

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-249458

(P2013-249458A)

(43) 公開日 平成25年12月12日(2013.12.12)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8G 59/46 (2006.01)	CO8G 59/46	4J002
CO8L 63/00 (2006.01)	CO8L 63/00 C	4J036
CO8K 5/20 (2006.01)	CO8K 5/20	4M109
CO8K 5/54 (2006.01)	CO8K 5/54	
CO8K 3/00 (2006.01)	CO8K 3/00	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 28 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2012-127513 (P2012-127513)	(71) 出願人	000004455 日立化成株式会社 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号
(22) 出願日	平成24年6月4日(2012.6.4)	(74) 代理人	110001519 特許業務法人太陽国際特許事務所
		(72) 発明者	田中 賢治 茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式会社内
		(72) 発明者	濱田 光祥 茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式会社内
		(72) 発明者	古沢 文夫 茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 封止用エポキシ樹脂成形材料及び電子部品装置

(57) 【要約】

【課題】 耐リフロー性に優れる封止体を形成可能な封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止された素子を備える電子部品装置を提供する。

【解決手段】 1分子中にエポキシ基を2以上有するエポキシ樹脂と、硬化剤と、1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体とを含有する封止用エポキシ樹脂成形材料である。また該封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える電子部品装置である。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

(A) 1分子中にエポキシ基を2以上有するエポキシ樹脂と、
(B) 硬化剤と、
(C) 1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体と、
を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 2】

前記カルボン酸アミド誘導体の含有率が、0.1質量%以上1.0質量%未満である請求項1に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 3】

(D) シラン化合物を更に含有する請求項1又は請求項2に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 4】

(E) 硬化促進剤を更に含有する請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 5】

(F) 無機充てん剤を更に含有する請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 6】

請求項1～請求項5のいずれか1項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える電子部品装置。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、封止用エポキシ樹脂成形材料及び電子部品装置に関する。

【背景技術】**【0002】**

従来から、トランジスタ、IC等の電子部品封止の分野ではエポキシ樹脂成形材料が広く用いられている。この理由としては、エポキシ樹脂が電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性等のバランスがとれているためである。特に、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂とノボラック型フェノール硬化剤の組合せはこれらのバランスに優れており、封止用成形材料のベース樹脂の主流になっている。

【0003】

近年の電子機器の小型化、軽量化、高性能化に伴い、実装の高密度化が進み、電子部品装置は従来のピン挿入型から、表面実装型のパッケージが主流になってきている。電子部品装置を配線板に取り付ける場合、従来のピン挿入型パッケージはピンを配線板に挿入した後、配線板裏面からはんだ付けを行うため、パッケージが直接高温にさらされることはなかった。しかし、表面実装型パッケージでは電子部品装置全体がはんだバスやリフロー装置などで処理されるため、パッケージが直接はんだ付け温度にさらされる。この結果、パッケージが吸湿していた場合、はんだ付け時に吸湿水分が急激に膨張し、接着界面の剥離やパッケージクラックが発生し、実装時のパッケージの信頼性を低下させるという問題があった。

【0004】

上記の問題を解決する対策として、半導体装置内部の吸湿水分を低減するためにICの防湿梱包や、配線板へ実装する前に予めICを十分乾燥して使用するなどの方法もとられている。しかしこれらの方法は手間がかかり、コストも高くなる傾向がある。別の対策としては封止用成形材料に含まれる充てん剤の含有量を増加する方法が挙げられる(例えば、特許文献1参照)。この方法では半導体装置内部の吸湿水分は低減するものの、封止用成形材料の流動性が大幅に低下してしまう問題があった。封止用成形材料の流動性が低いと成形時に金線流れ、ボイド、ピンホール等の発生といった問題が生じる場合があること

10

20

30

40

50

が知られている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開平06-224328号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、耐リフロー性に優れる封止体を形成可能な封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止された素子を備える電子部品装置を提供することを課題とする。

10

【課題を解決するための手段】

【0007】

前記課題を解決するための具体的手段は以下の通りである。

<1> (A) 1分子中にエポキシ基を2以上有するエポキシ樹脂と、(B) 硬化剤と、(C) 1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体とを含有する封止用エポキシ樹脂成形材料である。

【0008】

<2> 前記カルボン酸アミド誘導体の含有率が、0.1質量%以上1.0質量%未満である前記<1>に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料である。

20

【0009】

<3> (D) シラン化合物を更に含有する前記<1>又は<2>に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料である。

【0010】

<4> (E) 硬化促進剤を更に含有する前記<1>~<3>のいずれか1つに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料である。

【0011】

<5> (F) 無機充てん剤を更に含有する前記<1>~<4>のいずれか1つに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料である。

【0012】

<6> 前記<1>~<5>のいずれか1つに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える電子部品装置である。

30

【発明の効果】

【0013】

本発明によれば、耐リフロー性に優れる封止体を形成可能な封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止された素子を備える電子部品装置を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0014】

<封止用エポキシ樹脂成形材料>

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、(A) 1分子中にエポキシ基を2以上有するエポキシ樹脂(以下、単に「エポキシ樹脂」ともいう)の少なくとも1種と、(B) 硬化剤の少なくとも1種と、(C) 1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体の少なくとも1種とを含有する。前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、必要に応じてその他の成分を更に含んでもよい。以下、(C) 1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体を、単に「カルボン酸アミド誘導体」ともいう。

40

【0015】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が、エポキシ樹脂及び硬化剤に加えて、前記カルボン酸アミド誘導体を含むことで、硬化後の耐リフロー性に優れる。これは例えば以下のように考えることができる。カルボン酸アミド誘導体に含まれるカルボン酸アミド基が金属と

50

相互作用することで、金属とカルボン酸アミド誘導体との間に良好な接着性が発現する。一方、カルボン酸アミド誘導体に含まれるフェノール性水酸基がエポキシ樹脂と反応して、硬化したエポキシ樹脂にカルボン酸アミド誘導体が固定化される。すなわち金属と硬化したエポキシ樹脂とがカルボン酸アミド誘導体を介して結合することになる。このような結合状態は柔軟性を有するため、高温状態においても硬化したエポキシ樹脂と金属との接着性が向上し、硬化後の耐リフロー性に優れるものと推察される。

【0016】

以下、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料について詳細に説明する。なお、本明細書において「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。さらに組成物中の各成分の含有量は、組成物中

10

【0017】

(C)カルボン酸アミド誘導体

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体の少なくとも1種を含む。前記カルボン酸アミド誘導体は、分子内に少なくとも1つのカルボン酸アミド基と、少なくとも1つのフェノール性水酸基とを有する化合物であれば特に制限されない。前記カルボン酸アミド誘導体が有するフェノール性水酸基の数は、耐リフロー性の観点から、1～2であることが好ましく、1であることがより好ましい。またカルボン酸アミド誘導体が有するアミド基の数は、耐リフロー性の

20

【0018】

前記カルボン酸アミド誘導体は例えば、フェノール性水酸基を有する芳香環基にカルボン酸アミド基が直接結合した化合物であっても、フェノール性水酸基を有する芳香環基にアルキレン基、アリーレン基等の連結基を介してカルボン酸アミド基が結合した化合物であってもよい。またフェノール性水酸基を有する芳香環基における芳香環基は、芳香族炭化水素環基であっても、芳香族複素環基であってもよく、また芳香環基に芳香環又は脂肪族環が縮環した多環構造を有していてもよい。

【0019】

前記カルボン酸アミド誘導体は、耐リフロー性の観点から、フェノール性水酸基を有する芳香環基にカルボン酸アミド基が直接結合した化合物であることが好ましく、フェノール性水酸基を有する芳香族炭化水素環基にカルボン酸アミド基が直接結合した化合物であることが好ましい。

30

【0020】

前記カルボン酸アミド誘導体が、フェノール性水酸基を有する芳香環基にカルボン酸アミド基が直接結合する態様である場合、芳香環基にカルボン酸アミド基のカルボニル基が結合する態様であっても、芳香環基にカルボン酸アミド基の窒素原子が結合する態様であってもよい。中でも、耐リフロー性の観点から、芳香環基にカルボン酸アミド基のカルボニル基が結合する態様であることが好ましい。

【0021】

また前記カルボン酸アミド誘導体が、フェノール性水酸基を有する芳香環基にカルボン酸アミド基が直接結合する態様である場合、芳香環基におけるフェノール性水酸基の結合位置に対するカルボン酸アミド基の結合位置は特に制限されず、フェノール性水酸基に対してオルト位、メタ位、パラ位のいずれであってもよい。

40

【0022】

前記カルボン酸アミド誘導体は、フェノール性水酸基及びカルボン酸アミド基以外のその他の置換基を更に有していてもよい。前記その他の置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、炭素数2～6のアルケニル基、炭素数1～6のアルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基等を挙げることができる。前記その他の置換基は可能であれば更に置換基を有していてもよい。前記その他の置換基が有する置換基としては、ヒドロキシ基、

50

炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、炭素数 2 ~ 6 のアルケニル基、炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基等を挙げることができる。

【0023】

前記カルボン酸アミド誘導体におけるその他の置換基の置換位置は特に制限されない。フェノール性水酸基を有する芳香環基上であっても、カルボン酸アミド基の窒素原子上であってもよい。またその他の置換基の置換数も特に制限されない。

【0024】

前記カルボン酸アミド誘導体がカルボン酸アミド基の窒素原子上にその他の置換基を有する場合、その他の置換基は、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、又は炭素数 6 ~ 14 の芳香族炭化水素基であることが好ましい。またカルボン酸アミド基の窒素原子上の置換基数は、耐リフロー性の観点から、1 であることが好ましい。

10

【0025】

前記カルボン酸アミド誘導体の分子量は特に制限されない。中でも耐リフロー性の観点から、137 ~ 500 であることが好ましく、137 ~ 350 であることがより好ましい。また前記カルボン酸アミド誘導体の水酸基当量は特に制限されない。耐リフロー性の観点から、76 g / eq ~ 500 g / eq であることが好ましく、90 g / eq ~ 350 g / eq であることがより好ましい。ここでカルボン酸アミド誘導体の水酸基当量とは、カルボン酸アミド誘導体に含まれる水酸基 1 モルあたりのカルボン酸アミド誘導体の分子量を意味する。

【0026】

前記カルボン酸アミド誘導体は、吸水率上昇の抑制及び接着性向上の観点から、1 分子中にフェノール性水酸基を 1 以上有し、かつアミド基 (- C O - N H -) の両側 (すなわちカルボニル基及び窒素原子) に、それぞれ炭素数 6 ~ 14 の芳香族炭化水素基 (より好ましくは、フェニル基又はナフチル基) が結合した 2 級のカルボン酸アミド誘導体であることが好ましい。

20

【0027】

前記カルボン酸アミド誘導体の融点は特に制限されない。例えばリフロー性の観点から、前記カルボン酸アミド誘導体の融点は、50 ~ 300 であることが好ましく、100 ~ 250 であることがより好ましい。

【0028】

以下に前記カルボン酸アミド誘導体の具体例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

30

カルボン酸アミド誘導体の具体例としては、p - アセトアミドフェノール、サリチルアミド、サリチルアニリド、3 - ヒドロキシ - 2 - ナフトアミド、3 - ヒドロキシ - 2 - ナフトアニリド、3 - ヒドロキシ - N - (1 - ナフチル) - 2 - ナフトアミド、3 - ヒドロキシ - 2 ' - メチル - 2 - ナフトアニリド、3 - ヒドロキシ - 2 ' - メトキシ - 2 - ナフトアニリド、2 ' - エトキシ - 3 - ヒドロキシ - 2 - ナフトアニリド、3 - ヒドロキシ - 4 ' - メトキシ - 2 - ナフトアニリド、3 - ヒドロキシ - N - (2 - ヒドロキシエチル) - 2 - ナフトアミド、2 , 4 - ジヒドロキシ - N - (2 - ヒドロキシエチル) ベンズアミド、これらの位置異性体、これらの置換体等が挙げられる。

40

【0029】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料における前記カルボン酸アミド誘導体の含有率は特に制限されない。カルボン酸アミド誘導体の含有率は、封止用エポキシ樹脂成形材料の総質量中に 0 . 10 質量 % 以上 1 . 00 質量 % 未満が好ましい。カルボン酸アミド誘導体の含有率が 0 . 10 質量 % 以上であると、耐リフロー性がより向上する傾向がある。またカルボン酸アミド誘導体の含有率が 1 . 00 質量 % 未満であると、形成される樹脂硬化物の硬度がより向上する傾向がある。

さらにカルボン酸アミド誘導体の含有率は、耐リフロー性の観点から、0 . 15 質量 % 以上であることが好ましく、0 . 20 質量 % 以上であることがより好ましい。またカルボン酸アミド誘導体の含有率は、形成される樹脂硬化物の硬度の観点から、0 . 95 質量 %

50

以下であることが好ましく、0.75質量%以下であることがより好ましい。

【0030】

また前記封止用エポキシ樹脂成形材料における前記カルボン酸アミド誘導体と後述する硬化剤の含有比率は特に制限されない。耐リフロー性と形成される樹脂硬化物の硬度の観点から、硬化剤の水酸基当量に対するカルボン酸アミド誘導体の水酸基当量の比が、0.01~0.20であることが好ましく、0.02~0.15であることがより好ましい。

【0031】

(A) エポキシ樹脂

本発明に用いられるエポキシ樹脂は、1分子中にエポキシ基を2以上有するものであれば特に制限はなく、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般的に使用されているものから適宜選択して用いることができる。エポキシ樹脂として具体的には、フェノール・ノボラック型エポキシ樹脂、オルトクレゾール・ノボラック型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び - ナフトール、 - ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類からなる群より選ばれる少なくとも1種と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したノボラック型エポキシ樹脂；アルキル置換、芳香環置換又は非置換のビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ピフェノール、チオジフェノール等のジグリシジルエーテルであるエポキシ樹脂；スチルベン型エポキシ樹脂；ヒドロキノン型エポキシ樹脂；フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂のエポキシ化物（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂）；ナフタレン環を有するエポキシ樹脂；フェノール類及びナフトール類の少なくとも1種とジメトキシパラキシレン又はビス（メトキシメチル）ピフェニルから合成されるフェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂のエポキシ化物；トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；テルペン変性エポキシ樹脂；オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂；脂環族エポキシ樹脂などが挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0032】

中でも前記エポキシ樹脂は、流動性と硬化性の両立の観点からはアルキル置換、芳香環置換又は非置換のピフェノールのジグリシジルエーテルであるピフェニル型エポキシ樹脂（例えば、三菱化学株式会社製商品名：YX-4000、YL-6121H）を含有していることが好ましい。また硬化性の観点からはノボラック型エポキシ樹脂（例えば、住友化学工業株式会社製商品名：ESC N-190）を含有していることが好ましい。また低吸湿性の観点からはジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（例えば、DIC株式会社製商品名：HP-7200）を含有していることが好ましい。また耐熱性及び低反り性の観点からはナフタレン型エポキシ樹脂（例えば、日本化薬株式会社製商品名：NC-7300）を含有していることが好ましい。また流動性と難燃性の両立の観点からはアルキル置換若しくは芳香環置換又は非置換のビスフェノールFのジグリシジルエーテルであるビスフェノールF型エポキシ樹脂（例えば、新日鐵化学株式会社製商品名YSLV-80XY）を含有していることが好ましい。また流動性とリフロー性の両立の観点からはアルキル置換若しくは芳香環置換又は非置換のチオジフェノールのジグリシジルエーテルであるチオジフェノール型エポキシ樹脂（例えば、新日鐵化学株式会社製商品名：YSLV-120TE）を含有していることが好ましい。また硬化性と難燃性の両立の観点からはアルキル置換若しくは芳香環置換又は非置換のフェノールとジメトキシパラキシレン又はビス（メトキシメチル）ピフェニルから合成されるフェノール・アラルキル型エポキシ樹脂（例え

10

20

30

40

50

ば日本化薬株式会社製商品名NC-2000L、NC-3000S、CER-3000L)を含有していることが好ましい。また保存安定性と難燃性の両立の観点からはアルキル置換若しくは芳香環置換又は非置換のナフトール類とジメトキシパラキシレンから合成されるナフトール・アラルキル樹脂のエポキシ化物(例えば、新日鐵化学株式会社製商品名ESN-375、ESN-175)を含有していることが好ましい。また硬化性とTgの向上の観点からはフェノールとサリチルアルデヒドから合成されるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂(例えば、日本化薬株式会社製商品名:EPN-502H)が好ましい。

【0033】

また上記以外にも、低反りの観点からはジヒドロアントラセン型エポキシ樹脂(例えば、三菱化学社製商品名:YX-8800)が好ましく、耐リフロー性と硬化性と流動性のバランスの観点からはメトキシナフタレン型エポキシ樹脂(DIC株式会社製商品名HP-5000など)が好ましい。

10

【0034】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、多官能エポキシ樹脂として、ビフェニル型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、チオジフェノール型エポキシ樹脂、フェノール・アラルキル樹脂のエポキシ化物、ナフトール・アラルキル樹脂のエポキシ化物、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、ジヒドロアントラセン型エポキシ樹脂、及びメトキシナフタレン型エポキシ樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種のエポキシ樹脂(以下、「特定エポキシ樹脂」ともいう)を含むことが好ましい。

20

【0035】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が、前記特定エポキシ樹脂を含む場合、前記特定エポキシ樹脂の含有率は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量中に20質量%以上であることが好ましく、30質量%以上であることがより好ましく、50質量%以上であることがさらに好ましい。

【0036】

前記特定エポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。特定エポキシ樹脂の2種以上を組み合わせ用いる場合、前記特定エポキシ樹脂の含有率は、その性能をより効果的に発揮する観点から、エポキシ樹脂全量中に50質量%以上であることが好ましく、60質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましい。

30

【0037】

前記エポキシ樹脂のエポキシ当量は特に制限されない。中でも成形性、耐リフロー性及び電氣的信頼など各種特性バランスの観点から、100g/eq~1000g/eqであることが好ましく、150g/eq~500g/eqであることがより好ましい。

【0038】

また前記エポキシ樹脂の軟化点又は融点は特に制限されない。中でも成形性、耐リフロー性の観点から、軟化点又は融点は、40~180であることが好ましく、封止用エポキシ樹脂成型材料作製時における取扱い性の観点からは50~130であることがより好ましい。

40

【0039】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料におけるエポキシ樹脂の含有率は、成形性、耐リフロー性の観点から、3質量%~15質量%であることが好ましく、5質量%~12質量%であることがより好ましい。

【0040】

(B) 硬化剤

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、硬化剤の少なくとも1種を含む。前記硬化剤は、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般に使用されているものであれば特に制限はない。たとえば、フェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、チオジフェノール、アミノフェノール等のフェノール類

50

及び - ナフトール、 - ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類からなる群より選択される少なくとも1種と、ホルムアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック型フェノール樹脂；フェノール類及びナフトール類からなる群より選択される少なくとも1種と、ジメトキシパラキシレン又はビス(メトキシメチル)ピフェニルとから合成されるフェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂；フェノール・ノボラック構造とフェノール・アラルキル構造とがランダム、ブロック又は交互に繰り返された共重合型フェノール・アラルキル樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂；メタキシリレン変性フェノール樹脂；メラミン変性フェノール樹脂；テルペン変性フェノール樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂；シクロペンタジエン変性フェノール樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂が挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

10

20

30

40

50

【0041】

中でも、流動性、難燃性及び耐リフロー性の観点からはフェノール・アラルキル樹脂(例えば、明和化成株式会社製商品名MEH-7851及びMEH-7800、三井化学株式会社製商品名：XLC)及びナフトール・アラルキル樹脂(例えば、新日鐵化学株式会社製商品名SN-475、SN-170)からなる群より選ばれる少なくとも1種が好ましい。また低吸湿性の観点からはジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂(例えば、新日本石油化学株式会社製商品名：DPP)が好ましい。また硬化性の観点からはノボラック型フェノール樹脂(例えば、明和化成株式会社製商品名：H-4及びH-100)が好ましい。

【0042】

前記硬化剤は、フェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、及びノボラック型フェノール樹脂からなる群より選ばれるフェノール樹脂(以下、「特定フェノール樹脂」ともいう)の少なくとも1種を含有していることが好ましい。

【0043】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料に含まれる硬化剤のうち、フェノール・アラルキル樹脂及びナフトール・アラルキル樹脂は、難燃性の観点からその一部又は全部がアセナフチレン等の重合性モノマーと予備混合されていることが好ましい。アセナフチレンはアセナフチレンを脱水素して得ることができるが、市販品を用いてもよい。また、アセナフチレンの代わりにアセナフチレンの重合物又はアセナフチレンと他の芳香族オレフィンとの重合物として用いることもできる。アセナフチレンの重合物又はアセナフチレンと他の芳香族オレフィンとの重合物を得る方法としては、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合等が挙げられる。また、重合に際しては従来公知の触媒を用いることができるが、触媒を使用せずに熱だけで行うこともできる。この際、重合温度は80～160が好ましく、90～150がより好ましい。得られるアセナフチレンの重合物又はアセナフチレンと他の芳香族オレフィンとの重合物の軟化点は、60～150が好ましく、70～130がより好ましい。

前記重合物の軟化点が60以上であると、成形時の染み出しが抑制され、成形性が向上する傾向にある。また150以下であると、エポキシ樹脂及び硬化剤との相溶性が向上する傾向にある。

【0044】

アセナフチレンと共重合させる他の芳香族オレフィンとしては、スチレン、-メチルスチレン、インデン、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、ビニルナフタレン、ビニルピフェニル、これらのアルキル置換体等が挙げられる。また、上記した芳香族オレフィン以外に本発明の効果に支障の無い範囲で脂肪族オレフィンを併用することもできる。脂肪族オレフィンとしては、(メタ)アクリル酸及びそれらのエステル、無水マレイン酸、無水イタコン酸、フマル酸、それらのエステル等が挙げられる。

これら脂肪族オレフィンの使用量は、フェノール・アラルキル樹脂及びナフトール・ア

ラルキル樹脂との予備混合に供される重合モノマー全量中、20質量%以下が好ましく、9質量%以下がより好ましい。

【0045】

硬化剤の一部又は全部とアセナフチレンとの予備混合の方法としては、硬化剤及びアセナフチレンをそれぞれ微細に粉碎し固体状態のままミキサー等で混合する方法、両成分を溶解する溶媒に均一に溶解させた後、溶媒を除去する方法、硬化剤及びアセナフチレンの少なくとも一方の軟化点以上の温度で両者を溶融混合する方法等で行うことができる。中でも均一な混合物が得られて不純物の混入が少ないことから、溶融混合法が好ましい。

前記の方法により予備混合物（アセナフチレン変性硬化剤）が製造される。溶融混合は、硬化剤及びアセナフチレンの少なくとも一方の軟化点以上の温度であれば制限はない。中でも100～250が好ましく、120～200がより好ましい。また、溶融混合は両者が均一に混合すれば混合時間に制限はない。中でも1時間～20時間が好ましく、2時間～15時間がより好ましい。硬化剤とアセナフチレンを予備混合する場合、混合中にアセナフチレンが重合もしくは硬化剤と反応しても構わない。

10

【0046】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が、前記に例示したフェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、及びノボラック型フェノール樹脂からなる群より選ばれる特定フェノール樹脂を含む場合、これら特定フェノール樹脂の含有率は、その性能をより効果的に発揮する観点から、硬化剤全量中30質量%以上とすることが好ましく、50質量%以上がより好ましい。

20

【0047】

前記特定フェノール樹脂は、いずれか1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。前記特定フェノール樹脂を2種以上組み合わせ用いる場合、その含有率は、硬化剤全量中に合わせて50質量%以上とすることが好ましく、60質量%以上がより好ましく、80質量%以上がさらに好ましい。

【0048】

前記硬化剤の水酸基当量は特に制限されない。中でも成形性、耐リフロー性、電気的信頼性等の各種特性バランスの観点から、70g/eq～1000g/eqであることが好ましく、80g/eq～500g/eqであることがより好ましい。

また前記硬化剤の軟化点又は融点は特に制限されない。中でも成形性と耐リフロー性の観点から、軟化点又は融点は40～180であることが好ましく、封止用エポキシ樹脂成型材料作製時における取扱い性の観点からは50～130であることがより好ましい。

30

【0049】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料において、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤との当量比、すなわちエポキシ基に対する硬化剤中の水酸基数の比(硬化剤中の水酸基数/エポキシ樹脂中のエポキシ基数)は、特に制限はない。それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5～2.0の範囲に設定されることが好ましく、0.6～1.3がより好ましい。さらに成形性、耐リフロー性に優れる封止用エポキシ樹脂成形材料を得るためには0.8～1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

40

【0050】

更に前記封止用エポキシ樹脂成形材料において、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤及び(C)カルボン酸アミド誘導体との当量比、すなわちエポキシ基に対する硬化剤及びカルボン酸アミド誘導体の総量に含まれる水酸基数の比(硬化剤及びカルボン酸アミド誘導体の水酸基数/エポキシ樹脂中のエポキシ基数)は特に制限されない。それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5以上2.0以下の範囲に設定されることが好ましく、0.6以上1.3以下がより好ましい。さらに成形性、耐リフロー性に優れる封止用エポキシ樹脂成形材料を得るためには0.8以上1.2以下の範囲に設定されることがさらに好ましい。

【0051】

50

(D) シラン化合物

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、シラン化合物の少なくとも1種を更に含むことが好ましい。シラン化合物を含むことで、流動性、耐リフロー性、接着性がより向上する。前記シラン化合物は、少なくとも1つのケイ素-炭素結合を有する化合物であれば特に制限はなく、シランカップリング剤として通常用いられる化合物から適宜選択して用いることができる。前記シラン化合物は、エポキシ基、メルカプト基、アミノ基、ウレイド基、及びビニル基からなる群より選ばれる官能基の少なくとも1種を有することが好ましい。

【0052】

前記シラン化合物としては、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(-メトキシエトキシ)シラン、 -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、 -メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、 -メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、 -メタクリロキシプロピルジメチルメトキシシラン、 -メタクリロキシプロピルジメチルエトキシシラン、 -アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 -アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、 - (3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、 -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 -グリシドキシプロピルジメチルメトキシシラン、 -グリシドキシプロピルジメチルエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 -メルカプトプロピルトリエトキシシラン、ビス(トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、 -アミノプロピルトリメトキシシラン、 -アミノプロピルトリエトキシシラン、 - [ビス(-ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N - (アミノエチル) - アミノプロピルトリエトキシシラン、N - (トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、ジフェニルシランジオール、トリフェニルメトキシシラン、トリフェニルエトキシシラン、トリフェニルシラノール、N - (N - ビニルベンジルアミノエチル) - アミノプロピルトリメトキシシラン、 - クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、 - アニリノプロピルトリメトキシシラン、 - アニリノプロピルトリエトキシシラン、2 - トリエトキシシリル - N - (1, 3 - ジメチル - ブチリデン)プロピルアミン、3 - トリエトキシシリル - N - (1, 3 - ジメチル - ブチリデン)プロピルアミン、N - (3 - トリエトキシシリルプロピル)フェニルイミン、3 - (3 - (トリエトキシシリル)プロピルアミノ) - N, N - ジメチルプロピオンアミド、N - トリエトキシシリルプロピル - アラニンメチルエステル、3 - (トリエトキシシリルプロピル)ジヒドロ - 3, 5 - フランジオン、ビス(トリメトキシシリル)ベンゼン等のシラン系化合物、1H - イミダゾール、2 - アルキルイミダゾール、2, 4 - ジアルキルイミダゾール、4 - ビニルイミダゾール等のイミダゾール化合物と - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 - グリシドキシプロピルトリエトキシシラン等の - グリシドキシプロピルアルコキシシランの反応物であるイミダゾール系シラン化合物が挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0053】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料がシラン化合物を含む場合、シラン化合物の含有率は、成形性および流動性の観点から、封止用エポキシ樹脂成形材料の総質量中に、0.06質量%以上2質量%未満が好ましく、0.1質量%以上0.75質量%未満がより好ましく、0.2質量%以上0.7質量%未満がさらに好ましい。シラン化合物の含有率が0.06質量%以上であると流動性がより向上する傾向にある。また2質量%未満であるとポイド等の成形不良の発生をより効果的に抑制できる傾向がある。

10

20

30

40

50

【 0 0 5 4 】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、シラン化合物以外の従来公知のカップリング剤を更に含んでいてもよい。シラン化合物以外のカップリング剤としては、例えば、チタネート系カップリング剤、アルミニウムキレート化合物、アルミニウム/ジルコニウム化合物などが挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【 0 0 5 5 】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料がシラン化合物以外のカップリング剤を含む場合、その含有率は、成形性及び接着性の観点から、封止用エポキシ樹脂成形材料の総質量中に、0.06質量%以上2質量%未満が好ましく、0.1質量%以上0.75質量%未満がより好ましく、0.2質量%以上0.7質量%未満がさらに好ましい。シランカップリング剤の含有率が0.06質量%以上であると流動性がより向上する傾向にある。また2質量%未満であるとポイド等の成形不良の発生をより効果的に抑制できる傾向がある。

10

【 0 0 5 6 】

(E) 硬化促進剤

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、硬化促進剤の少なくとも1種を更に含むことが好ましい。硬化促進剤を含むことで、耐リフロー性、成形性、硬化性がより向上する。硬化促進剤はエポキシ樹脂の硬化反応を促進可能な化合物であれば特に制限はなく、通常用いられる化合物から適宜選択して用いることができる。硬化促進剤としては、例えば、1, 8 - ジアザピシクロ [5 . 4 . 0] ウンデセン - 7、1, 5 - ジアザピシクロ [4 . 3 . 0] ノネン - 5、5, 6 - ジブチルアミノ - 1, 8 - ジアザピシクロ [5 . 4 . 0] ウンデセン - 7等のシクロアミジン化合物；これらのシクロアミジン化合物に、無水マレイン酸、1, 4 - ベンゾキノン、2, 5 - トルキノン、1, 4 - ナフトキノン、2, 3 - ジメチルベンゾキノン、2, 6 - ジメチルベンゾキノン、2, 3 - ジメトキシ - 5 - メチル - 1, 4 - ベンゾキノン、2, 3 - ジメトキシ - 1, 4 - ベンゾキノン、フェニル - 1, 4 - ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス (ジメチルアミノメチル) フェノール等の第三級アミン化合物；これらの第三級アミン化合物の誘導体、2 - メチルイミダゾール、2 - フェニルイミダゾール、2 - フェニル - 4 - メチルイミダゾール、2 - ヘプタデシルイミダゾール等のイミダゾール化合物；これらのイミダゾール化合物の誘導体、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス (4 - メチルフェニル) ホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有機ホスフィン化合物；これらの有機ホスフィン化合物に無水マレイン酸、上記キノン化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有するリン化合物；テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムエチルトリフェニルボレート、テトラブチルホスホニウムテトラブチルボレート等のテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート；2 - エチル - 4 - メチルイミダゾール・テトラフェニルボレート、N - メチルモルホリン・テトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン塩；これらのテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート及びテトラフェニルボロン塩の誘導体などが挙げられる。これらは1種を単独で用いても2種以上組み合わせ用いてもよい。

20

30

40

【 0 0 5 7 】

これらの中でも、成形性の観点から、第三級ホスフィン化合物とキノン化合物の付加物が好ましく用いられる。第三級ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物に用いられる第三級ホスフィン化合物としては特に制限はない。例えば、ジブチルフェニルホスフィン、ブチルジフェニルホスフィン、エチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス (4 - メチルフェニル) ホスフィン、トリス (4 - エチルフェニル) ホスフィン、トリス (4 - プロピルフェニル) ホスフィン、トリス (4 - ブチルフェニル) ホスフィン、トリス (イソプロピルフェニル) ホスフィン、トリス (t e r t - ブチルフェニル)

50

ホスフィン、トリス(2, 4-ジメチルフェニル)ホスフィン、トリス(2, 6-ジメチルフェニル)ホスフィン、トリス(2, 4, 6-トリメチルフェニル)ホスフィン、トリス(2, 6-ジメチル-4-エトキシフェニル)ホスフィン、トリス(4-メトキシフェニル)ホスフィン、トリス(4-エトキシフェニル)ホスフィン等のアリール基を有する第三級ホスフィンが挙げられる。中でも成形性の点から、トリフェニルホスフィンが好ましい。また第三級ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物に用いられるキノン化合物としては特に制限はない。例えば、o-ベンゾキノン、p-ベンゾキノン、ジフェノキノン、1, 4-ナフトキノン、アントラキノン等が挙げられる。中でも耐湿性、保存安定性の観点からp-ベンゾキノンが好ましい。

【0058】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が硬化促進剤を含む場合、硬化促進剤の含有量は、硬化促進効果が達成される量であれば特に限定されるものではない。(A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤及び(C)カルボン酸アミド誘導体の合計量100質量部に対して0.1質量部以上10質量部未満が好ましく、0.3質量部以上5質量部未満がより好ましい。硬化促進剤の含有量が0.1質量部以上であると、より短時間で硬化させることが可能になる傾向がある。また10質量部未満であると硬化速度が速くなりすぎることが抑制され、より良好な成形品が得られる傾向がある。

【0059】

(F)無機充てん剤

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は無機充てん剤の少なくとも1種を更に含むことが好ましい。無機充てん剤を更に含むことで、吸湿性低減、線膨張係数低減、熱伝導性向上、及び強度向上がより効果的に達成される。無機充てん剤としては、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般に使用されているものであれば特に制限されるものではない。例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ジルコン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸カリウム、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア等の粉体、又はこれらを球形化したビーズ、ガラス繊維などが挙げられる。これらは単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。中でも、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカが好ましい。また高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。更に無機充てん剤の形状は成形時の流動性及び金型摩耗性の点から球形が好ましい。特にコストと性能のバランスの観点からは球状溶融シリカが好ましい。

【0060】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が無機充てん剤を含む場合、無機充てん剤の含有率は、難燃性向上、成形性向上、吸湿性低減、線膨張係数低減及び強度向上の観点から、封止用エポキシ樹脂成形材料の総質量中に70質量%以上95質量%未満が好ましい。無機充てん剤の含有率が70質量%以上であると、難燃性がより向上する傾向がある。また95質量%未満であると流動性がより向上する傾向がある。

【0061】

(G)その他の添加剤

(陰イオン交換体)

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、必要に応じて陰イオン交換体を含んでいてもよい。陰イオン交換体を含むことで、封止されたICチップ等の耐湿性、高温放置特性がより向上する。陰イオン交換体としては特に制限はなく、従来公知のものを用いることができる。例えば、ハイドロタルサイト類や、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ビスマスから選ばれる元素の含水酸化物等が挙げられる。これらは単独で用いても2種類以上を組み合わせて用いてもよい。中でも、下記組成式(I)で示されるハイドロタルサイトが好ましい。



式(I)中、Xは $0 < X \leq 0.5$ を満たす数であり、mは正の数を示す。

【0062】

10

20

30

40

50

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が陰イオン交換体を含む場合、陰イオン交換体の含有量は、ハロゲンイオンなどの陰イオンを捕捉できる十分量であれば特に限定されるものではない。(A)エポキシ樹脂100質量部に対して、0.1質量部以上30質量部未満が好ましく、1質量部以上5質量部未満がより好ましい。

【0063】

(離型剤)

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、必要に応じて離型剤を含んでもよい。離型剤としては例えば、酸化型又は非酸化型のポリオレフィンを挙げることができる。酸化型又は非酸化型のポリオレフィンとして具体的には、ヘキスト株式会社製商品名H4やPE、PEDシリーズ等の数平均分子量が500~10000程度の低分子量ポリエチレンなどが挙げられる。また、酸化型又は非酸化型のポリオレフィン以外のその他の離型剤としては、カルナバワックス、モンタン酸エステル、モンタン酸、ステアリン酸等が挙げられる。これら離型剤は1種を単独で用いても2種以上組み合わせ用いてもよい。

10

【0064】

前記封止用エポキシ樹脂成形材料が離型剤を含む場合、離型剤の含有量は、(A)エポキシ樹脂100質量部に対して0.01質量部以上10質量部未満が好ましく、0.1質量部以上5質量部未満がより好ましく、0.5質量部以上3質量部未満が更に好ましい。0.01質量部以上であると十分な離型性が得られる傾向がある。また10質量部未満であると接着性の低下が抑制される傾向がある。

また離型剤として、酸化型又は非酸化型のポリオレフィンと、その他の離型剤とを含む場合、その含有量は合わせて(A)エポキシ樹脂100質量部に対して0.1質量部以上10質量部未満が好ましく、0.5質量部以上3質量部未満がより好ましい。

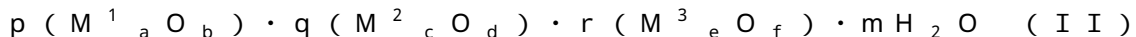
20

【0065】

(難燃剤)

前記封止用エポキシ樹脂成形材料は、必要に応じて従来公知の難燃剤を含有することができる。難燃剤としては例えば、ブロム化エポキシ樹脂；三酸化アンチモン、赤リン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛等の無機物；フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂などで被覆された赤リン、リン酸エステル等のリン化合物；メラミン、メラミン誘導体、メラミン変性フェノール樹脂、トリアジン環を有する化合物、シアヌル酸誘導体、イソシアヌル酸誘導体等の窒素含有化合物；シクロホスファゼン等のリン及び窒素含有化合物；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛、錫酸亜鉛、硼酸亜鉛、酸化鉄、酸化モリブデン、モリブデン酸亜鉛、ジシクロペンタジエニル鉄等の金属元素を含む化合物及び下記組成式(II)で示される複合金属水酸化物などが挙げられる。

30



式(II)中、 M^1 、 M^2 及び M^3 は互いに異なる金属元素を示し、 a 、 b 、 c 、 d 、 e 、 f 、 p 、 q 及び m はそれぞれ独立に正の数を示す。 r は0又は正の数を示す。

【0066】

上記組成式(II)中の M^1 、 M^2 及び M^3 は互いに異なる金属元素であれば特に制限はない。難燃性の観点からは、 M^1 が第3周期の金属元素、IIA族のアルカリ土類金属元素、IVB族、IIB族、VIII族、IB族、IIIA族及びIVA族に属する金属元素から選ばれ、 M^2 がIIIB~IIB族の遷移金属元素から選ばれることが好ましく、 M^3 がマグネシウム、カルシウム、アルミニウム、スズ、チタン、鉄、コバルト、ニッケル、銅及び亜鉛から選ばれ、 M^2 が鉄、コバルト、ニッケル、銅及び亜鉛から選ばれることがより好ましい。

40

【0067】

流動性の観点からは、 M^1 がマグネシウム、 M^2 が亜鉛又はニッケルで、 $r=0$ のものが好ましい。 p 、 q 及び r のモル比は特に制限はないが、 $r=0$ で、 p/q が $1/99 \sim 1/1$ であることが好ましい。また a 、 b 、 c 、 d 、 e 、及び f は M^1 、 M^2 及び M^3 に応じて適宜選択される。なお、金属元素の分類は、典型元素をA亜族、遷移元素をB亜族とする長周期型の周期律表(出典：共立出版株式会社発行「化学大辞典4」1987年2

50

月15日縮刷版第30刷)に基づいて行った。

【0068】

これらの難燃剤は、1種単独で用いても2種以上を組合せて用いてもよい。前記封止用エポキシ樹脂成形材料が難燃剤を含む場合、難燃剤の含有量は特に制限されない。(A)エポキシ樹脂100質量部に対して1質量部以上30質量部未満が好ましく、2質量部以上15質量部未満がより好ましい。

【0069】

(着色剤等)

前記封止用エポキシ樹脂成形材料には、カーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の着色剤を更に含んでもよい。更にその他の添加剤として、シリコーンオイルやシリコーンゴム粉末等の応力緩和剤等を必要に応じて配合することができる。

10

【0070】

<封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法>

前記封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法は特に制限されず、封止用エポキシ樹脂成形材料を構成する各種成分を均一に分散混合できる方法であれば、いかなる手法を用いてもよい。一般的な手法として、所定の配合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって溶融混練した後、冷却、粉碎する方法を挙げることができる。具体的には、上述した成分の所定量を均一に攪拌、混合し、予め70～140に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダーなどで混練、冷却した後、粉碎するなどの方法で得ることができる。また成形条件に合うような寸法及び質量でタブレット化すると使いやすい。

20

【0071】

<電子部品装置>

本発明の電子部品装置は、前記封止用エポキシ樹脂成形材料により封止した素子を備える。電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ等の支持部材に、半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子等の素子を搭載し、必要な部分を前記封止用エポキシ樹脂成形材料で封止して得られる電子部品装置などが挙げられる。このような電子部品装置として具体的には、リードフレーム上に半導体素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部とリード部をワイヤボンディングやバンプで接続した後、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料を用いてトランスファ成形等により封止してなる、DIP(Dual Inline Package)、PLCC(Plastic Leaded Chip Carrier)、QFP(Quad Flat Package)、SOP(Small Outline Package)、SOJ(Small Outline J-lead package)、TSOP(Thin Small Outline Package)、TQFP(Thin Quad Flat Package)等の一般的な樹脂封止型IC、テープキャリアにバンプで接続した半導体チップを、前記封止用エポキシ樹脂成形材料で封止したTCP(Tape Carrier Package)、配線板やガラス上に形成した配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンディング、はんだ等で接続した半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子及び/又はコンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子を、前記封止用エポキシ樹脂成形材料で封止したCOB(Chip On Board)モジュール、ハイブリッドIC、マルチチップモジュール、裏面に配線板接続用の端子を形成した有機基板の表面に素子を搭載し、バンプ又はワイヤボンディングにより素子と有機基板に形成された配線を接続した後、前記封止用エポキシ樹脂成形材料で素子を封止したBGA(Ball Grid Array)、CSP(Chip Size Package)などが挙げられる。またプリント回路板にも前記封止用エポキシ樹脂成形材料は有効に使用できる。

30

40

前記封止用エポキシ樹脂成形材料を用いて素子を封止する方法としては、低圧トランスファ成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよ

50

い。

【実施例】

【0072】

以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。尚、特に断りのない限り、「部」及び「%」は質量基準である。

【0073】

(実施例1～40及び比較例1～40)

以下に示す各成分を、下記表1～表10に示す質量部で配合し、混練温度80、混練時間10分の条件でロール混練を行って、実施例1～40及び比較例1～40の封止用エポキシ樹脂成形材料を作製した。なお、表中の「-」は未配合であることを示す。

(A) エポキシ樹脂

・エポキシ樹脂1：エポキシ当量196、融点106のビフェニル型エポキシ樹脂(三菱化学株式会社製商品名YX-4000)

・エポキシ樹脂2：エポキシ当量240、軟化点96のビフェニレン骨格を含有するフェノール・アラルキル型エポキシ樹脂(日本化薬株式会社製商品名CER-3000L)

・エポキシ樹脂3：エポキシ当量238、軟化点55のフェノール・アラルキル型エポキシ樹脂(日本化薬株式会社製商品名NC-2000L)

・エポキシ樹脂4：エポキシ当量202、軟化点60のオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂(DIC株式会社製商品名N-660)

・エポキシ樹脂5：エポキシ当量250、軟化点58のナフタレン変性ノボラック型エポキシ樹脂(DIC株式会社製商品名HP-5000)

・エポキシ樹脂6：エポキシ当量258、軟化点60のジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂(DIC株式会社製商品名HP-7200)

【0074】

(B) 硬化剤

・硬化剤1：水酸基当量175、軟化点70のフェノール・アラルキル樹脂(明和化成株式会社製商品名MEH-7800)

・硬化剤2：水酸基当量106、軟化点83のフェノール・ノボラック樹脂(明和化成株式会社製商品名H-100)

【0075】

(C) カルボン酸アミド誘導体

・カルボン酸アミド誘導体1：サリチルアニリド(融点136)

・カルボン酸アミド誘導体2：3-ヒドロキシ-2-ナフトアニリド(融点247)

・カルボン酸アミド誘導体3：3-ヒドロキシ-N-(1-ナフチル)-2-ナフトアミド(融点222)

・カルボン酸アミド誘導体4：3-ヒドロキシ-N-(2-ヒドロキシエチル)-2-ナフトアミド(融点146)

・カルボン酸アミド誘導体5：2,4-ジヒドロキシ-N-(2-ヒドロキシエチル)ベンズアミド(融点164)

・カルボン酸アミド誘導体6：サリチルアミド(融点140)

・カルボン酸アミド誘導体7：3-ヒドロキシ-2-ナフトアミド(融点217)

・カルボン酸アミド誘導体8：p-アセトアミドフェノール(融点170)

【0076】

また、比較例においてカルボン酸アミド誘導体の替わりに使用した材料

・フェノール1：フェノール

・フェノール2：o-クレゾール

・フェノール3：2-ナフトール

・フェノール4：レゾルシノール

・非フェノール性カルボン酸アミド1：ベンズアニリド

10

20

30

40

50

- ・非フェノール性カルボン酸アミド 2 : 2 - ナフトアニリド
- ・非フェノール性カルボン酸アミド 3 : ベンズアミド

【 0 0 7 7 】

(D) シラン化合物

- ・シラン化合物 1 : - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン

(E) 硬化促進剤

- ・硬化促進剤 1 : トリフェニルホスフィンと p - ベンゾキノンとのベタイン型付加物

(F) 無機充てん剤

- ・無機充てん剤 1 : 体積平均粒径 1 7 . 5 μm 、比表面積 3 . 8 m^2 / g の球状熔融シリカ

10

(その他の添加成分)

- ・モンタン酸エステル (クラリアントジャパン株式会社製 HW - E)
- ・カーボンブラック (三菱化学株式会社製 MA - 6 0 0)

【 0 0 7 8 】

【 表 1 】

	実施例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
エポキシ樹脂1	80	80	80	80	80	80	80	80
エポキシ樹脂2	20	20	20	20	20	20	20	20
硬化剤1	83.5	84.0	84.5	83.5	78.5	81.0	83.0	81.5
カルボン酸アミド誘導体1	5	-	-	-	-	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体2	-	5	-	-	-	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体3	-	-	5	-	-	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体4	-	-	-	5	-	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体5	-	-	-	-	5	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体6	-	-	-	-	-	5	-	-
カルボン酸アミド誘導体7	-	-	-	-	-	-	5	-
カルボン酸アミド誘導体8	-	-	-	-	-	-	-	5
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	4	4	4	4	4	4	4	4
無機充てん剤1	1560	1565	1570	1560	1525	1540	1555	1545
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.28	0.28	0.28	0.28	0.29	0.29	0.28	0.29

20

30

40

【 0 0 7 9 】

【表 2】

	実施例							
	9	10	11	12	13	14	15	16
エポキシ樹脂1	80	80	80	80	80	80	80	80
エポキシ樹脂2	20	20	20	20	20	20	20	20
硬化剤1	86.5	86.0	85.0	79.5	87.0	86.0	85.5	81.0
カルボン酸アミド誘導体1	1	2	3	10	-	-	-	-
カルボン酸アミド誘導体2	-	-	-	-	1	2	3	10
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	4	4	4	4	4	4	4	4
無機充てん剤1	1555	1555	1555	1565	1555	1560	1560	1580
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.06	0.11	0.17	0.57	0.06	0.11	0.17	0.56

10

20

【0080】

【表 3】

	実施例							
	17	18	19	20	21	22	23	24
エポキシ樹脂1	60	60	60	60	5	5	5	5
エポキシ樹脂3	40	40	40	40	-	-	-	-
エポキシ樹脂4	-	-	-	-	95	95	95	95
硬化剤1	84.0	80.0	85.0	81.5	-	-	-	-
硬化剤2	-	-	-	-	52.5	50.0	53.0	51.0
カルボン酸アミド誘導体1	5	10	-	-	5	10	-	-
カルボン酸アミド誘導体2	-	-	5	10	-	-	5	10
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	2.4	2.4	2.4	2.4	2.7	2.7	2.7	2.7
無機充てん剤1	1300	1305	1305	1315	755	765	765	770
モンタン酸エステル	1	1	1	1	3	3	3	3
カーボンブラック	3.4	3.4	3.4	3.4	2	2	2	2
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.33	0.66	0.33	0.66	0.54	1.06	0.53	1.06

30

40

【0081】

【表4】

配合成分	実施例							
	25	26	27	28	29	30	31	32
エポキシ樹脂1	30	30	30	30	30	30	30	30
エポキシ樹脂5	70	70	70	70	-	-	-	-
エポキシ樹脂6	-	-	-	-	70	70	70	70
硬化剤1	72.0	68.0	73.0	69.5	70.5	66.5	71.5	68.0
カルボン酸アミド誘導体1	5	10	-	-	5	10	-	-
カルボン酸アミド誘導体2	-	-	5	10	-	-	5	10
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
無機充てん剤1	1285	1290	1290	1300	1275	1280	1280	1290
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	3	3	3	3	3	3	3	3
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.34	0.67	0.34	0.67	0.34	0.68	0.34	0.67

10

20

【0082】

【表5】

	実施例							
	33	34	35	36	37	38	39	40
エポキシ樹脂1	25	25	25	25	25	25	25	25
エポキシ樹脂5	75	75	75	75	-	-	-	-
エポキシ樹脂6	-	-	-	-	75	75	75	75
硬化剤2	43.0	40.5	43.5	41.5	42.0	39.5	42.5	40.5
カルボン酸アミド誘導体1	5	10	-	-	5	10	-	-
カルボン酸アミド誘導体2	-	-	5	10	-	-	5	10
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	3	3	3	3	3	3	3	3
無機充てん剤1	920	935	925	940	915	930	920	935
モンタン酸エステル	3	3	3	3	3	3	3	3
カーボンブラック	2	2	2	2	2	2	2	2
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.46	0.91	0.46	0.90	0.46	0.91	0.46	0.91

30

40

【0083】

【表 6】

	比較例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
エポキシ樹脂1	80	80	80	80	80	80	80	80
エポキシ樹脂2	20	20	20	20	20	20	20	20
硬化剤1	87.5	78.0	79.5	81.5	71.5	87.5	87.5	87.5
フェノール1	-	5	-	-	-	-	-	-
フェノール2	-	-	5	-	-	-	-	-
フェノール3	-	-	-	5	-	-	-	-
フェノール4	-	-	-	-	5	-	-	-
非フェノール性カルボン酸アミド 1	-	-	-	-	-	5	-	-
非フェノール性カルボン酸アミド 2	-	-	-	-	-	-	5	-
非フェノール性カルボン酸アミド 3	-	-	-	-	-	-	-	5
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	4	4	4	4	4	4	4	4
無機充てん剤1	1550	1520	1530	1545	1470	1590	1590	1590
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

10

20

【 0 0 8 4 】

【表 7】

	比較例							
	9	10	11	12	13	14	15	16
エポキシ樹脂1	80	80	80	80	80	80	80	80
エポキシ樹脂2	20	20	20	20	20	20	20	20
硬化剤1	85.5	84.0	82.0	69.0	87.5	87.5	87.5	87.5
フェノール1	1	2	3	10	-	-	-	-
非フェノール性カルボン酸アミド 1	-	-	-	-	1	2	3	10
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	4	4	4	4	4	4	4	4
無機充てん剤1	1545	1540	1535	1490	1560	1570	1575	1630
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

30

40

【 0 0 8 5 】

【表 8】

	比較例							
	17	18	19	20	21	22	23	24
エポキシ樹脂1	60	60	60	60	5	5	5	5
エポキシ樹脂3	40	40	40	40	-	-	-	-
エポキシ樹脂4	-	-	-	-	95	95	95	95
硬化剤1	88.5	79.0	82.0	88.5	-	-	-	-
硬化剤2	-	-	-	-	55.0	49.5	51.5	55.0
フェノール1	-	5	-	-	-	5	-	-
フェノール3	-	-	5	-	-	-	5	-
非フェノール性カルボン酸アミド1	-	-	-	5	-	-	-	5
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	2.4	2.4	2.4	2.4	2.7	2.7	2.7	2.7
無機充てん剤1	1295	1265	1290	1325	745	745	750	770
モンタン酸エステル	1	1	1	1	3	3	3	3
カーボンブラック	3.4	3.4	3.4	3.4	2	2	2	2
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

10

20

【0086】

【表 9】

配合成分	比較例							
	25	26	27	28	29	30	31	32
エポキシ樹脂1	30	30	30	30	30	30	30	30
エポキシ樹脂5	70	70	70	70				
エポキシ樹脂6					70	70	70	70
硬化剤1	76.5	67.0	70.5	76.5	75.0	65.5	68.5	75.0
フェノール1	-	5	-	-	-	5	-	-
フェノール3	-	-	5	-	-	-	5	-
非フェノール性カルボン酸アミド1	-	-	-	5	-	-	-	5
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
無機充てん剤1	1280	1250	1270	1310	1270	1240	1260	1300
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1
カーボンブラック	3	3	3	3	3	3	3	3
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

30

40

【0087】

【表 10】

	比較例							
	33	34	35	36	37	38	39	40
エポキシ樹脂1	25	25	25	25	25	25	25	25
エポキシ樹脂5	75	75	75	75	-	-	-	-
エポキシ樹脂6	-	-	-	-	75	75	75	75
硬化剤2	45.5	40.0	42.0	45.5	44.5	39.0	41.0	44.5
フェノール1	-	5	-	-	-	5	-	-
フェノール3	-	-	5	-	-	-	5	-
非フェノール性カルボン酸アミド ¹	-	-	-	5	-	-	-	5
シラン化合物1	7	7	7	7	7	7	7	7
硬化促進剤1	3	3	3	3	3	3	3	3
無機充てん剤1	905	905	915	935	900	900	910	930
モンタン酸エステル	3	3	3	3	3	3	3	3
カーボンブラック	2	2	2	2	2	2	2	2
カルボン酸アミド誘導体含有率(質量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

10

20

【0088】

< 評価 >

上記で得られた実施例及び比較例の封止用エポキシ樹脂成形材料を、次の(1)～(6)の各種特性試験により評価した。評価結果を下記表11～表20に示す。なお、封止用エポキシ樹脂成形材料の成形は、特記しない限りトランスファ成形機により、金型温度180、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で行った。また、後硬化は180で5時間行った。

【0089】

30

(1) スパイラルフロー

EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、封止用エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、流動距離(cm)を求めた。

【0090】

(2) 熱時硬度

封止用エポキシ樹脂成形材料を上記条件で直径50mm×厚さ3mmの円板に成形し、成形後直ちにショアD型硬度計(株式会社上島製作所製HD-1120(タイプD))を用いて測定した。

【0091】

(3) 吸水率

40

(2)で成形した円板を上記条件で後硬化し、85、60%RHの条件下で168時間放置し、放置前後の質量変化を測定して、吸水率(質量%) = {(放置後の円板質量 - 放置前の円板質量) / 放置前の円板質量} × 100を評価した。

【0092】

(4) 260における弾性率(高温曲げ試験)

JIS K 6911に準じた3点曲げ試験を曲げ試験機(A&D社製テンシロン)を用いて行い、恒温槽で260に保ちながら、曲げ弾性率(E)を求めた。測定は封止用エポキシ樹脂成形材料を上記条件で10mm×70mm×3mmに成形した試験片を用い、ヘッドスピード1.5mm/minの条件で行った。なお、曲げ弾性率(E)は下式にて定義される。

50

【 0 0 9 3 】

【 数 1 】

$$E = \frac{I^3}{4wh^3} \frac{\Delta P}{\Delta y}$$

 E : 曲げ弾性率 (Pa) P : ロードセルの値(N) y : 変位量(mm) l : スパン=48 mm w : 試験片幅= 10 mm h : 試験片厚さ=3 mm

10

【 0 0 9 4 】

(5) 2 6 0 における金属との接着力測定(シエア強度測定)

封止用エポキシ樹脂成形材料を上記条件で、銅板または銀メッキした銅板にそれぞれ底面 4 mm、上面 3 mm、高さ 4 mm のサイズに成形した後、後硬化して測定用サンプルを作製した。得られた測定用サンプルをボンドテスター(ダイジ社製シリーズ 4 0 0 0)によって、各種銅板の温度を 2 6 0 に保ちながら、せん断速度 5 0 $\mu\text{m/s}$ でせん断接着力を測定した。

【 0 0 9 5 】

(6) 耐リフロー性

8 mm × 1 0 mm × 0 . 4 mm のシリコンチップを搭載した外形寸法 2 0 mm × 1 4 mm × 2 mm の 8 0 ピンフラットパッケージ(リードフレーム材質: 銅合金、ダイパッド部上面およびリード先端部銀メッキ処理品)を、封止用エポキシ樹脂成形材料を用いて上記条件で成形した後、後硬化して作製した。

8 5、6 0 % RH の条件で 1 週間放置後、実施例 1 ~ 1 6 および比較例 1 ~ 1 6 については 2 4 0 で、実施例 1 7 ~ 2 0、2 5 ~ 3 2 および比較例 1 7 ~ 2 0、2 5 ~ 3 2 については 2 3 0 で、実施例 2 1 ~ 2 4、3 3 ~ 4 0 および比較例 2 1 ~ 2 4、3 3 ~ 4 0 については 2 2 0 で、それぞれリフロー処理を行い、樹脂/フレーム界面のはく離の有無を超音波探傷装置(日立建機株式会社製 H Y E - F O C U S)で観察し、試験パッケージ数 5 個に対するはく離発生パッケージ数で評価した。

20

【 0 0 9 6 】

【 表 1 1 】

30

	実施例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
スパイラルフロー (cm)	135	122	114	120	130	136	127	125
熱時硬度(ショアD)	78	78	78	78	79	77	77	78
吸水率(%)	0.127	0.124	0.122	0.127	0.137	0.134	0.132	0.129
260°C曲げ弾性率 (MPa)	751	765	832	745	895	728	735	743
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.92	0.93	0.95	0.92	0.93	0.90	0.90	0.90
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.60	1.65	1.64	1.67	1.66	1.65	1.64	1.62
耐リフロー性 (はく離数/総数)	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5

40

【 0 0 9 7 】

【表 1 2】

	実施例							
	9	10	11	12	13	14	15	16
スパイラルフロー (cm)	99	108	117	152	96	103	110	142
熱時硬度(ショアD)	78	78	78	77	78	78	78	77
吸水率 (%)	0.129	0.128	0.127	0.125	0.129	0.127	0.126	0.124
260°C曲げ弾性率 (MPa)	799	780	775	728	803	792	780	741
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.85	0.90	0.91	0.92	0.86	0.92	0.93	0.92
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.51	1.60	1.62	1.62	1.50	1.60	1.61	1.65
耐リフロー性 (はく離数/総数)	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5

10

【 0 0 9 8 】

【表 1 3】

評価項目	実施例							
	17	18	19	20	21	22	23	24
スパイラルフロー (cm)	156	177	148	161	98	105	97	103
熱時硬度(ショアD)	78	77	78	77	81	78	82	79
吸水率 (%)	0.118	0.117	0.116	0.115	0.196	0.197	0.195	0.192
260°C曲げ弾性率 (MPa)	635	612	646	615	800	787	807	795
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.83	0.81	0.85	0.83	0.84	0.83	0.85	0.88
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.45	1.50	1.44	1.52	1.21	1.23	1.22	1.24
耐リフロー性 (はく離数/総数)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)

20

30

(*1) リフロー温度230°C、(*2) リフロー温度220°C

【 0 0 9 9 】

【表 1 4】

	実施例							
	25	26	27	28	29	30	31	32
スパイラルフロー (cm)	103	122	97	119	98	110	97	106
熱時硬度 (ショアド)	81	80	81	80	81	80	81	80
吸水率 (%)	0.117	0.117	0.116	0.115	0.106	0.105	0.103	0.104
260°C曲げ弾性率 (MPa)	765	740	773	748	745	729	754	739
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.88	0.87	0.86	0.88	0.84	0.86	0.86	0.88
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.55	1.53	1.54	1.52	1.58	1.56	1.55	1.58
耐リフロー性 (はく離数/総数)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)	0/5 (*1)

(*1) リフロー温度230°C

10

【 0 1 0 0】

【表 1 5】

	実施例							
	33	34	35	36	37	38	39	40
スパイラルフロー (cm)	112	127	108	120	109	120	103	116
熱時硬度 (ショアド)	82	80	82	80	82	80	82	80
吸水率 (%)	0.151	0.152	0.148	0.147	0.141	0.139	0.136	0.137
260°C曲げ弾性率 (MPa)	784	767	791	774	753	735	776	750
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.86	0.87	0.88	0.85	0.87	0.86	0.88	0.86
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.45	1.49	1.48	1.43	1.44	1.41	1.47	1.45
耐リフロー性 (はく離数/総数)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)	0/5 (*2)

(*2) リフロー温度220°C

20

30

【 0 1 0 1】

【表 1 6】

	比較例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
スパイラルフロー (cm)	90	116	114	111	99	123	113	132
熱時硬度(ショアD)	78	77	77	77	79	77	77	77
吸水率(%)	0.134	0.132	0.133	0.129	0.132	0.133	0.134	0.143
260°C曲げ弾性率 (MPa)	818	722	723	733	879	754	745	730
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.79	0.71	0.69	0.70	0.71	0.73	0.72	0.63
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.29	1.09	1.11	1.12	1.09	1.22	1.21	1.25
耐リフロー性 (はく離数/総数)	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5

10

【 0 1 0 2 】

【表 1 7】

	比較例							
	9	10	11	12	13	14	15	16
スパイラルフロー (cm)	90	98	105	115	91	96	100	108
熱時硬度(ショアD)	78	77	77	75	77	77	77	75
吸水率(%)	0.131	0.132	0.133	0.136	0.132	0.136	0.14	0.145
260°C曲げ弾性率 (MPa)	780	760	755	605	790	772	764	708
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.79	0.75	0.73	0.65	0.74	0.71	0.68	0.61
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.29	1.19	1.11	1.05	1.35	1.28	1.25	1.19
耐リフロー性 (はく離数/総数)	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	5/5

20

30

【 0 1 0 3 】

【表 1 8】

評価項目	比較例							
	17	18	19	20	21	22	23	24
スパイラルフロー (cm)	135	152	140	149	92	100	95	101
熱時硬度(ショアD)	78	77	77	77	82	80	80	79
吸水率(%)	0.120	0.124	0.121	0.129	0.198	0.203	0.199	0.205
260°C曲げ弾性率 (MPa)	667	620	632	625	825	790	798	795
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.61	0.55	0.51	0.53	0.71	0.65	0.65	0.67
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.15	0.98	0.97	1.01	0.87	0.89	0.89	0.91
耐リフロー性 (はく離数/総数)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)

(*1) リフロー温度230°C、(*2) リフロー温度220°C

【 0 1 0 4】

【表 1 9】

	比較例							
	25	26	27	28	29	30	31	32
スパイラルフロー (cm)	90	99	95	100	86	100	95	99
熱時硬度(ショアD)	81	80	80	79	81	81	81	79
吸水率(%)	0.120	0.124	0.123	0.128	0.111	0.115	0.112	0.115
260°C曲げ弾性率 (MPa)	795	749	761	754	772	725	745	720
260°Cせん断接着力 (銀) (MPa)	0.65	0.63	0.64	0.62	0.67	0.65	0.65	0.64
260°Cせん断接着力 (銅) (MPa)	1.25	1.11	1.08	1.12	1.19	1.04	1.19	1.08
耐リフロー性 (はく離数/総数)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)	5/5 (*1)

(*1) リフロー温度230°C

【 0 1 0 5】

10

20

30

【表 20】

	比較例							
	33	34	35	36	37	38	39	40
スパイラルフロー(cm)	100	132	125	128	94	110	105	107
熱時硬度(ショアド)	82	81	81	80	82	81	81	80
吸水率(%)	0.155	0.158	0.154	0.160	0.143	0.144	0.141	0.148
260°C曲げ弾性率(MPa)	822	765	778	753	795	732	759	745
260°Cせん断接着力(銀)(MPa)	0.75	0.65	0.66	0.64	0.72	0.68	0.69	0.66
260°Cせん断接着力(銅)(MPa)	1.05	1.03	1.05	1.09	1.12	1.05	1.08	1.01
耐リフロー性(はく離数/総数)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)	5/5 (*2)

(*2) リフロー温度220°C

10

【0106】

上記(1)～(6)の特性を、同一のエポキシ樹脂および硬化剤の組合せで実施例と比較例を比べる。例えば、エポキシ樹脂1と2/硬化剤1の組合せである実施例1～16と比較例1～16、エポキシ樹脂1と3/硬化剤1の組合せである実施例17～20と比較例17～20、エポキシ樹脂1と4/硬化剤2の組合せである実施例21～24と比較例21～24、エポキシ樹脂1と5/硬化剤1の組合せである実施例25～28と比較例25～28、エポキシ樹脂1と6/硬化剤1の組合せである実施例29～32と比較例29～32、エポキシ樹脂1と5/硬化剤2の組合せである実施例33～36と比較例33～36、エポキシ樹脂1と6/硬化剤2の組合せである実施例37～40と比較例37～40を比べる。

20

【0107】

表11～表20を見ると、1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体を添加した実施例は、これを添加しない比較例よりも260°Cせん断接着力(銀および銅)が高く、85%RHの条件で1週間放置後のリフロー処理において、樹脂/フレーム界面のはく離が発生せず、耐リフロー性に優れていることが分かる。

30

また1分子中にフェノール性水酸基を1以上有するカルボン酸アミド誘導体の割合が0.1質量%以上1.0質量%未満である実施例1～8、10～12、14～16においては、接着力がより強く、熱時硬度がより大きくなっていることが分かる。

さらに実施例1～16で用いたエポキシ樹脂及び硬化剤に替えて、異なる種類のエポキシ樹脂及び硬化剤を用いた実施例17～40においても、エポキシ樹脂及び硬化剤の種類等に依らずに、260°Cせん断接着力(銀および銅)が高く、85%RHの条件で1週間放置後のリフロー処理において、樹脂/フレーム界面のはく離が発生せず、耐リフロー性に優れていることが分かる。

40

【0108】

一方、本発明と異なる組成の比較例では本発明の目的を満足しない。実施例と比較して260°Cせん断接着力(銀および銅)が同等以下で、85%RHの条件で1週間放置後のリフロー処理において、樹脂/フレーム界面のはく離が全てのパッケージで発生し、耐リフロー性に劣ることが分かる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード(参考)
H 0 1 L 23/29 (2006.01) H 0 1 L 23/30 R
H 0 1 L 23/31 (2006.01)

Fターム(参考) 4J002 CC032 CC042 CC052 CD021 CD031 CD051 CD061 DA039 DJ019 EP016
EX057 FD019 FD142 FD158 GQ00 GQ01
4J036 AA01 AF06 AF08 DC21 FA01 FA05 FB07 JA07
4M109 AA01 BA01 CA21 EA02 EB02 EB04 EB06 EB12 EC05 EC09