺化條件，能夠獲得具有所需之數量平均分子量且於兩末端具有酚性羥基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物。

【0046】 以下示出使上述式（1）所示之酸二酐與聚胺化合物反應後，進而與上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺進行反應之方法之具體例。

首先，預先使聚胺化合物溶解於可使藉由反應而獲得之醯胺酸寡聚物溶解之溶劑（例如，N-甲基吡咯啉酮、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺等）中，向獲得之溶液中添加上述式（1）所示之酸二酐而進行反應，從而獲得兩末端具有酸酐基之醯胺酸寡聚物（A）之溶液。繼而，藉由加熱或減壓等將溶劑自獲得之醯胺酸寡聚物（A）之溶液去除，或者將獲得之醯胺酸寡聚物（A）之溶液投入至水、

甲醇、己烷等不良溶劑中使其再沈澱，藉此回收醯胺酸寡聚物（A），進而以約200°C以上進行1小時以上之加熱而使醯亞胺化反應進行。

使以此方式獲得之在兩末端具有酸酐基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物再次溶解於溶劑（例如，N-甲基吡咯啉酮、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺等）中，添加上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺而進行反應，從而獲得醯胺酸寡聚物（B）之溶液。藉由加熱或減壓等將溶劑自獲得之醯胺酸寡聚物（B）之溶液去除，或者將獲得之醯胺酸寡聚物（B）之溶液投入至水、甲醇、己烷等不良溶劑中使其再沈澱，藉此回收醯胺酸寡聚物（B），進而以約200°C以上進行1小時以上之加熱而進行醯亞胺化反應。藉由調整上述式（1）所示之酸二酐、聚胺化合物及上述式（5）所示之含酚性羥基之單胺之莫耳比、以及醯亞胺化條件，能夠獲得具有所需之數量平均分子量且於兩末端具有羥基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物。

**【0047】** 再者，作為製造具有胺基作為反應性官能基之醯亞胺寡聚物之方法，並無特別限制，例如可例舉藉由上述方法獲得末端具有酸酐基之醯亞胺寡聚物，且使該醯亞胺寡聚物與聚胺化合物（例如，芳香族二胺化合物等）進行反應之方法。又，作為另一方法，可例舉於利用上述方法製造醯亞胺寡聚物時，將酸酐與聚胺化合物調整為適當之莫耳比之方法等。

**【0048】** 於使用硬化劑之情形時，硬化劑之摻含量相對於熱硬化性樹脂之摻含量之比（硬化劑/熱硬化性樹脂），只要能夠使熱硬化性樹脂適當地硬化則並無特別限定，以質量基準計例如為0.1以上0.9以下。硬化劑相對於熱硬化性樹脂之摻含量之比以質量基準計較佳為0.2以上，更佳為0.3以上，而且較佳為0.7以下，更佳為0.65以下。

**【0049】 [氮化硼凝集粒子]**

本發明之絕緣性片含有氮化硼凝集粒子作為無機填充材。藉由使絕緣性片

含有氮化硼凝集粒子，而絕緣性片之導熱性及絕緣性提高。又，氮化硼凝集粒子於內部形成有空隙部、細孔部，但如上所述，藉由降低重量減少率，殘存於空隙部、細孔部中之低分子量成分亦變少，能夠防止低分子量成分成為主要原因，因硬化後之熱處理而引起絕緣性下降。

**【0050】** 絕緣性片中之氮化硼凝集粒子之含量相對於絕緣性片 100質量%，為50質量%以上。若氮化硼凝集粒子之含量未達50質量%，則無法利用氮化硼凝集粒子充分地提高導熱性，絕緣性片之散熱性亦變得不足。就使導熱性提高而使絕緣性片之散熱性亦良好之觀點而言，上述氮化硼凝集粒子之含量較佳為53質量%以上，更佳為57質量%以上，進而較佳為60質量%以上。

氮化硼凝集粒子之含量只要為例如90質量%以下即可，較佳為87質量%以下，更佳為75質量%以下，進而較佳為70質量%以下。藉由將氮化硼凝集粒子之含量設為一定量以下，變得容易含有一定量以上之熱硬化性樹脂或除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材。

**【0051】** 氮化硼凝集粒子係將一次粒子凝聚而構成之凝集粒子。一般而言，氮化硼凝集粒子可藉由利用例如SEM進行剖面觀察而判別是否為凝集粒子。再者，氮化硼凝集粒子因經過加壓成形等各種步驟，有時維持凝集粒子之形態，亦有時會變形、崩壞、壓碎等。但是，氮化硼凝集粒子在與熱硬化性樹脂混合後，因經過加壓成形等步驟而假設發生變形、崩壞、壓碎等，亦幾乎不會配向且以某種程度聚集之狀態存在，因此藉由例如觀察上述剖面，示意為氮化硼凝集粒子，藉此能夠判別是否為凝集粒子。

**【0052】** 氮化硼凝集粒子之一次粒子之平均長徑並無特別限定，較佳為1 μm以上，更佳為1.5 μm以上，進而較佳為2.0 μm以上，而且較佳為20 μm以下，更佳為15 μm以下，進而較佳為10 μm以下。

利用氮化硼凝集粒子之一次粒子之長徑與短徑求出之平均長寬比（ aspect

ratio) 較佳為1以上，更佳為2以上，而且較佳為7以下，更佳為6以下。氮化硼凝集粒子之一次粒子之形狀並無特別限定，可具有鱗片狀等形狀，亦可具有其他形狀。

【0053】 上述平均長寬比及平均長徑係利用在藉由截面拋光機 (cross section polisher) 而露出之剖面中測得之氮化硼凝集粒子之一次粒徑之長徑與短徑而求出。具體而言如下所述。

首先，藉由截面拋光機而使絕緣性片或其硬化物之剖面露出，利用掃描式電子顯微鏡 (SEM) 以400~1200倍觀察該露出之剖面，獲得觀察圖像。於該觀察圖像中，使用圖像解析軟體隨機地對200個氮化硼凝集粒子之一次粒子測定長徑及短徑，利用長徑/短徑算出各粒子之長寬比，將該200個之平均值作為平均長寬比。又，將所測得之200個一次粒子之長徑之平均值作為平均長徑。再者，長徑係指於觀察圖像中觀察到之氮化硼凝集粒子之一次粒子之最長部分之長度。又，短徑係指於觀察圖像中相對於長徑方向垂直之方向上之長度。

【0054】 關於絕緣性片中所摻合之氮化硼凝集粒子，就有效地提高絕緣性與導熱性之觀點而言，平均粒徑較佳為5  $\mu\text{m}$  以上，更佳為10  $\mu\text{m}$  以上，進而較佳為20  $\mu\text{m}$  以上，且較佳為200  $\mu\text{m}$  以下，更佳為150  $\mu\text{m}$  以下，進而較佳為100  $\mu\text{m}$  以下。

凝集粒子之平均粒徑可藉由雷射繞射/散射法進行測定。關於平均粒徑之計算方法，採用累積體積達到50%時之凝集粒子之粒徑 (d50) 作為平均粒徑。

【0055】 氮化硼凝集粒子之製造方法並無特別限定，可藉由公知之方法來製造。例如，可使預先準備之一次粒子凝聚 (造粒) 而獲得，具體而言可例舉噴霧乾燥方法及流動層造粒方法等。噴霧乾燥 (spray dry) 方法可根據噴霧方式而分為雙流體噴嘴 (two fluid nozzle) 方式、圓盤方式 (亦稱為旋轉方式) 及超音波噴嘴方式等，可應用該等中之任一方式。

又，作為氮化硼凝集粒子之製造方法，並非必需造粒步驟。例如，亦可藉由隨著利用公知之方法結晶化而成之氮化硼之結晶之生長，而使氮化硼之一次粒子自然地集結，從而形成凝集粒子。

又，作為氮化硼凝集粒子，例如可例舉昭和電工股份有限公司製造之「UHP-G1H」、水島合金鐵股份有限公司製造之「HP-40」系列等。

**【0056】** [除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材]

本發明之絕緣性片亦可除了含有上述氮化硼凝集粒子以外，還可含有除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材。作為除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材，較佳為絕緣性填料，其中，較佳為絕緣性實心填料。絕緣性實心填料之內部並無空隙部、細孔部。因此，能夠減少殘存於空隙部、細孔部中之低分子量成分，故能抑制因硬化後之熱處理而引起之絕緣性下降，變得容易更良好地維持熱處理後之絕緣性。再者，絕緣性填料係指具有電絕緣性之填料，且為電阻率為例如 $10^8$  [ $\Omega \cdot m$ ]以上之填料。

**【0057】** 作為絕緣性實心填料，較佳為使用導熱性填料。導熱性填料例如熱導率為 $10 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以上，較佳為 $15 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以上，更佳為 $20 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以上。又，導熱性填料之熱導率之上限並無特別限定，例如可為 $300 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以下，亦可為 $200 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以下。若使用導熱性填料作為除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材，則導熱性填料進入至氮化硼凝集粒子之間之空隙，而能提高導熱性及散熱性。

再者，無機填充材之熱導率例如可針對利用截面拋光機進行切削加工而成之填料剖面，使用BETHEL股份有限公司製造之熱顯微鏡（thermal microscope）藉由週期加熱熱反射（thermoreflectance）法進行測定。

**【0058】** 再者，實心填料係指內部無空隙之填料。此處，所謂內部之空隙，於如一次粒子進行凝聚等而構成二次粒子之情形時，二次粒子之內部無空隙。絕

緣性實心填料較佳為一次粒子不凝聚之非凝集粒子。

絕緣性實心填料之一次粒子之形狀並無特別限定，可使用任意形狀之填料，可為鱗片狀、球狀、破碎狀、不定形狀、多面體形狀、纖維狀等之任一種，該等之中，較佳為球狀、多面體形狀，其中，更佳為多面體形狀。藉由使用多面體形狀之填料作為絕緣實心填料，而變為絕緣性實心填料彼此、或絕緣性實心填料相對於氮化硼凝集粒子面接觸，能夠進一步提高絕緣性片之導熱性。再者，多面體形狀之填料只要具有複數個平面，亦可局部具有曲面。又，藉由使用多面體形狀之填料，而變得即便於硬化後進行利用回焊等之熱處理後，亦容易良好地維持絕緣性。

【0059】 絕緣性實心填料並無特別限定，一次粒子之平均長寬比較佳為3以下，作為此種填料，可例舉：球狀填料、多面體形狀之填料等。上述平均長寬比更佳為2以下，又，絕緣性實心填料之長寬比只要為1以上即可。藉由使用平均長寬比低之絕緣性實心填料，變得容易提高絕緣性片中之絕緣性實心填料之含量。又，變得容易進入至氮化硼凝集粒子之間，而於氮化硼凝集粒子彼此之間形成熱路徑 (heat path)，進而提高導熱性。進而，亦變得容易提高對金屬板之密接性。再者，一次粒子之平均長寬比可如針對氮化硼凝集粒子所敘述那般藉由剖面觀察進行測定。

【0060】 作為絕緣性實心填料之較佳之具體例，可例舉：氧化鋁、氧化鎂等氧化物、氮化鋁、氮化硼等氮化物、碳化矽等碳化物、金剛石等。該等絕緣性實心填料可單獨使用1種，亦可使用2種以上。該等絕緣性實心填料可用作導熱性填料，從而變得容易良好地維持導熱性，並且防止絕緣性下降，且亦容易使對金屬板之密接性提高。

又，該等之中，就使導熱性及對金屬板之密接性為較高之水準，並且防止因熱處理而引起之絕緣性下降之觀點而言，上述之中，較佳為氧化鋁，其中，就進

一步提高導熱性之觀點而言，更佳為球狀氧化鋁、多面體氧化鋁，就使導熱性及熱處理後之絕緣性良好之觀點而言，進而較佳為多面體氧化鋁。

【0061】 關於絕緣性實心填料之平均粒徑，就易於提高絕緣性及導熱性之觀點而言，例如只要為0.1  $\mu\text{m}$ 以上即可，較佳為1  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為10  $\mu\text{m}$ 以上，進而較佳為25  $\mu\text{m}$ 以上。

又，關於絕緣性實心填料之平均粒徑，就容易以高填充將絕緣性實心填料摻合至絕緣性片之觀點而言，較佳為100  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為80  $\mu\text{m}$ 以下，進而較佳為70  $\mu\text{m}$ 以下。再者，絕緣性實心填料之平均粒徑宜利用SEM等顯微鏡觀察例如100個以上之一次粒子並求出各粒子之粒徑，採用累積數達到50%時之凝集粒子之粒徑（d50）作為平均粒徑。

絕緣性實心填料可單獨使用1種，亦可併用2種以上。

【0062】 絕緣性片中之絕緣性實心填料之含量相對於絕緣性片 100質量%，例如為2質量%以上45質量%以下。藉由調整為此種含量，例如變得易於提高導熱性及對金屬板之密接性，亦變得容易使絕緣性、導熱性良好。進而，亦變得容易抑制因回焊等熱處理而引起之絕緣性下降。絕緣性片中之絕緣性實心填料之含量較佳為10質量%以上，更佳為15質量%以上，進而較佳為20質量%以上。又，絕緣性實心填料之無機填充材之含量較佳為40質量%以下，更佳為35質量%以下，進而較佳為30質量%以下。

【0063】 於含有絕緣性實心填料作為無機填充材之情形時，絕緣性實心填料相對於氮化硼凝集粒子之以質量基準計之比率（絕緣性實心填料/氮化硼凝集粒子）例如為0.02以上0.9以下。藉由設為上述範圍內，變得易於提高導熱性及對金屬板之密接性，並且亦容易使絕緣性、導熱性良好。進而，亦變得容易抑制因回焊等熱處理而引起之絕緣性下降。就以上之觀點而言，上述比率較佳為0.01以上，更佳為0.1以上，進而較佳為0.3以上，且較佳為0.8以下，更佳為0.7以下，進

而較佳為0.6以下。

再者，無機填充材亦可含有除絕緣性實心填料以外之無機填充材，作為除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材。

【0064】 絕緣性片中亦可含有離子捕捉劑作為無機填充材。離子捕捉劑較佳為離子交換體。作為離子交換體，可例舉：陰離子交換體、陽離子交換體、兩性離子交換體。作為上述離子交換體，例如可例舉：鋇系化合物、銻系化合物、鎂鋁系化合物、銻鉍系化合物、鋇鉍系化合物等。

上述離子捕捉劑可單獨使用，亦可組合2種以上而使用。離子交換體捕捉絕緣性片所含有之離子，而變得容易對絕緣性片賦予絕緣可靠性。

【0065】 離子捕捉劑之平均粒徑例如為0.5  $\mu\text{m}$ 以上1.5  $\mu\text{m}$ 以下。離子捕捉劑之平均粒徑可使用動態光散射（DLS）粒度分佈測定裝置[例如，NICOMP 380ZLS（PARTICLE SIZING SYSTEMS公司製造）]使粒子分散至溶劑（水、有機溶劑等）中而進行測定。

離子捕捉劑之含量相對於絕緣性片100質量%，較佳為0.05質量%以上，更佳為0.1質量%以上，而且較佳為3質量%以下，更佳為2質量%以下。

離子捕捉劑亦可使用市售品，例如可使用東亞合成公司製造之「IXEPLAS-B1」、「IXEPLAS-A1」、「IXEPLAS-A2」等。

【0066】 絕緣性片中之無機填充材之合計含量相對於絕緣性片100質量%，例如為95質量%以下，較佳為92質量%以下，更佳為90質量%以下，進而較佳為87質量%以下。藉由將氮化硼凝集粒子之含量設為一定量以下，可含有一定量以上之硬化性樹脂，能夠使絕緣性片對金屬板之密接性良好。又，能夠對絕緣性片賦予一定之機械強度。又，絕緣性片中之無機填充材之含量只要為50質量%以上即可，就使散熱性良好之觀點而言，較佳為60質量%以上，更佳為70質量%以上，進而較佳為75質量%以上。



再者，關於絕緣性片中之各無機填充材之含量，於例如無機填充材僅由單一填料（即，氮化硼凝集粒子單獨）構成之情形時，可藉由灰分測定而進行測定。另一方面，於無機填充材係將多種填料組合之情形時，可藉由利用SEM（掃描式電子顯微鏡）進行圖像解析而算出體積%，並根據各填料及樹脂之比重算出各無機填充材之質量%。

#### 【0067】 [分散劑]

本發明之絕緣性片較佳為含有分散劑。絕緣性片藉由含有分散劑，而變得容易使氮化硼凝集粒子等無機填充材均勻地分散於絕緣性片中，藉此變得容易提高散熱性、初始絕緣性、熱處理後之絕緣性、及對金屬板之密接性等各種性能。

分散劑並無特別限定，可例舉：聚酯系羧酸、聚醚系羧酸、聚丙烯酸系羧酸、脂肪族系羧酸、聚矽氧烷系羧酸、聚酯系磷酸、聚醚系磷酸、聚丙烯酸系磷酸、脂肪族系磷酸、聚矽氧烷系磷酸、聚酯系酚、聚醚系酚、聚丙烯酸系酚、脂肪族系酚、及聚矽氧烷系酚等。分散劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0068】 絕緣性片中之分散劑之含量相對於絕緣性片100質量%，較佳為0.01質量%以上4質量%以下。藉由將分散劑之含量設為0.01質量%以上，而變得容易利用分散劑使氮化硼凝集粒子等無機填充材分散至絕緣性片中。又，藉由設為4質量%以下，變得容易發揮與含量相匹配之效果。絕緣性片中之分散劑之含量更佳為0.1質量%以上2質量%以下，進而較佳為0.2質量%以上1.5質量%以下。

#### 【0069】 [其他成分]

本發明之絕緣性片亦可除了上述成分以外，還含有硬化促進劑、矽烷偶合劑等偶合劑、阻燃劑、抗氧化劑、黏著性賦予劑、塑化劑、賦搖變性劑及著色劑等其他添加劑。又，絕緣性片係於其製造方法中摻合溶劑，但所摻合之溶劑宜於絕緣性片中亦殘存一部分。

#### 【0070】 [厚度]

本發明之絕緣性片之厚度並無特別限定，例如為50  $\mu\text{m}$ 以上500  $\mu\text{m}$ 以下。若厚度為50  $\mu\text{m}$ 以上，則能夠確保一定之絕緣性、散熱性，若厚度為500  $\mu\text{m}$ 以下，則變得容易將下述之電路基板或半導體裝置等薄膜化。又，於下述之乾燥步驟或預成形步驟中，變得容易使溶劑等自絕緣性片揮發，從而變得容易降低上述重量減少率。絕緣性片之厚度較佳為80  $\mu\text{m}$ 以上，更佳為100  $\mu\text{m}$ 以上，而且較佳為400  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為260  $\mu\text{m}$ 以下。

【0071】 本發明之絕緣性片較佳為如下述之製造方法所敘述，藉由預成形而半硬化從而為B-階段狀態。絕緣性片藉由為B-階段狀態，而變得易於提高對於構成電路圖案等之金屬板等之密接性。

再者，B-階段狀態可藉由觀察例如利用DSC法（示差掃描熱量測定法，以10°C/分鐘進行升溫，試驗溫度為25~300°C）檢測出之基於環氧樹脂與硬化劑之反應之放熱峰而進行確認。

具體而言，於將未硬化之絕緣性片之放熱峰面積設為100時，若絕緣性片之放熱峰面積為30~99左右之範圍，則判斷為B-階段狀態。

#### 【0072】 [剝離強度]

絕緣性片對金屬板之密接性可利用剝離強度來表示。此處所謂之剝離強度係指將鋁板重疊於一面且將銅箔重疊於另一面並使絕緣性片硬化而獲得之積層體中，將銅箔自絕緣性片之硬化物剝離時之剝離強度。關於絕緣性片相對於銅箔之剝離強度，就提高對金屬板之密接性之觀點而言，例如為1.0 N/cm以上，較佳為1.5 N/cm以上，更佳為2.0 N/cm以上，進而較佳為2.5 N/cm以上，進而更佳為3.0 N/cm以上。剝離強度之上限並無特別限定，例如為20 N/cm。

【0073】 再者，剝離強度宜如下所述進行測定。由厚度為1 mm之鋁板與厚度為35  $\mu\text{m}$ 之銅箔夾住絕緣性片，以使絕緣性片完全硬化之方式進行加壓成形，而獲得由鋁板/絕緣性片之硬化物/銅箔構成之積層體。加壓成形宜以實施例

記載之條件進行。繼而，將積層體切出50 mm×120 mm之大小，且以於積層體之寬度方向之中央殘留10 mm寬之銅箔之方式剝離銅箔，從而獲得測定樣品。依據JIS C648，對測定樣品中之10 mm寬之銅箔測定剝離時之銅箔之剝離強度，作為剝離強度。

#### 【0074】 [熱導率]

使絕緣性片硬化時之熱導率例如為7 W/(m·K)以上。熱導率藉由如上所述設為一定以上，而散熱性變得良好。又，就散熱性之觀點而言，上述熱導率較佳為9 W/(m·K)以上，更佳為12 W/(m·K)以上，進而較佳為15 W/(m·K)以上，進而更佳為18 W/(m·K)以上。如上所述，若提高熱導率，則變成散熱性優異者，於用作電路基板之情形時，能夠使安裝於電路基板上之元件所產生之熱有效率地逸散至外部。因此，例如，即便安裝功率模組中所使用之功率元件等散熱量較多之元件，亦能防止元件之溫度變得過高。又，使絕緣性片硬化時之熱導率之上限並無特別限定，就實用性而言，例如為30 W/(m·K)左右。

再者，使絕緣性片硬化時之熱導率可如下述之實施例所記載那般，自絕緣性片，準備厚度不同之3片經硬化之測定用片，根據3片測定用片之熱阻值與厚度製作一次函數，根據其斜率而求出。

#### 【0075】 [絕緣破壞電壓]

關於本發明之絕緣性片，於一面重疊厚度為0.5 mm之銅板且於另一面重疊厚度為2.0 mm之銅板並使其硬化而獲得之積層體樣品之絕緣破壞電壓（亦稱為初始絕緣破壞電壓（A1））較佳為30 kV/mm以上。若初始絕緣破壞電壓（A1）為30 kV/mm以上，則絕緣性片之絕緣性優異，可良好地用作電路基板等。絕緣破壞電壓更佳為40 kV/mm以上，進而較佳為50 kV/mm以上，且較佳為60 kV/mm以上。又，初始絕緣破壞電壓（A1）並無特別限定，例如為200 kV/mm以下。

【0076】 本發明之絕緣性片較佳為於300°C進行熱處理時之絕緣變化率亦

較低。具體而言，測定初始絕緣破壞電壓（A1）、及將上述積層體樣品於300℃進行5分鐘之熱處理後之絕緣破壞電壓（亦稱為300℃處理後之絕緣破壞電壓（A2）），利用初始絕緣破壞電壓（A1）與300℃處理後之絕緣破壞電壓（A2）根據以下之式算出之絕緣變化率較佳為30%以下。藉由絕緣變化率為30%以下，即便藉由回焊等對絕緣性片之硬化物進行加熱處理，亦能抑制絕緣性下降。絕緣變化率更佳為25%以下，進而較佳為20%以下，進而更佳為15%以下。絕緣變化率越低則越良好，其下限通常為0%。

$$\text{絕緣變化率 (\%)} = (A1 - A2) / A1 \times 100$$

#### 【0077】 <絕緣性片之製造方法>

本發明之絕緣性片宜藉由例如包含以下之步驟（A）～（C）之方法而製造。

步驟（A）：獲得至少含有熱硬化性樹脂、氮化硼凝集粒子及溶劑之硬化性樹脂組成物。

步驟（B）：將硬化性樹脂組成物形成為薄膜狀。

步驟（C）：以重量減少率成為0.10%以上1.00%以下之方式對成形為薄膜狀之硬化性樹脂組成物進行處理。

以下，對各步驟更詳細地進行說明。

#### 【0078】 [步驟（A）]

於步驟（A）中，宜將熱硬化性樹脂、氮化硼凝集粒子、溶劑、以及視需要摻合之除氮化硼凝集粒子以外之無機填充材、硬化劑、分散劑及其他添加劑加以混合，而獲得硬化性樹脂組成物。

此處，於使用分散劑之情形時，亦可將包含氮化硼凝集粒子之無機填充材與分散劑添加至溶劑中加以混合，而製作無機填充材分散液，且將無機填充材分散液混合至熱硬化性樹脂以及視需要摻合之硬化劑及其他添加劑中。藉由預先製作無機填充材分散液，變得容易使氮化硼凝集粒子等無機填充材更良好地分散

至絕緣性片中。

【0079】 將各成分加以混合之方法只要使用分散機、均質機、行星混合器、行星式攪拌機、三輥研磨機等輥磨機、捏合機等各種混合機即可。藉由使用其等，能夠將各成分良好地加以混合，從而能夠將氮化硼凝集粒子等無機填充材良好地分散於絕緣性片中。

【0080】 上述混合機可單獨使用1種，亦可組合2種以上。又，作為混合機，上述之中，較佳為至少使用分散機、均質機、行星混合器及行星式攪拌機，亦較佳為於利用該等中之任一者將各成分加以混合後，利用三輥研磨機等另一混合機進一步進行混合。藉由使用2種以上之混合機將各成分加以混合，能夠使氮化硼凝集粒子等無機填充材更良好地分散於硬化性樹脂組成物中，例如變得容易提高散熱性、初始絕緣性、熱處理後之絕緣性等。

【0081】 作為硬化性樹脂組成物中所摻合之溶劑，只要為於下文所述之乾燥步驟及預成形中能夠適宜地揮發者，則並無特別限定，可使用例如沸點為70°C以上200°C以下者。藉由沸點為上述範圍內，變得容易藉由以下所說明之步驟(C)而將重量減少率調整為規定之範圍內。上述沸點較佳為100°C以上，更佳為130°C以上，且較佳為185°C以下，更佳為170°C以下。

【0082】 作為溶劑之具體例，可例舉：甲基乙基酮、環己酮、甲基異丁基酮、二乙基酮等酮系溶劑；正庚烷、環己烷等脂肪族烴系溶劑；甲苯等芳香族烴系溶劑；乙酸乙酯、乙酸正丁酯、丁酸甲酯等酯系溶劑；丙二醇單甲醚乙酸酯、乙二醇單乙醚乙酸酯等二醇酯系溶劑；乙二醇單甲醚、乙二醇單乙醚、乙二醇單丁醚、丙二醇單甲醚、丙二醇單乙醚、二乙二醇二甲醚、二丙二醇二甲醚、二丙二醇單甲醚、二乙二醇二乙醚等醚系溶劑等各種有機溶劑。

該等溶劑可單獨使用1種，亦可使用2種以上製成混合溶劑。該等之中，就能夠提高氮化硼凝集粒子之分散性之觀點而言，較佳為甲基乙基酮、環己酮、甲基

異丁基酮等，最佳為環己酮。

【0083】 硬化性樹脂組成物中之溶劑之摻含量並無特別限定，相對於硬化性樹脂組成物100質量%，較佳為25質量%以上44質量%以下。藉由將溶劑之摻含量設為25質量%以上，變得容易對硬化性樹脂組成物賦予流動性，混合各成分時之分散性變得良好，進而於步驟（B）中變得容易成形為薄膜狀。又，藉由將溶劑之摻含量設為44質量%以下，而於下文所述之步驟（C）中，即便不以所需以上之程度進行加熱，亦變得容易將重量減少率調整為規定之範圍內。

硬化性樹脂組成物中之溶劑之摻含量更佳為32質量%以上41質量%以下，進而較佳為36質量%以上39質量%以下。

【0084】 [步驟（B）]

於步驟（B）中，將藉由步驟（A）獲得之硬化性樹脂組成物成形為薄膜狀。成形為薄膜狀之方法並無特別限定，例如宜將硬化性樹脂組成物塗佈於剝離片等支持體上而製成薄膜狀。薄膜之厚度宜以藉由經由下述之步驟（C）而獲得之絕緣性片之厚度成為所需厚度之方式進行適當調整。又，塗佈硬化性樹脂組成物之方法並無特別限定，可例舉：刮刀法、模具塗佈（die coat）法、刮塗法等。

【0085】 [步驟（C）]

於步驟（C）中，宜對在步驟（B）中成形為薄膜狀之硬化性樹脂組成物，藉由乾燥、預成形等以重量減少率成為0.10%以上1.00%以下之方式進行處理而獲得絕緣性片，但較佳為於經過乾燥步驟後進行預成形。藉由在使硬化性樹脂組成物乾燥後進行預成形，變得容易將重量減少率調整為上文所述之規定之範圍內。又，藉由進行預成形，獲得之絕緣性片典型而言變成經半硬化之所謂B-階段狀態，亦變得容易提高上文所述之相對於銅箔之剝離強度等。

【0086】 為了將重量減少率調整為規定之範圍內，乾燥步驟較佳為對硬化性樹脂組成物進行加熱而使其乾燥。此時，藉由在一定之溫度以下進行加熱，能

夠防止硬化性樹脂組成物所含有之熱硬化性樹脂之硬化進行，從而能夠防止使絕緣性片硬化而貼合於金屬板時對金屬板之密接性下降。另一方面，藉由加熱至一定之溫度以上，能夠使溶劑等低分子量成分之揮發適當地進行。但是，就防止因急遽之揮發而於絕緣性片之內部使低分子量成分之揮發痕成為空隙之觀點而言，於乾燥步驟中，硬化性樹脂組成物較佳為於低溫進行加熱。就以上之觀點而言，具體而言，乾燥溫度較佳為60°C以上130°C以下，更佳為70°C以上120°C以下，進而較佳為70°C以上100°C以下。

又，乾燥時間只要以使硬化性樹脂組成物中之溶劑等低分子量成分適度地揮發之方式進行調整即可，例如5分鐘以上30分鐘以下，較佳為8分鐘以上25分鐘以下。

【0087】 關於乾燥條件，其良好之條件因獲得之絕緣性片之厚度而異，例如於製作預成形後之絕緣性片之厚度為100  $\mu\text{m}$ 以上且未達130  $\mu\text{m}$ 者之情形時，較佳為於60°C以上130°C以下之乾燥溫度進行5分鐘以上15分鐘以下之乾燥，進而較佳為於75°C以上85°C以下之乾燥溫度進行8分鐘以上12分鐘以下之乾燥。

又，於製作預成形後之絕緣性片之厚度為130  $\mu\text{m}$ 以上且未達180  $\mu\text{m}$ 者時，較佳為於70°C以上130°C以下之乾燥溫度進行5分鐘以上20分鐘以下之乾燥，進而較佳為於75°C以上85°C以下之乾燥溫度進行12分鐘以上18分鐘以下之乾燥。

又，於製作預成形後之絕緣性片之厚度為180  $\mu\text{m}$ 以上260  $\mu\text{m}$ 以下者時，較佳為於80°C以上130°C以下之乾燥溫度進行10分鐘以上25分鐘以下之乾燥，進而較佳為於85°C以上95°C以下之乾燥溫度進行12分鐘以上18分鐘以下之乾燥。

【0088】 於步驟（C）中，薄膜狀之熱硬化性樹脂組成物較佳為於如上所述那般乾燥之後進行預成形。藉由進行預成形，而熱硬化性樹脂組成物所含有之氮化硼凝集粒子被壓縮，可擔保絕緣性片之絕緣性、散熱性。又，能夠適宜地去除絕緣性片內部、尤其是氮化硼凝集粒子之空隙部、細孔部內部之溶劑等低分子

量成分。

【0089】 此處，就使溶劑等低分子量成分適宜地揮發且易於將重量減少率調整為適宜之範圍內之觀點而言，預成形較佳為進行加熱及加壓而進行。此時，藉由以一定之溫度以下進行加熱且以一定之壓力以下進行加壓，不使硬化性樹脂組成物所含有之熱硬化性樹脂之硬化過度進行，而能防止硬化而貼合於金屬板時絕緣性片對金屬板之密接性下降。另一方面，藉由加熱至一定之溫度以上且以一定之壓力以上進行加壓，能夠適宜地進行溶劑等低分子量成分自氮化硼凝集粒子內部揮發。就以上之觀點而言，預成形時之加熱溫度較佳為90°C以上140°C以下，更佳為100°C以上130°C以下。又，預成形時之壓力較佳為10 MPa以上30 MPa以下，更佳為15 MPa以上25 MPa以下。

又，關於預成形之時間，就防止過度地進行硬化性樹脂組成物之硬化而使密接性失效之觀點而言，不宜過長，另一方面，就充分地去去除氮化硼凝集粒子之空隙部、細孔部內部之溶劑等低分子量成分之觀點而言，不宜過短。就以上之觀點而言，預成形之時間較佳為10分鐘以上100分鐘以下，更佳為15分鐘以上90分鐘以下。

【0090】 關於預成形之條件，其良好之條件因獲得之絕緣性片之厚度而異，例如於製作預成形後之絕緣性片之厚度為100  $\mu\text{m}$ 以上且未達130  $\mu\text{m}$ 者之情形時，預成形條件較佳為於100°C以上130°C以下之溫度及15 MPa以上25 MPa以下之壓力進行15分鐘以上45分鐘以下，更佳為於115°C以上125°C以下之溫度且17 MPa以上23 MPa以下之壓力進行25分鐘以上35分鐘以下。

又，於製作預成形後之絕緣性片之厚度為130  $\mu\text{m}$ 以上且未達180  $\mu\text{m}$ 者時，預成形條件較佳為於100°C以上130°C以下之溫度且15 MPa以上25 MPa以下之壓力進行30分鐘以上60分鐘以下，更佳為於115°C以上125°C以下之溫度且17 MPa以上23 MPa以下之壓力進行40分鐘以上50分鐘以下。



又，於製作預成形後之絕緣性片之厚度為180  $\mu\text{m}$ 以上260  $\mu\text{m}$ 以下者時，預成形條件較佳為於100°C以上130°C以下之溫度且15 MPa以上25 MPa以下之壓力進行45分鐘以上90分鐘以下，更佳為於115°C以上125°C以下之溫度且17 MPa以上23 MPa以下之壓力進行55分鐘以上65分鐘以下。

【0091】 預成形宜藉由加壓成形來進行。加壓成形宜將薄膜狀之硬化性樹脂組成物夾入一對加壓盤之間而進行。此處，薄膜狀之硬化性樹脂組成物於形成在支持體上之情形時，可在形成於支持體上之狀態下進行加壓成形，亦可自支持體剝離後進行加壓成形。

又，於預成形時，亦較佳為將預成形機內抽真空。藉由抽真空，而變得更容易排出絕緣性片內部之低分子量成分。關於真空度，不論預成形時之溫度、片厚度、及成形壓如何，只要為例如10 kPa以下即可，較佳為0.5 kPa以上2.0 kPa以下，更佳為1.0 kPa左右。

【0092】 又，加壓成形並無特別限定，亦可藉由如下方法進行。即，首先，準備2個形成於剝離片等支持體上之薄膜狀之硬化性樹脂組成物，且準備將其等以硬化性樹脂組成物彼此接觸之方式積層而成之積層物。然後，利用2片加壓盤夾持該積層物之兩面而進行熱壓。藉由此種方法而製造之絕緣性片成為二層結構，因此能夠降低形成有針孔之絕緣性片之製造頻度，而提高製造上之良率。又，能夠容易地使剝離片配置於與加壓盤之接觸位置，故作業性提高。

#### 【0093】 [絕緣性片之硬化物]

本發明之絕緣性片藉由以熱硬化性樹脂之硬化溫度以上之溫度進行加熱而硬化，可製成絕緣性片之硬化物。硬化較佳為於加壓下進行加熱而進行。絕緣性片之硬化物可構成以下所示之積層體之一部分。

#### 【0094】 [積層體]

如圖1所示，本發明之積層體係除了本發明之絕緣性片之硬化物10以外，還

具備金屬基板11及金屬板12，且於金屬基板11上依序具備絕緣性片之硬化物10及金屬板12的積層體13。

【0095】 本發明之積層體宜藉由加壓成形而製造。具體而言，宜藉由將金屬基板、絕緣性片及金屬板依序重疊後進行加壓成形而獲得積層體。藉由加壓成形而使絕緣性片完全硬化，絕緣性片之硬化物能夠將金屬基板及金屬板以一定以上之接著力接著。

加壓成形宜於例如150°C以上250°C以下、較佳為180°C以上210°C以下、且於例如8 MPa以上25 MPa以下之壓力進行。

又，加壓時間並無特別限定，例如為10分鐘以上240分鐘以下，較佳為30分鐘以上200分鐘以下左右。

加壓處理可於常壓下進行，亦可於真空加壓下進行。金屬基板、絕緣性片及金屬板之積層體宜於減壓環境下進行加壓處理，具體而言，例如於10 kPa以下、較佳為3 kPa以下、更佳為1.5 kPa以下之環境下進行加壓處理。

【0096】 金屬基板11及金屬板12分別發揮作為熱導體之功能，因此其熱導率較佳為10 W/m·K以上。作為其等所用之材料，可例舉：鋁、銅、金、銀等金屬及石墨片等。就更有效地提高導熱性之觀點而言，較佳為鋁、銅或金，更佳為鋁或銅。

金屬基板11之厚度較佳為0.1 mm以上5 mm以下，金屬板12之厚度較佳為10 μm以上2000 μm以下，更佳為10 μm以上900 μm以下。再者，作為金屬板，亦包括銅板之類的板或銅箔之類的箔之情形。

【0097】 積層體13較佳為用作電路基板。於用作電路基板之情形時，積層體13中之金屬板12宜具有電路圖案。電路圖案只要根據安裝於電路基板上之元件等而適當進行圖案化即可。電路圖案並無特別限定，宜藉由蝕刻等而形成。又，於電路基板中，金屬基板11被用作散熱板等。

**【0098】 [半導體裝置]**

本發明亦提供一種具有上述積層體之半導體裝置。具體而言，如圖2所示，半導體裝置15具備「具有絕緣性片之硬化物10、金屬基板11及金屬板12之積層體13」、與「設置於積層體13之金屬板12之上之半導體元件14」。金屬板12宜藉由蝕刻等而圖案化且具有電路圖案。

**【0099】** 再者，半導體元件14於圖2中示出了2個，但半導體元件14之數量並不限定，可為1個以上之任意數量。又，於金屬板12之上亦可除了半導體元件14以外，還搭載有電晶體等其他電子零件（未圖示）。各半導體元件14經由形成於金屬板12之上之連接導電部16連接於金屬板12。連接導電部16宜由焊料（solder）形成。又，於積層體13之金屬板12側之表面設置有密封樹脂19。而且，宜至少將半導體元件14藉由密封樹脂19而密封，視需要亦可將金屬板12與半導體元件14一併藉由密封樹脂19而密封。

半導體元件14並無特別限定，較佳為至少1個為功率元件（即，功率用半導體元件），藉此，半導體裝置15較佳為功率模組。功率模組被用於例如變流器（inverter）等。

又，功率模組被用於例如升降機、不斷電電源裝置（UPS）等產業用機器中，但其用途並無特別限定。

**【0100】** 於金屬板12連接有引線（lead）20。引線20例如自密封樹脂19延出至外部，將金屬板12連接於外部機器等。又，亦可於半導體元件14連接有金屬線17。如圖2所示，金屬線17宜將半導體元件14連接於另一半導體元件14、金屬板12、引線20等。

半導體元件14當經由引線20等被供給電力而驅動時會發熱，但半導體元件14所產生之熱經由絕緣性片之硬化物10傳播至金屬基板11，自金屬基板11散熱。金屬基板11宜視需要連接於由散熱片等構成之散熱器。

【0101】 半導體裝置15宜於其製造步驟中經由回焊步驟而製造。具體而言，於半導體裝置15之製造方法中，首先，準備積層體13，藉由焊料印刷等在積層體13之金屬板12上形成連接導電部16，將半導體元件14搭載於該連接導電部16之上。其後，使搭載有半導體元件14之積層體13通過回焊爐之內部，在回焊爐之內部進行加熱，藉由連接導電部16而使半導體元件14連接於金屬板12之上。再者，回焊爐內之溫度並無特別限定，例如為200～300℃左右。於半導體裝置15之製造方法中，只要於回焊步驟後將密封樹脂19積層於積層體13上而將半導體元件14密封即可。又，於利用密封樹脂19進行密封之前，宜適當地安裝金屬線17、引線20等。

再者，以上示出了藉由回焊步驟使半導體元件14連接於金屬板12之形態，但並不限定於此種形態，例如亦可藉由回焊步驟而將積層體13（即，電路基板）連接於另一基板（未圖示）。

#### 實施例

【0102】 以下，利用實施例及比較例對本發明更具體地進行說明，但本發明並不限定於該等。

【0103】 再者，各物性之測定方法及評價方法如下所述。

#### [重量減少率]

使用示差熱重量同步測定裝置（裝置名「TG/DTA7300」，日立高新技術公司製造），求出以乾燥氮氣氣流下且升溫速度10℃/分鐘之條件使於實施例及比較例中獲得之絕緣性片自50℃升溫至200℃時之重量減少率。再者，絕緣性片係將藉由預成形步驟而獲得者保管在鋁袋中，於預成形步驟後24小時以內進行測定。但是，於未進行預成形步驟之比較例中，將藉由乾燥步驟而獲得之片保管在純鋁袋中，於乾燥步驟後24小時以內進行測定。

表1～3中亦對重量減少率之值按照以下基準附記了A～D。

A：0.10%以上0.50%以下

B：超過0.50%且為1.00%以下

C：超過1.00%

D：未達0.10%

**【0104】 [散熱性]**

於在各實施例、比較例中獲得之1片絕緣性片之兩面積層鐵氟龍（註冊商標）片，於溫度195°C、壓力20 MPa之條件下進行真空加壓，藉此製作測定用片1。又，藉由將重疊3片絕緣性片而成者及重疊5片絕緣性片而成者在與上述相同之條件下進行真空加壓而製作測定用片2、3。

對測定用片1～3之熱阻值進行測定，根據熱阻值相對於片厚度所示之斜率，利用以下之式藉由穩態法（steady state method）測定熱導率（依據ASTMD5470）。測定裝置使用Mentor Graphics公司製造之「T3Ster-DynTIM」。

式：熱導率（W/m·K）=  $1 / ((\text{斜率（熱阻值/片厚度）：K/（W} \cdot \mu\text{m）}) \times (\text{測定面積：cm}^2)) \times 10^{-2}$

再者，求出斜率時之片厚度係以3400 kPa進行加壓時之厚度（ $\mu\text{m}$ ），熱阻值係以3400 kPa進行加壓時所求出之熱阻值（K/W），斜率係藉由最小平方法而求出之一次函數之斜率。測定面積係傳遞熱之部分之面積（ $\text{cm}^2$ ）。

**【0105】** 散熱性係根據所測得之熱導率按照以下之評價基準進行評價。再者，散熱性係按字母順序越靠前的越優異。

A：18 W/（m·K）以上

B：15 W/（m·K）以上且未達18 W/（m·K）

C：12 W/（m·K）以上且未達15 W/（m·K）

D：9 W/（m·K）以上且未達12 W/（m·K）

E：7 W/（m·K）以上且未達9 W/（m·K）

F：未達7 W/ (m·K)

**【0106】** [初始絕緣性]

於在各實施例、比較例中獲得之絕緣性片之一面重疊厚度為0.5 mm之銅板且於另一面重疊厚度為2.0 mm之銅板，然後於溫度195°C、壓力20 MPa之條件下對其等進行80分鐘之真空加壓（真空度：1.0 kPa），藉此製作積層體。於獲得之積層體中，藉由對5 mm厚之銅板進行蝕刻，而圖案化成直徑為2 cm之圓形，以經圖案化之銅箔為中心切出4 cm見方而獲得積層體樣品。

利用耐電壓試驗機（ETECH Electronics公司製造之「MODEL7473」），以使用在電子氟化液（Fluorinert）中對積層體樣品間施加200 V並保持5秒後，每升壓200 V便同樣地保持5秒之步進升壓法使電壓上升之方式施加交流電壓。將積層體樣品中流通10 mA之電流時之電壓作為絕緣破壞電壓。

**【0107】** （絕緣性之評價基準）

根據所測得之絕緣破壞電壓，按照以下之評價基準進行評價。再者，絕緣性係按照字母順序越靠前的越優異。

A：60 kV/mm以上

B：50 kV/mm以上且未達60 kV/mm

C：40 kV/mm以上且未達50 kV/mm

D：30 kV/mm以上且未達40 kV/mm

E：未達30 kV/mm

**【0108】** [300°C處理後之絕緣性]

與初始絕緣性評價同樣地，獲得4 cm見方之積層體樣品。將獲得之積層體樣品之2 mm銅板側設置於加熱板面，以積層體樣品之絕緣性片之硬化物之表面溫度達到300°C之方式調整加熱板之設定溫度，於該狀態下對積層體樣品進行5分鐘之加熱處理。對於加熱處理後之積層體樣品，與初始絕緣性評價同樣地測定絕

緣破壞電壓。根據所測得之絕緣破壞電壓，利用上述評價基準對300°C處理後之絕緣性進行評價。

**【0109】 [絕緣變化率]**

根據初始之絕緣破壞電壓（A1）與300°C處理後之絕緣破壞電壓（A2）求出絕緣變化率，利用以下之評價基準進行評價。再者，絕緣變化率係按照字母順序越靠前的越優異。

$$\text{絕緣變化率 (\%)} = (A1 - A2) / A1 \times 100$$

A：15%以下

B：超過15%且為20%以下

C：超過20%且為25%以下

D：超過25%且為30%以下

E：超過30%

**【0110】 [剝離強度（密接性）]**

於在各實施例、比較例中獲得之絕緣性片之一面重疊厚度為35 μm之銅箔且於另一面重疊厚度為1 mm之鋁板，然後於溫度195°C、壓力20 MPa之條件下進行80分鐘之真空加壓（真空度：1.0 kPa），藉此獲得積層體。將獲得之積層體切出50 mm×120 mm之大小且以於積層體之寬度方向之中央殘存10 mm之銅箔之方式剝離銅箔，從而獲得測定樣品。依據JIS C 6481，對測定樣品中之10 mm寬之銅箔測定剝離時之銅箔之剝離強度，作為剝離強度。使用Tensilon萬能試驗機作為剝離強度之測定裝置。

**【0111】** 根據所測得之剝離強度，利用以下之評價基準來評價對金屬板之密接性。再者，剝離強度係按照字母順序越靠前的越優異。

A：3.0 N/cm以上

B：2.5 N/cm以上且未達3.0 N/cm

C：2.0 N/cm以上且未達2.5 N/cm

D：1.5 N/cm以上且未達2.0 N/cm

E：1.0 N/cm以上且未達1.5 N/cm

F：未達1.0 N/cm

【0112】 實施例及比較例中所使用之各成分如下所述。

（熱硬化性樹脂）

環氧樹脂1：「YX7200TY」，三菱化學公司製造，苯氧樹脂，重量平均分子量為10000以上，含有雙酚TMC骨架及聯苯骨架

環氧樹脂2：「JER630」，三菱化學公司製造，低分子量樹脂，環氧丙基胺型環氧樹脂

環氧樹脂3：「YD127」，日鐵化學材料公司（Nippon Steel Chemical & Material Co., Ltd.）製造，低分子量樹脂，雙酚A型環氧樹脂

環氧樹脂4：「CG-500」，大阪燃氣化學股份有限公司製造，萘型環氧樹脂

【0113】 （硬化劑）

硬化劑1：「NCN」，三菱氣體化學公司製造，含有萘骨架之氰酸酯樹脂

硬化劑2：「BA3000S」，日本龍沙公司製造，雙酚A型氰酸酯樹脂

硬化劑3：IMO-1

IMO-1係以如下所述之方式製作。

使104重量份之4,4'-(4,4'-亞異丙基二苯氧基)二鄰苯二甲酸酐（東京化成工業公司製造）溶解於300重量份之N-甲基吡咯啉酮（FUJIFILM Wako Pure Chemical公司製造之「NMP」）中。向獲得之溶液中添加利用100重量份之N-甲基吡咯啉酮對28重量份之作為二聚二胺之Priamine 1074（Croda公司製造）加以稀釋所得之溶液，於25℃攪拌2小時使其反應而獲得醯胺酸寡聚物溶液。自獲得之醯胺酸寡聚物溶液減壓去除N-甲基吡咯啉酮後，於300℃加熱2小時，藉此獲得醯亞胺寡



聚物組成物B（醯亞胺化率93%）。

針對獲得之醯亞胺寡聚物組成物B進行<sup>1</sup>H-NMR、GPC及FT-IR分析。其結果，確認到醯亞胺寡聚物組成物B包含具有上述式（5-1）或（5-3）所示之結構之醯亞胺寡聚物（A為4,4'-(4,4'-亞異丙基二苯氧基)二鄰苯二甲酸酐殘基，B為二聚二胺殘基）。又，該醯亞胺寡聚物組成物B之數量平均分子量為2200。

硬化劑4：「2P4MHZ-PW」，四國化成公司製造，咪唑化合物

【0114】（氮化硼）

填充材1：「HP40 MF100」，水島合金鐵股份有限公司（Mizushima Ferroalloy Co., Ltd.）製造，氮化硼凝集粒子，凝集粒子之平均粒徑為40 μm

（氧化鋁）

填充材1：「AH40-S」，DIC公司製造，多面體氧化鋁，平均粒徑為32 μm

填充材2：「AA18」，住友化學公司製造，多面體氧化鋁，平均粒徑為18 μm

填充材3：「AL35-75R」，NIPPON STEEL MATERIALS股份有限公司，平均粒徑為35 μm

（分散劑）

分散劑1：「HIPLAAD ED-216」，楠本化成公司製造，聚酯系羧酸

【0115】 [實施例1]

（熱硬化性樹脂組成物之製備）

按照表1之組成將無機填充材與分散劑在摻合杯中加以混合，進而以於熱硬化性樹脂組成物中變為38質量%之方式加入作為溶劑之環己酮（沸點為155.6°C），利用行星式攪拌機以2000 rpm之條件攪拌3分鐘。其後，將熱硬化性樹脂及硬化劑按照表1之組成依序追加混合至摻合杯中，使用行星式攪拌機以2000 rpm之條件攪拌3分鐘，藉此獲得熱硬化性樹脂組成物。

再者，各表中之組成係以去除溶劑後之固形物成分基準之摻合比率來表示。

固形物成分基準之摻合比率實質上與絕緣性片中之摻合比率一致。

**【0116】** （塗佈步驟）

使用350 mm寬之刮刀將獲得之熱硬化性樹脂組成物以變為任意厚度之方式塗佈於厚度為50 μm之離型PET片上，獲得於離型PET片上形成有薄膜狀之熱硬化性樹脂組成物之片。

**【0117】** （乾燥步驟）

將藉由塗佈步驟而獲得之片切割成300 mm×500 mm之尺寸，置於金屬製支架(rack)上，於烘箱內進行乾燥處理。烘箱使用雅馬拓科學公司( Yamato Scientific Co., Ltd. ) 製造之「DKM600」。烘箱之設定溫度係按照表1之條件來實施。

**【0118】** （預成形步驟）

準備2片乾燥後之片，以在附有離型PET片之狀態下將熱硬化性樹脂組成物重疊之方式積層，按照表1之條件進行預成形，藉此獲得B-階段狀態之絕緣性片。自獲得之絕緣性片將離型PET片剝離，而實施各評價試驗。將評價結果示於表1。

再者，預成形係使用北川精機製造之PCB成形用冷熱壓機( 型號：VH2-2014 ) 作為成形機且藉由加壓成形而進行。

**【0119】** [實施例2～34、比較例1～20]

除了將組成及製造條件變更為如表1～4所記載那樣以外，以與實施例1相同之方式實施。但是，於不摻合分散劑之實施例中，行星式攪拌機中之混合係藉由將所有成分投入至摻合杯中，使用行星式攪拌機以2000 rpm之條件攪拌3分鐘而進行，從而獲得熱硬化性樹脂組成物。

又，於各表中，三輥研磨機處理記載為「有」之實施例、比較例係對使用行星式攪拌機獲得之熱硬化性樹脂組成物進一步進行以下處理，即對進行了三輥研磨機處理之熱硬化性樹脂組成物進行下一步驟（乾燥步驟）。又，真空設定記載為「有」之實施例、比較例係於預成形中以1.0 kPa將成形機內抽真空。進而，

預成形條件為空欄之比較例表示省略了預成形。

（三輥研磨機處理）

利用陶瓷輥三輥研磨機將使用行星式攪拌機獲得之熱硬化性樹脂組成物以輥間間隙150 μm之條件投入至二次裝置中，進一步進行混練。

【0120】 [表1]

|                      |                                              |               | 單位   | 實施<br>例 1 | 實施<br>例 2 | 實施<br>例 3 | 實施<br>例 4 | 實施<br>例 5 | 實施<br>例 6 | 實施<br>例 7 | 實施<br>例 8 | 實施<br>例 9 | 實施<br>例 10 | 實施<br>例 11 | 實施<br>例 12 | 實施<br>例 13 | 實施<br>例 14 | 實施<br>例 15 |
|----------------------|----------------------------------------------|---------------|------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| 摻合                   | 樹脂組成物                                        | 環氧樹脂 1        | wt%  | 5.2       | 5.2       | 5.2       | 3.3       | 3.3       | 3.3       | 2.8       | 3.5       | 3.5       | 13.2       | 9.2        | 3.8        | 3.3        | 3.3        | 3.3        |
|                      |                                              | 環氧樹脂 2        |      | 3.4       | 3.4       | 3.4       | 2.2       | 2.2       | 2.2       | -         | 2.3       | 2.4       | 8.9        | 6.1        | 2.5        | 2.2        | 2.2        | 2.2        |
|                      |                                              | 環氧樹脂 3        |      | -         | -         | -         | -         | -         | -         | 3.9       | -         | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|                      |                                              | 環氧樹脂 4        |      | 3.4       | 3.4       | 3.4       | 2.2       | 2.2       | 2.2       | 1.8       | 2.3       | 2.4       | 8.9        | 6.1        | 2.5        | 2.2        | 2.2        | 2.2        |
|                      |                                              | 硬化劑 1         |      | 7.2       | 7.2       | 7.2       | 4.7       | 4.7       | 4.7       | 3.9       | -         | 5.0       | 18.5       | 12.9       | 5.3        | 4.7        | 4.7        | 4.7        |
|                      |                                              | 硬化劑 2         |      | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | 4.3       | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|                      |                                              | 硬化劑 3         |      | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|                      |                                              | 硬化劑 4         |      | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|                      | 無機填充材                                        | 氮化硼 填充<br>材 1 |      | 80.0      | 80.0      | 80.0      | 60.7      | 60.7      | 60.7      | 60.7      | 60.7      | 60.7      | 50.0       | 65.0       | 85.0       | 60.7       | 60.7       | 60.7       |
|                      |                                              | 氧化鋁 填充<br>材 1 |      | -         | -         | -         | 26.0      | -         | -         | 26.0      | 26.0      | 26.0      | -          | -          | -          | 26.0       | 26.0       | 26.0       |
|                      |                                              | 氧化鋁 填充<br>材 2 |      | -         | -         | -         | -         | 26.0      | -         | -         | -         | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|                      |                                              | 氧化鋁 填充<br>材 3 |      | -         | -         | -         | -         | -         | 26.0      | -         | -         | -         | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
| 分散劑                  | 分散劑 1                                        | 0.8           | 0.8  | 0.8       | 0.9       | 0.9       | 0.9       | 0.9       | 0.9       | -         | 0.5       | 0.7       | 0.9        | 0.9        | 0.9        | 0.9        |            |            |
| 分散                   | 三輥研磨機處理                                      |               | -    | 無         | 無         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          |            |
| 乾燥                   | 乾燥                                           | 溫度            | ℃    | 80        | 80        | 80        | 80        | 80        | 80        | 80        | 80        | 80        | 80         | 80         | 80         | 70         | 130        | 70         |
|                      |                                              | 時間            | 分鐘   | 15        | 15        | 15        | 15        | 15        | 15        | 15        | 15        | 15        | 15         | 15         | 15         | 5          | 20         | 5          |
| 成膜                   | 片預成形                                         | -溫度           | ℃    | 120       | 120       | 120       | 120       | 120       | 120       | 120       | 120       | 120       | 120        | 120        | 120        | 120        | 120        | 100        |
|                      |                                              | -壓力           | MPa  | 20        | 20        | 20        | 20        | 20        | 20        | 20        | 20        | 20        | 20         | 20         | 20         | 20         | 20         | 15         |
|                      |                                              | -時間           | 分鐘   | 45        | 45        | 45        | 45        | 45        | 45        | 45        | 45        | 45        | 45         | 45         | 45         | 45         | 45         | 30         |
|                      |                                              | 真空設定          |      | 無         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有         | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          |
|                      |                                              | 預成形後之厚度       | μm   | 151       | 149       | 141       | 136       | 138       | 137       | 139       | 136       | 136       | 135        | 141        | 155        | 141        | 142        | 139        |
| 成形                   |                                              | 正式成形後之厚度      | μm   | 124       | 125       | 122       | 121       | 124       | 125       | 123       | 123       | 124       | 125        | 126        | 124        | 124        | 124        | 126        |
|                      | 預成形後片之重量減少<br>率                              | %             | A    | A         | A         | A         | A         | A         | A         | A         | A         | A         | A          | A          | A          | B          | A          | B          |
|                      | TG-DTA 法 50→200℃<br>(未實施預成形時，乾燥<br>後片之重量減少率) |               | 0.30 | 0.28      | 0.32      | 0.30      | 0.34      | 0.32      | 0.36      | 0.34      | 0.32      | 0.15      | 0.26       | 0.40       | 0.78       | 0.22       | 0.68       |            |
|                      | 積層<br>體物<br>性                                | 散熱性           | W/mK | C         | C         | C         | A         | B         | B         | A         | A         | B         | E          | D          | A          | A          | A          | B          |
| 13.2                 |                                              |               |      | 13.2      | 12.8      | 19.0      | 17.8      | 17.4      | 18.2      | 18.7      | 17.8      | 7.6       | 11.6       | 18.7       | 18.6       | 18.8       | 17.8       |            |
| 初始絕緣性                |                                              | kV/mm         | B    | B         | A         | A         | A         | B         | A         | A         | B         | A         | A          | B          | A          | A          | A          | A          |
|                      |                                              |               | 56.5 | 57.6      | 62.3      | 62.8      | 62.9      | 54.4      | 60.2      | 61.8      | 51.6      | 84.8      | 73.0       | 53.2       | 61.3       | 62.9       | 60.3       |            |
| 300℃處理後之絕緣性          |                                              | kV/mm         | B    | B         | B         | B         | B         | C         | B         | B         | C         | A         | A          | C          | B          | B          | C          |            |
|                      |                                              |               | 50.0 | 51.2      | 55.7      | 56.2      | 54.8      | 46.4      | 52.0      | 50.4      | 45.2      | 78.4      | 66.7       | 45.2       | 51.6       | 56.5       | 47.6       |            |
| 初始→300℃處理後 絕<br>緣變化率 |                                              | %             | A    | A         | A         | A         | A         | A         | A         | A         | B         | A         | A          | A          | B          | B          | A          | C          |
|                      |                                              |               | 11.4 | 11.1      | 10.5      | 10.5      | 12.8      | 14.7      | 13.5      | 18.4      | 12.5      | 7.5       | 8.7        | 15.2       | 15.8       | 10.3       | 21.1       |            |
| 剝離強度（密接性）            | N/cm                                         | B             | B    | B         | A         | A         | A         | A         | A         | B         | A         | A         | A          | D          | A          | C          | A          |            |
|                      |                                              | 2.8           | 2.8  | 2.6       | 3.2       | 3.3       | 3.6       | 3.0       | 3.2       | 2.9       | 5.6       | 4.2       | 1.9        | 3.4        | 2.2        | 3.2        |            |            |

【0121】 [表2]

|               |                                                                            |               | 單位    | 實施<br>例<br>16 | 實施<br>例<br>17 | 實施<br>例<br>18 | 實施<br>例<br>19 | 實施<br>例<br>20 | 實施<br>例<br>21 | 實施<br>例<br>22 | 實施<br>例<br>23 | 實施<br>例<br>24 | 實施<br>例<br>25 | 實施<br>例<br>26 | 實施<br>例<br>27 | 實施<br>例<br>28 | 比較<br>例 1 | 比較<br>例 2 |      |
|---------------|----------------------------------------------------------------------------|---------------|-------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|-----------|-----------|------|
| 摻合            | 樹脂<br>組成<br>物                                                              | 環氧樹脂 1        | wt%   | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3           | 3.3       | 3.3       |      |
|               |                                                                            | 環氧樹脂 2        |       | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2       | 2.2       |      |
|               |                                                                            | 環氧樹脂 3        |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         |      |
|               |                                                                            | 環氧樹脂 4        |       | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2           | 2.2       | 2.2       |      |
|               |                                                                            | 硬化劑 1         |       | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7           | 4.7       | 4.7       |      |
|               |                                                                            | 硬化劑 2         |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         |      |
|               |                                                                            | 硬化劑 3         |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         |      |
|               |                                                                            | 硬化劑 4         |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         |      |
|               | 無機<br>填充<br>材                                                              | 氮化硼 填<br>充材 1 |       | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7          | 60.7      | 60.7      | 60.7 |
|               |                                                                            | 氧化鋁 填<br>充材 1 |       | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0          | 26.0      | 26.0      | 26.0 |
|               |                                                                            | 氧化鋁 填<br>充材 2 |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         | -    |
|               |                                                                            | 氧化鋁 填<br>充材 3 |       | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -             | -         | -         | -    |
|               | 分散<br>劑                                                                    | 分散劑 1         | 0.9   | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9           | 0.9       | 0.9       |      |
| 分散            | 三輥研磨機處理                                                                    |               | -     | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 無         | 有         |      |
| 乾燥            | 乾燥                                                                         | 溫度            | ℃     | 130           | 80            | 60            | 130           | 60            | 130           | 90            | 80            | 130           | 80            | 130           | 80            | 90            | 80        | 80        |      |
|               |                                                                            | 時間            | 分鐘    | 20            | 10            | 5             | 15            | 5             | 15            | 15            | 10            | 25            | 10            | 25            | 10            | 15            | 15        | 15        |      |
| 成膜            | 片預<br>成形                                                                   | -溫度           | ℃     | 130           | 120           | 120           | 120           | 100           | 130           | 120           | 120           | 120           | 100           | 130           | 120           | 120           | -         | -         |      |
|               |                                                                            | -壓力           | MPa   | 25            | 20            | 20            | 20            | 15            | 30            | 20            | 20            | 20            | 15            | 25            | 20            | 20            | -         | -         |      |
|               |                                                                            | -時間           | 分鐘    | 60            | 30            | 30            | 30            | 15            | 45            | 60            | 60            | 60            | 45            | 90            | 45            | 60            | -         | -         |      |
|               |                                                                            | 真空設定          |       | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | 有             | -         | -         |      |
|               |                                                                            | 預成形後之厚度       | μm    | 136           | 100           | 101           | 100           | 103           | 101           | 252           | 256           | 248           | 260           | 257           | 155           | 200           | -         | -         |      |
| 成形            | 正式成形後之厚度                                                                   |               | μm    | 125           | 95            | 93            | 95            | 96            | 95            | 226           | 222           | 223           | 225           | 220           | 140           | 182           | 121       | 123       |      |
|               | 預成形後片之重量<br>減少率<br><br>TG-DTA 法<br>50→200℃<br>(未實施預成形<br>時，乾燥後片之重<br>量減少率) |               | %     | A             | A             | B             | A             | B             | A             | A             | B             | A             | B             | A             | A             | A             | C         | C         |      |
| 積層<br>體物<br>性 | 散熱性                                                                        |               | W/mK  | A<br>19.2     | A<br>19.2     | A<br>18.8     | A<br>19       | A<br>18.6     | A<br>19.4     | A<br>18.4     | B<br>17.8     | A<br>18.2     | B<br>17.6     | A<br>18.3     | A<br>18.8     | A<br>19.0     | A<br>19   | A<br>19.2 |      |
|               | 初始絕緣性                                                                      | kV/mm         |       | A<br>64.0     | B<br>50.5     | C<br>49.5     | B<br>52.6     | C<br>45.8     | B<br>50.5     | A<br>61.9     | A<br>64.0     | A<br>62.8     | A<br>60.4     | A<br>63.6     | A<br>61.4     | A<br>60.4     | B<br>57.9 | A<br>61.8 |      |
|               |                                                                            |               |       | B<br>57.6     | C<br>44.2     | C<br>40.9     | C<br>46.3     | D<br>37.5     | C<br>46.3     | B<br>52.2     | C<br>45.9     | B<br>53.8     | C<br>43.6     | B<br>56.4     | B<br>54.3     | B<br>51.6     | E<br>23.1 | E<br>14.6 |      |
|               | 300℃處理後之絕<br>緣性                                                            |               | kV/mm |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |           |           |      |
|               | 初始→300℃處理<br>後 絕緣變化率                                                       | %             |       | A<br>10.0     | A<br>12.5     | B<br>17.4     | A<br>12.0     | B<br>18.2     | A<br>8.3      | B<br>15.7     | D<br>28.2     | A<br>14.3     | D<br>27.9     | A<br>11.4     | A<br>11.6     | A<br>14.5     | E<br>60.0 | E<br>76.3 |      |
|               |                                                                            |               |       |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |               |           |           |      |
|               | 剝離強度(密接<br>性)                                                              |               | N/cm  | D<br>1.8      | B<br>2.6      | B<br>2.8      | C<br>2.2      | B<br>2.8      | D<br>1.8      | A<br>3.2      | A<br>3.6      | B<br>2.8      | A<br>3.8      | C<br>2.4      | B<br>2.9      | A<br>3.0      | A<br>3.8  | A<br>3.8  |      |

【0122】 [表3]

|               |                                                          |           | 單位    | 實施<br>例 29 | 實施<br>例 30 | 實施<br>例 31 | 實施<br>例 32 | 實施<br>例 33 | 實施<br>例 34 |
|---------------|----------------------------------------------------------|-----------|-------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| 摻合            | 樹脂組成物                                                    | 環氧樹脂 1    | wt%   | 3.6        | 2.3        | 9.2        | 6.4        | 2.3        | 2.3        |
|               |                                                          | 環氧樹脂 2    |       | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|               |                                                          | 環氧樹脂 3    |       | 4.8        | 3.1        | 12.3       | 8.5        | 3.1        | 3.1        |
|               |                                                          | 環氧樹脂 4    |       | 2.4        | 1.5        | 6.2        | 4.3        | 1.5        | 1.5        |
|               |                                                          | 硬化劑 1     |       | -          | -          | 21.3       | 14.8       | -          | -          |
|               |                                                          | 硬化劑 2     |       | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|               |                                                          | 硬化劑 3     |       | 8.2        | 5.4        | -          | -          | 5.4        | 5.4        |
|               |                                                          | 硬化劑 4     |       | 0.2        | 0.1        | 0.5        | 0.3        | 0.1        | 0.1        |
|               | 無機填充材                                                    | 氮化硼 填充材 1 |       | 80.0       | 60.7       | 50.0       | 65.0       | 60.7       | 60.7       |
|               |                                                          | 氧化鋁 填充材 1 |       | -          | 26.0       | -          | -          | 26.0       | 26.0       |
|               |                                                          | 氧化鋁 填充材 2 |       | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|               |                                                          | 氧化鋁 填充材 3 |       | -          | -          | -          | -          | -          | -          |
|               | 分散劑                                                      | 分散劑 1     |       | 0.8        | 0.9        | 0.5        | 0.7        | 0.9        | 0.9        |
| 分散            | 三輥研磨機處理                                                  |           | -     | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          |            |
| 乾燥            | 乾燥                                                       | 溫度        | °C    | 80         | 80         | 80         | 80         | 70         | 130        |
|               |                                                          | 時間        | 分鐘    | 15         | 15         | 15         | 15         | 5          | 20         |
| 成膜            | 片預成形                                                     | -溫度       | °C    | 120        | 120        | 120        | 120        | 100        | 130        |
|               |                                                          | -壓力       | MPa   | 20         | 20         | 20         | 20         | 15         | 25         |
|               |                                                          | -時間       | 分鐘    | 45         | 45         | 45         | 45         | 30         | 60         |
|               |                                                          | 真空設定      |       | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          | 有          |
|               |                                                          | 預成形後之厚度   | μm    | 143        | 138        | 136        | 129        | 139        | 138        |
| 成形            | 正式成形後之厚度                                                 |           | μm    | 120        | 120        | 124        | 122        | 125        | 124        |
|               | 預成形後片之重量減少率<br>TG-DTA 法 50→200°C<br>(未實施預成形時，乾燥後片之重量減少率) |           | %     | A          | A          | A          | A          | B          | A          |
|               | 0.32                                                     |           |       | 0.29       | 0.11       | 0.31       | 0.71       | 0.15       |            |
| 積層<br>體物<br>性 | 散熱性                                                      |           | W/mK  | C          | A          | E          | D          | B          | A          |
|               |                                                          |           |       | 12.1       | 18.6       | 7.1        | 10.8       | 17.1       | 18.1       |
|               | 初始絕緣性                                                    |           | kV/mm | A          | A          | A          | A          | B          | A          |
|               |                                                          |           |       | 62.5       | 62.5       | 79.0       | 72.1       | 57.6       | 62.9       |
|               | 300°C處理後之絕緣性                                             |           | kV/mm | B          | B          | A          | A          | C          | B          |
|               |                                                          |           |       | 57.5       | 57.5       | 75.8       | 67.2       | 48.0       | 58.1       |
|               | 初始→300°C處理後 絕緣變化率                                        |           | %     | A          | A          | A          | A          | B          | A          |
|               |                                                          |           |       | 8.0        | 8.0        | 4.1        | 6.8        | 16.7       | 7.7        |
|               | 剝離強度（密接性）                                                |           | N/cm  | B          | A          | A          | A          | A          | D          |
| 2.6           |                                                          |           |       | 3.0        | 6.1        | 3.9        | 3.1        | 1.9        |            |

【0123】 [表4]

|               |                                                     |               | 單位   | 比較<br>例 3            | 比較<br>例 4 | 比較<br>例 5            | 比較<br>例 6 | 比較<br>例 7            | 比較<br>例 8 | 比較<br>例 9            | 比較<br>例 10 | 比較<br>例 11           | 比較<br>例 12 | 比較<br>例 13           | 比較<br>例 14 | 比較<br>例 15           | 比較<br>例 16 | 比較<br>例 17           | 比較<br>例 18 | 比較<br>例 19 | 比<br>較<br>例<br>20 |                      |
|---------------|-----------------------------------------------------|---------------|------|----------------------|-----------|----------------------|-----------|----------------------|-----------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|----------------------|------------|------------|-------------------|----------------------|
| 摻合            | 樹脂組<br>成物                                           | 環氧樹脂 1        | wt%  | 3.3                  | 3.3       | 3.3                  | 3.3       | 3.3                  | 3.3       | 3.3                  | 3.3        | 3.3                  | 3.3        | 3.3                  | 3.3        | 3.3                  | 3.3        | 14.5                 | 2.3        | 2.3        | 2.3               |                      |
|               |                                                     | 環氧樹脂 2        |      | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 9.8                  | -          | -          | -                 |                      |
|               |                                                     | 環氧樹脂 3        |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | 3.1        | 3.1        | 3.1               |                      |
|               |                                                     | 環氧樹脂 4        |      | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2       | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 2.2                  | 2.2        | 9.8                  | 1.5        | 1.5        | 1.5               |                      |
|               |                                                     | 硬化劑 1         |      | 4.7                  | 4.7       | 4.7                  | 4.7       | 4.7                  | 4.7       | 4.7                  | 4.7        | 4.7                  | 4.7        | 4.7                  | 4.7        | 4.7                  | 4.7        | 20.4                 | -          | -          | -                 |                      |
|               |                                                     | 硬化劑 2         |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -          | -                 |                      |
|               |                                                     | 硬化劑 3         |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | 5.4        | 5.4        | 5.4               |                      |
|               |                                                     | 硬化劑 4         |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | 0.1        | 0.1        | 0.1               |                      |
|               | 無機填<br>充材                                           | 氮化硼 填<br>充材 1 |      | 60.7                 | 60.7      | 60.7                 | 60.7      | 60.7                 | 60.7      | 60.7                 | 60.7       | 60.7                 | 60.7       | 60.7                 | 60.7       | 60.7                 | 60.7       | 60.7                 | 45.0       | 60.7       | 60.7              | 60.7                 |
|               |                                                     | 氧化鋁 填<br>充材 1 |      | 26.0                 | 26.0      | 26.0                 | 26.0      | 26.0                 | 26.0      | 26.0                 | 26.0       | 26.0                 | 26.0       | 26.0                 | 26.0       | 26.0                 | 26.0       | 26.0                 | -          | 26.0       | 26.0              | 26.0                 |
|               |                                                     | 氧化鋁 填<br>充材 2 |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -          | -                 | -                    |
|               |                                                     | 氧化鋁 填<br>充材 3 |      | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -         | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -                    | -          | -          | -                 | -                    |
|               | 分散劑                                                 | 分散劑 1         |      | 0.9                  | 0.9       | 0.9                  | 0.9       | 0.9                  | 0.9       | 0.9                  | 0.9        | 0.9                  | 0.9        | 0.9                  | 0.9        | 0.9                  | 0.9        | 0.9                  | 0.9        | 0.5        | 0.9               | 0.9                  |
| 分散            | 三輥研磨機處理                                             |               | -    | 有                    | 有         | 有                    | 有         | 有                    | 有         | 有                    | 有          | 有                    | 有          | 有                    | 有          | 有                    | 有          | 有                    | 有          | 有          | 有                 |                      |
| 乾燥            | 乾燥                                                  | 溫度            | ℃    | 50                   | 150       | 80                   | 80        | 80                   | 50        | 150                  | 80         | 80                   | 90         | 50                   | 150        | 90                   | 90         | 80                   | 80         | 50         | 150               |                      |
|               |                                                     | 時間            | 分鐘   | 3                    | 25        | 15                   | 15        | 10                   | 3         | 20                   | 10         | 10                   | 15         | 3                    | 30         | 15                   | 15         | 15                   | 15         | 3          | 25                |                      |
| 成膜            | 片預成<br>形                                            | -溫度           | ℃    | 120                  | 120       | 70                   | 150       | -                    | 120       | 120                  | 70         | 150                  | -          | 120                  | 120        | 70                   | 150        | -                    | -          | 120        | 120               |                      |
|               |                                                     | -壓力           | MPa  | 20                   | 20        | 15                   | 20        | -                    | 20        | 20                   | 15         | 20                   | -          | 20                   | 20         | 15                   | 20         | -                    | -          | 20         | 20                |                      |
|               |                                                     | -時間           | 分鐘   | 45                   | 45        | 45                   | 45        | -                    | 30        | 30                   | 30         | 30                   | -          | 60                   | 60         | 60                   | 60         | -                    | -          | 45         | 45                |                      |
|               |                                                     | 真空設定          |      | 有                    | 有         | 有                    | 有         | -                    | 有         | 有                    | 有          | 有                    | -          | 有                    | 有          | 有                    | 有          | -                    | -          | 有          | 有                 |                      |
|               | 預成形後之厚度                                             |               | μm   | 131                  | 132       | 132                  | 134       | -                    | 104       | 102                  | 100        | 101                  | -          | 248                  | 259        | 254                  | 254        | -                    | -          | 136        | 135               |                      |
| 成形            | 正式成形後之厚度                                            |               | μm   | 123                  | 125       | 124                  | 123       | 96                   | 96        | 96                   | 95         | 94                   | 223        | 221                  | 225        | 220                  | 221        | 121                  | 126        | 123        | 121               |                      |
|               | 預成形後片之重量<br>減少率                                     |               |      | C                    | D         | C                    | D         | C                    | C         | D                    | C          | D                    | C          | C                    | D          | C                    | D          | C                    | C          | C          | A                 |                      |
|               | TG-DTA 法<br>50→200℃<br>(未實施預成形<br>時，乾燥後片之重<br>量減少率) |               | %    | 1.06                 | 0.08      | 1.22                 | 0.05      | 1.90                 | 1.04      | 0.06                 | 1.10       | 0.04                 | 2.90       | 1.22                 | 0.09       | 1.34                 | 0.08       | 1.60                 | 1.90       | 1.01       | 0.05              |                      |
| 積層<br>體物<br>性 | 散熱性                                                 | W/mK          | A    | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A         | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A         | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A         | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A          | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A          | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A          | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | A          | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 | F          | A          | A                 | 電路<br>剝離<br>無法<br>測定 |
|               |                                                     |               | 18.8 |                      | 18.6      |                      | 19.2      |                      | 19.6      |                      | 19.0       |                      | 18.4       |                      | 18.4       |                      | 18.6       |                      | 6.2        | 18.1       | 18.0              |                      |
|               | 初始絕緣性                                               | kV/mm         | A    |                      | B         |                      | B         |                      | B         |                      | C          |                      | A          |                      | A          |                      | A          |                      | A          |            |                   |                      |
|               |                                                     |               | 60.2 |                      | 59.7      |                      | 50.0      |                      | 50.0      |                      | 48.4       |                      | 60.1       |                      | 61.5       |                      | 60.0       |                      | 64.5       | 60.3       | 60.2              |                      |
|               | 300℃處理後之絕<br>緣性                                     | kV/mm         | D    |                      | E         |                      | E         |                      | D         |                      | E          |                      | E          |                      | D          |                      | D          |                      | C          | E          | D                 |                      |
|               |                                                     |               | 32.5 |                      | 25.8      |                      | 18.8      |                      | 33.3      |                      | 29.5       |                      | 20.6       |                      | 39.8       |                      | 36.4       |                      | 49.6       | 25.4       | 39.0              |                      |
|               | 初始→300℃處理<br>後 絕緣變化率                                | %             | E    |                      | E         |                      | E         |                      | E         |                      | E          |                      | E          |                      | E          |                      | E          |                      | C          | E          | E                 |                      |
|               |                                                     |               | 45.9 |                      | 56.8      |                      | 62.5      |                      | 33.3      |                      | 39.1       |                      | 65.7       |                      | 35.3       |                      | 39.4       |                      | 23.1       | 57.9       | 35.1              |                      |
| 剝離強度（密接<br>性） | N/cm                                                | A             | A    | B                    | B         | A                    | A         | A                    | A         | A                    | A          | A                    |            |                      |            |                      |            |                      |            |            |                   |                      |
|               |                                                     | 3.4           | 3.6  | 2.8                  | 2.8       | 3.0                  | 3.0       | 3.2                  | 3.4       | 6.2                  | 3.2        | 3.1                  |            |                      |            |                      |            |                      |            |            |                   |                      |

※表1～4中，正式成形後之厚度係指於初始絕緣性試驗中使用之積層體中之絕緣性片之硬化物之厚度。

【0124】 如以上之實施例所示，於各實施例中，自50℃升溫至200℃時之重量減少率為0.10～1.00%之範圍內，故即便氮化硼凝集粒子之含量為50質量%

以上之高填充，於硬化後以300°C進行熱處理亦能抑制絕緣性下降。又，於將金屬板、金屬基板重疊後進行硬化而製作之積層體中，能夠提高絕緣性片之硬化物相對於金屬板之剝離強度。

另一方面，於比較例1~3、5、7、8、10、12、13、15、18、19中，自50°C升溫至200°C時之重量減少率超過1.0%，因此當於硬化後以300°C進行熱處理時，絕緣性大幅下降。

又，於比較例4、6、9、11、14、16、20中，重量減少率未達0.10%，因此絕緣性片相對於金屬板之剝離強度變得不充分，於積層體中，金屬板（電路）自絕緣性片之硬化物剝離，無法實施各評價。

進而，於比較例17中，氮化硼凝集粒子之含量未達50質量%，因此無法充分地提高散熱性。

【符號說明】

【0125】

- 10:絕緣性片之硬化物
- 11:金屬基板
- 12:金屬板
- 13:積層體
- 14:半導體元件
- 15:半導體裝置
- 16:連接導電部
- 17:金屬線
- 19:密封樹脂
- 20:引線

## 【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種絕緣性片，其係包含熱硬化性樹脂與無機填充材者，且上述無機填充材包含氮化硼凝集粒子，

上述氮化硼凝集粒子之含量相對於絕緣性片100質量%，為50質量%以上，

使用示差熱重量同步測定裝置，以乾燥氮氣氣流下且升溫速度10°C/分鐘之條件，使上述絕緣性片自50°C升溫至200°C時之重量減少率為0.10%以上1.00%以下。

【請求項2】如請求項1之絕緣性片，其中，上述無機填充材含有絕緣性實心填料。

【請求項3】如請求項2之絕緣性片，其中，絕緣性實心填料含有多面體氧化鋁。

【請求項4】如請求項1至3中任一項之絕緣性片，其中，上述絕緣性片含有硬化劑，且

上述硬化劑含有：具有萘骨架之氰酸酯樹脂或醯亞胺寡聚物。

【請求項5】如請求項1至4中任一項之絕緣性片，其進而含有分散劑。

【請求項6】如請求項1至5中任一項之絕緣性片，其中，上述熱硬化性樹脂含有重量平均分子量為10000以上之熱硬化性樹脂與重量平均分子量未達10000之熱硬化性樹脂。

【請求項7】如請求項1至6中任一項之絕緣性片，其中，將鋁板重疊於一面且將銅箔重疊於另一面並使絕緣性片硬化而獲得之積層體中，依據JIS C648將上述銅箔自絕緣性片之硬化物剝離時之剝離強度所表示之剝離強度為1.0 N/cm以上。

【請求項8】一種絕緣性片之硬化物，其係請求項1至7中任一項之絕緣性片之硬化物。



【請求項9】一種積層體，其具備請求項8之絕緣性片之硬化物、金屬基底板及金屬板，且於上述金屬基底板上依序具備上述絕緣性片之硬化物與上述金屬板。

【請求項10】如請求項9之積層體，其中，上述積層體為電路基板。

【請求項11】如請求項9或10之積層體，其中，上述金屬板具有電路圖案。

【請求項12】一種半導體裝置，其具備請求項9至11中任一項之積層體與設置於上述金屬板之上之半導體元件。

