

(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2008-121003

(P2008-121003A)

(43) 公開日 平成20年5月29日(2008.5.29)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>CO8G 59/20 (2006.01)</b>	CO8G 59/20	4J036
<b>HO1L 23/29 (2006.01)</b>	HO1L 23/30	4M109
<b>HO1L 23/31 (2006.01)</b>		

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2007-270220 (P2007-270220)	(71) 出願人	000004455 日立化成工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(22) 出願日	平成19年10月17日(2007.10.17)		
(31) 優先権主張番号	特願2006-282612 (P2006-282612)	(74) 代理人	100083806 弁理士 三好 秀和
(32) 優先日	平成18年10月17日(2006.10.17)	(74) 代理人	100100712 弁理士 岩▲崎▼ 幸邦
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(74) 代理人	100100929 弁理士 川又 澄雄
		(74) 代理人	100095500 弁理士 伊藤 正和
		(74) 代理人	100101247 弁理士 高橋 俊一
		(74) 代理人	100098327 弁理士 高松 俊雄

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これを用いた電子部品装置

(57) 【要約】

【課題】パウダー状でブロッキングがなく、圧縮成形法での作業性に優れた封止用エポキシ樹脂成形材料を提供する。

【解決手段】(A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤および(C)無機充填材を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料であって、(A)エポキシ樹脂が、1分子中に2個以上のエポキシ基を有し、150 での熔融粘度が0.1Pa・s以下であり、封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダーの粒度106μm以上の成分が97重量%以上である封止用エポキシ樹脂成形材料。

【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤および(C) 無機充填材を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料であって、

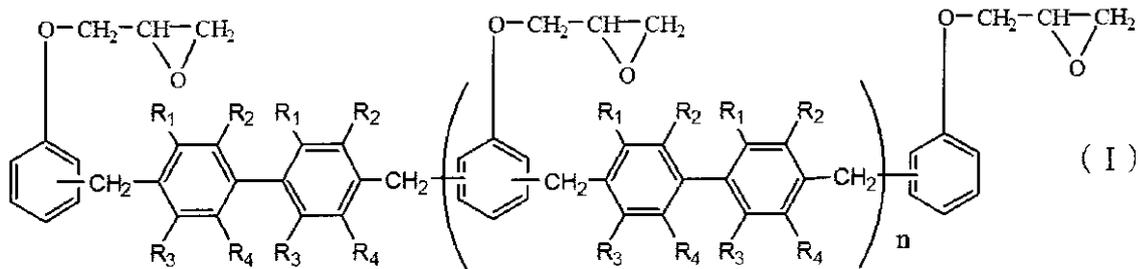
前記(A) エポキシ樹脂が、1分子中に2個以上のエポキシ基を有し、150 での溶解粘度が0.1 Pa・s以下であり、

封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダーの粒度106 μm以上の成分が97重量%以上である封止用エポキシ樹脂成形材料。

## 【請求項 2】

前記(A) エポキシ樹脂が、下記一般式(I)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する請求項1記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

## 【化 1】

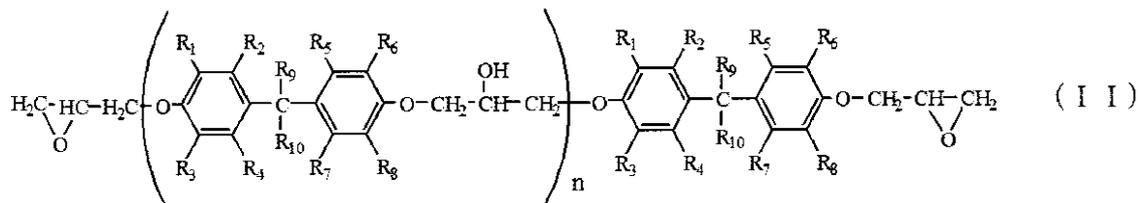


(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$  は1~10の整数を示す。)

## 【請求項 3】

前記(A) エポキシ樹脂が、下記一般式(II)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の10重量%以上含有する請求項1または2記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

## 【化 2】

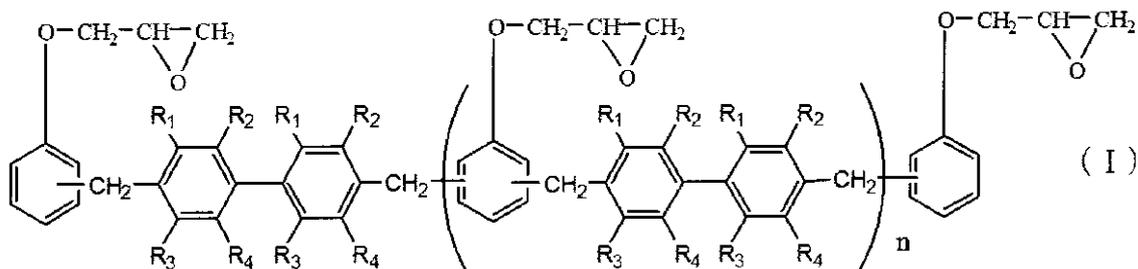


(ここで、 $R_1 \sim R_{10}$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 $n$  は0~3の整数を示す。)

## 【請求項 4】

(A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤および(C) 無機充填材を含有する圧縮成形封止用エポキシ樹脂成形材料であって、前記(A) エポキシ樹脂が、下記一般式(I)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する封止用エポキシ樹脂成形材料。

## 【化 3】



(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$  は1~10の整数を示す。)

10

20

30

40

50

## 【請求項5】

請求項1～4のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止された素子を備えた電子部品装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、電子部品装置の圧縮成形による封止用として、流動性に優れ、特にファインピッチな片面封止型パッケージに適用した際に、パウダー状でブロッキングがなく、作業性に優れた封止用エポキシ樹脂成形材料及びこれを用いた電子部品装置に関する。

## 【背景技術】

10

## 【0002】

従来から、トランジスタ、IC等の電子部品装置の素子封止の分野では生産性、コスト等の面から樹脂封止が主流となり、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などの諸特性にバランスがとれているためである。

## 【0003】

近年、電子部品装置のプリント配線板への高密度実装化に伴い、電子部品装置の形態は従来のピン挿入型のパッケージから、表面実装型のパッケージが主流になっている。表面実装型のIC、LSIなどは、実装密度を高くし実装高さを低くするために、薄型、小型のパッケージになっており、素子のパッケージに対する占有体積が大きくなり、パッケージの肉厚は非常に薄くなってきた。

20

## 【0004】

また、さらなる小型軽量化に対応すべく、パッケージの形態もQFP(Quad Flat Package)、SOP(Small Outline Package)といったものから、より多ピン化に対応しやすく、かつより高密度実装が可能なCSP(Chip Size Package)を含めたBGA(Ball Grid Array)等のエリア実装パッケージへ移行しつつある。高速化、多機能化に伴い、素子の微細配線化・小型化と多ピン化のため、パッケージとしてはチップと基板を接続する金線の狭ピッチ化、細線化、長ワイヤー化が進んでいる。これらパッケージの封止は、エポキシ樹脂成形材料によるトランスファー成形が主流であり、金線の狭ピッチ化、細線化、長ワイヤー化に対しては、エポキシ樹脂成形材料の高流動化が図られている。

30

## 【0005】

しかしながら、従来のトランスファー成形では、溶融した封止用エポキシ樹脂成形材料を圧力により金型内に流し込むため、その成形材料の流動により金線が流され、変形する。成形材料の高流動化により金線流れの抑制を図っているが、成形材料の高流動化には限界があり、更なる金線の狭ピッチ化、細線化、長ワイヤー化への対応が困難になってきている。

## 【0006】

近年、トランスファー成形に変わるパッケージ成形技術として、圧縮成形の検討が行われている。圧縮成形では、金型に直接封止用エポキシ樹脂成形材料をのせ、溶融した成形材料をゆっくりと基板に押し当てるように圧力をかけ成形するため、従来のトランスファー成形のような成形材料の流動がほとんどなく、金線流れ抑制が可能となる。

40

## 【特許文献1】特開2000-169676号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0007】

トランスファー成形法では、封止用エポキシ樹脂を特定の径、重量に成形したタブレットで供給されるが、圧縮成形では、封止用エポキシ樹脂成形材料をパウダーで供給し、パウダーを計量してそのまま金型にのせるか、計量後に金型に合った大きさの板状に成形したものを金型にのせ、圧縮成形する。パウダーがブロッキングしていると、搬送、計量等

50

で不具合が生じてしまうため、圧縮成形への適用が困難であった。一方で流動性、リフロー性の観点からは、熔融粘度の低いエポキシ樹脂、硬化剤を適用する必要があり、そのエポキシ樹脂成形材料はブロッキングしやすいという問題があった。本発明は、パウダー状でブロッキングがなく、圧縮成形法での作業性に優れた封止用エポキシ樹脂成形材料を提供することを目的としている。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、パウダーの微粉成分を一定量以下に調整した、特定のエポキシ樹脂を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料により上記の目的を達成し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

10

【0009】

本発明は以下に関する。

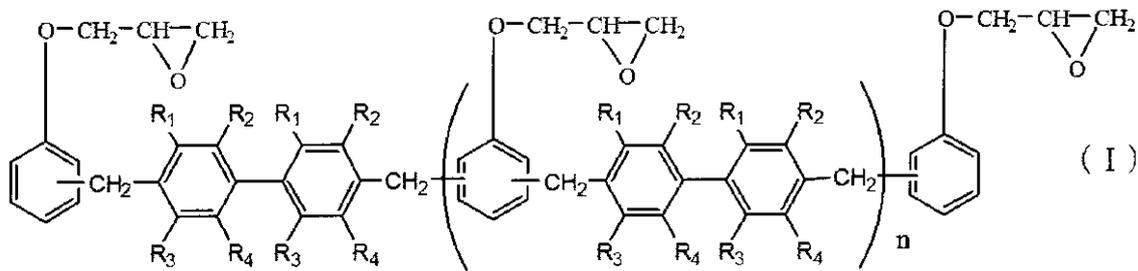
1. (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤および(C) 無機充填材を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料であって、(A) エポキシ樹脂が、1分子中に2個以上のエポキシ基を有し、150 での熔融粘度が0.1 Pa・s以下であり、封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダーの粒度106 μm以上の成分が97重量%以上である封止用エポキシ樹脂成形材料。

2. (A) エポキシ樹脂が、下記一般式(I)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する項1記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

20

【0010】

【化1】



(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$  は1~10の整数を示す。)

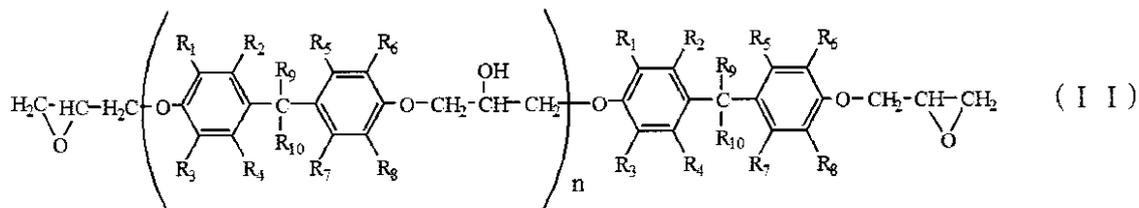
30

【0011】

3. (A) エポキシ樹脂が、下記一般式(II)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の10重量%以上含有する項1または2記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【0012】

【化2】



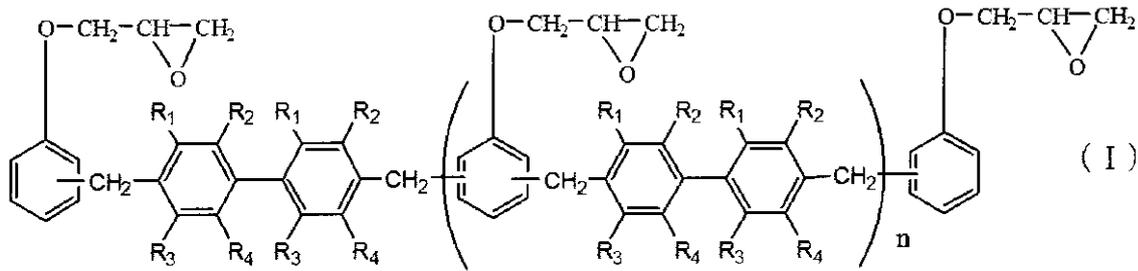
40

(ここで、 $R_1 \sim R_{10}$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 $n$  は0~3の整数を示す。)

【0013】

4. (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤および(C) 無機充填材を含有する圧縮成形封止用エポキシ樹脂成形材料であって、(A) エポキシ樹脂が、下記一般式(I)で示される化合物を、エポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する封止用エポキシ樹脂成形材料。

## 【化 3】



(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$  は 1 ~ 10 の整数を示す。)

5. 項 1 ~ 4 のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止された素子を備えた電子部品装置。

## 【発明の効果】

## 【0014】

本発明による封止用エポキシ樹脂成形材料は、圧縮成形による封止用として、流動性に優れ、特にファインピッチな片面封止型パッケージに適用した際に、パウダー状でブロッキングがなく作業性が良好になり、かつ金線流れ抑制が可能となり、その工業的価値は大である。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0015】

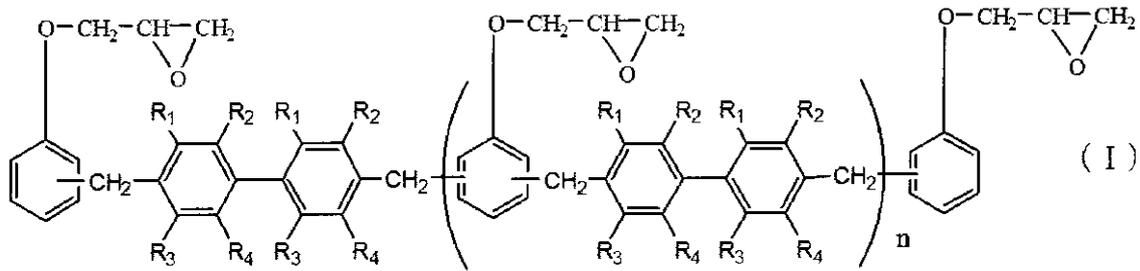
本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、(A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤および(C) 無機充填材を含有し、(A) エポキシ樹脂が、1 分子中に 2 個以上のエポキシ基を有し、150 での溶融粘度が 0.1 Pa·s 以下であり、封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダーの粒度 106  $\mu\text{m}$  以上の成分が 97 重量% 以上である。

(A) 本発明において用いられるエポキシ樹脂は特に限定はないが、たとえば、電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料で一般に使用されているもので、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビフェニレン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノール A ノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール類及び/又はナフトール類とアルデヒド類から合成されるノボラック樹脂をエポキシ化したエポキシ樹脂、ビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール S、アルキル置換ビフェノールなどのジグリシジルエーテル、スチルベン型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸など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である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ナフタレン型エポキシ樹脂、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、硫黄原子含有エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸などの過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、及び脂環族エポキシ樹脂などが挙げられる。

## 【0016】

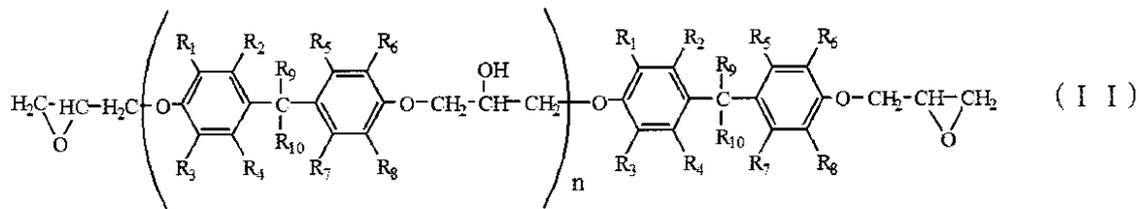
なかでも、流動性及び耐リフロー性の観点からはビフェニル型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂及び硫黄原子含有エポキシ樹脂が好ましく、耐ブロッキング性の観点からはフェノール・アラルキル樹脂、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂が好ましく、これらのエポキシ樹脂の少なくとも 1 種を含有して併用していることが好ましい。これらのエポキシ樹脂としては、以下の一般式 (I) 及び/又は (II) のエポキシ樹脂が好ましい。一般式 (I) のエポキシ樹脂の配合量は、ブロッキング性を考慮するとエポキシ樹脂全体中に 30 重量% 以上、一般式 (II) のエポキシ樹脂については、流動性を考慮すると 10 重量% 以上含むことが好ましい。

## 【化4】



(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$  は 1 ~ 10 の整数を示す。)

## 【化5】



(ここで、 $R_1 \sim R_{10}$  は水素原子及び炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 $n$  は 0 ~ 3 の整数を示す。)

式 (I) のエポキシ樹脂としては、例えば、エポキシ当量 273、軟化点 58、溶融粘度 (150) 0.1 Pa·s のビスフェニレン型エポキシ樹脂 (日本化薬株式会社製商品名 NC-3000) が、式 (II) のエポキシ樹脂としては、例えば、エポキシ当量 92、融点 68、溶融粘度 (150) 0.01 Pa·s のビスフェノール F 型エポキシ樹脂 (東都化成株式会社製商品名 YSLV-80XY)、及びエポキシ当量 468、軟化点 64、溶融粘度 (150) 0.4 Pa·s のビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名 E-1001) が入手可能である。

## 【0017】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、電子部品封止用として一般に使用されているもの以外でも、従来公知のエポキシ樹脂を必要に応じて併用することができる。併用可能なエポキシ樹脂としては、たとえば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソ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ノ又は -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ものが挙げられる。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、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、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、硫黄原子含有エポキシ樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても 2 種以上を組み合わせ

併用して用いてもよい。  
(A) エポキシ樹脂の 150 での溶融粘度は、流動性及びリフロー性の観点から、0.1 Pa·s 以下であればよく、2 種以上のエポキシ樹脂を併用する場合にはエポキシ樹脂全体として 0.1 Pa·s 以下であればよい。

## 【0018】

本発明において用いられる(B)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特に制限はないが、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、アミノフェノール等のフェノール類及び/又は -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/又はナフトール類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、ピフェニレン型フェノール・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、フェノール類及び/又はナフトール類とジシクロペンタジエンから共重合により合成される、ジシクロペンタジエン型フェノールノボラック樹脂、ジシクロペンタジエン型ナフトールノボラック樹脂等のジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、トリフェニルメタン型フェノール樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、パラキシリレン及び/又は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、シクロペンタジエン変性フェノール樹脂、これら2種以上を共重合して得たフェノール樹脂などが挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

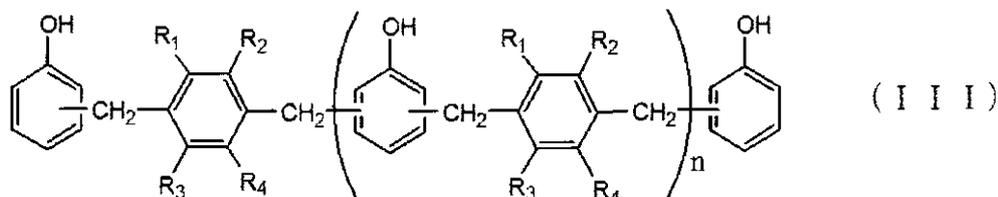
10

## 【0019】

中でも、流動性、リフロー性の観点からは、フェノール・アラルキル樹脂、ピフェニレン型フェノール・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が好ましく、ブロッキングの観点からは、150 での溶融粘度が0.2 Pa・s以上であるフェノール・アラルキル樹脂が好ましい。フェノール・アラルキル樹脂としては、例えば式(III)のフェノール樹脂が挙げられる。

20

## 【化6】



30

(ここで、 $R_1 \sim R_4$  は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、 $n$ は0~10の整数を示す。)

## 【0020】

(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤との当量比、すなわち、エポキシ樹脂中のエポキシ基数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、特に制限はないが、それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5~2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。成形性及び耐リフロー性に優れた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

## 【0021】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤の反応を促進させるために必要に応じて硬化促進剤を用いることができる。硬化促進剤は、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特に制限はないが、たとえば、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、5,6-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及びこれらの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

50

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3級アミン類及びこれらの誘導体、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等のイミダゾール類及びこれらの誘導体、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ホスフィン化合物及びこれらの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、トリフェニルホスフィンテトラフェニルボレート、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-メチルモルホリントテトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン塩及びこれらの誘導体などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

10

20

30

40

50

#### 【0022】

硬化促進剤の配合量は、硬化促進効果が達成される量であれば特に制限されるものではないが、封止用エポキシ樹脂成形材料に対して0.005~2重量%が好ましく、0.01~0.5重量%がより好ましい。0.005重量%未満では短時間での硬化性に劣る傾向があり、2重量%を超えると硬化速度が速すぎて良好な成形品を得ることが困難になる傾向がある。

#### 【0023】

(C)無機充填剤は、吸湿性、線膨張係数低減、熱伝導性向上及び強度向上の効果が有り、たとえば、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、ペリリア、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、ガラス繊維等が挙げられる。さらに、難燃効果のある無機充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、複合金属水酸化物、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛などが挙げられる。

#### 【0024】

これらの無機充填剤は単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。なかでも、充填性、線膨張係数の低減の観点からは溶融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましく、無機充填剤の形状は充填性及び金型摩耗性の点から球形が好ましい。

#### 【0025】

無機充填剤の配合量は、流動性、成形性、吸湿性、線膨張係数低減、強度向上及び耐リフロー性の観点から、封止用エポキシ樹脂組成物に対して、60~95質量%が好ましく、70~90質量%がより好ましい。60質量%未満では難燃性及び耐リフロー性が低下する傾向があり、95質量%を超えると流動性が不足する傾向があり、また難燃性も低下する傾向にある。

#### 【0026】

(C)無機充填剤を用いる場合、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、樹脂成分と充填剤との接着性を高めるために、カップリング剤をさらに配合することが好ましい。カップリング剤としては、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特に制限はないが、たとえば、1級及び/又は2級及び/又は3級アミノ基を有するシラン化合物、エポキシシラン、メルカプトシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン等の各種シラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート類、アルミニウム/ジルコニウム系化合物等が挙げられる。これらを例示すると、ビニルトリクロロシラン、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、-(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メチルジメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、-メルカプト

ロピルトリメトキシシラン、 - アミノプロピルトリメトキシシラン、 - アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 - アミノプロピルトリエトキシシラン、 - アミノプロピルメチルジエトキシシラン、 - 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、 - (N, N - ジメチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、 - (N, N - ジエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、 - (N, N - ジブチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、 - (N - メチル)アニリノプロピルトリメトキシシラン、 - (N - エチル)アニリノプロピルトリメトキシシラン、 - (N, N - ジメチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、 - (N, N - ジエチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、 - (N, N - ジブチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、 - (N - メチル)アニリノプロピルトリエトキシシラン、 - (N - エチル)アニリノプロピルトリエトキシシラン、 - (N, N - ジメチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 - (N, N - ジエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 - (N, N - ジブチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 - (N - メチル)アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、 - (N - エチル)アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、N - (トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、N - (ジメトキシメチルシリルイソプロピル)エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、 - 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、ビニルトリメトキシシラン、 - メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン等のシラン系カップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネート、イソプロピルトリ(N - アミノエチル - アミノエチル)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、テトラ(2, 2 - ジアリルオキシメチル - 1 - ブチル)ビス(ジトリデシル)ホスファイトチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)オキシアセテートチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルホスフェート)チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート等のチタネート系カップリング剤などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種類以上を組み合わせて用いてもよい。

#### 【0027】

なかでも流動性の観点からは2級アミノ基を有するシランカップリング剤が好ましい。カップリング剤の全配合量は、封止用エポキシ樹脂組成物に対して0.037~4.75質量%であることが好ましく、0.05~5質量%であることがより好ましく、0.1~2.5質量%であることがさらに好ましい。0.037質量%未満ではフレームとの接着性が低下する傾向があり、4.75質量%を超えるとパッケージの成形性が低下する傾向がある。

#### 【0028】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、さらに難燃性を向上する目的で従来公知の難燃剤を必要に応じて配合することができる。たとえば、臭素化エポキシ樹脂等の臭素化合物、三酸化アンチモン等のアンチモン化合物、赤リン、酸化亜鉛等の無機化合物とフェノール樹脂等の熱硬化性樹脂で被覆された赤リン及びリン酸エステル、ホスフィンオキサイド等のリン化合物、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、複合金属水酸化物、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などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよい。

#### 【0029】

さらに、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、その他の添加剤として、高級脂肪

酸、高級脂肪酸金属塩、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックス、ポリエチレン、酸化ポリエチレン等の離型剤、カーボンブラック等の着色剤、シリコンオイルやシリコンゴム粉末等の応力緩和剤などを必要に応じて配合することができる。

#### 【0030】

本発明の封止用エポキシ樹脂組成物のゲルタイムは、成形温度で40～100秒が好ましく、40～70秒であることがより好ましい。40秒未満では、金型に成形材料をのせ、樹脂が溶融してから圧縮成形するまでの間に成形材料の粘度が上昇し、金線流れの原因となる。また100秒を超えると、硬化不十分で離型不具合の原因となり、また生産性も劣る。

#### 【0031】

本発明の封止用エポキシ樹脂組成物のパウダーの粒度は、106 $\mu$ m以上の成分が97重量%以上である。106 $\mu$ m以上の成分が97重量%未満では、金型に成形材料をのせ樹脂が溶融するまで時間がかかり、ブロッキングの原因となる。封止用エポキシ樹脂組成物のパウダーの粒度を調整する方法としては、例えば、目開き106 $\mu$ mのフルイ（直径200mm、JIS Z-8801準拠）にのせ、フルイ振とう器にセットし、振とう数200rpmで10分間振とうする方法がある。

但し、エポキシ樹脂として一般式(I)で示される化合物をエポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する場合は、パウダーの粒度は106 $\mu$ m以上の成分が97重量%未満でもよい。一般式(I)で示される化合物をエポキシ樹脂全体の30重量%以上含有する場合は、パウダーの粒度は106 $\mu$ m以上の成分が97重量%未満でも優れたブロッキング性が得られるためである。

#### 【実施例】

#### 【0032】

次に実施例により本発明を説明するが、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。

#### 【0033】

実施例1～5、比較例1～4

以下の成分をそれぞれ表1に示す重量部で配合し、混練温度80、混練時間10分の条件でロール混練を行い、パワーミルで粉碎し、封止用エポキシ樹脂成形材料を作製した。実施例1～3については、パワーミルで粉碎した後、さらに目開き106 $\mu$ mのフルイ（直径200mm、JIS Z-8801準拠）にのせ、これをフルイ振とう器にセットし振とう数200rpmで10分間振とうして、封止用エポキシ樹脂成形材料を作製した。

#### 【0034】

エポキシ樹脂として、エポキシ当量192、融点109、溶融粘度(150)0.01Pa $\cdot$ sのビフェニル型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂1、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名エピコートYX-4000、4,4'-ビス(2,3-エポキシプロポキシ)-3,3',5,5'-テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂)、エポキシ当量92、融点68、溶融粘度(150)0.01Pa $\cdot$ sのビスフェノールF型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂2、東都化成株式会社製商品名YSLV-80XY、式(II)中、R<sub>1</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>8</sub>がメチル基で、R<sub>2</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>7</sub>、R<sub>9</sub>及びR<sub>10</sub>が水素原子であり、n=0を主成分のビスフェノールF型エポキシ樹脂)、エポキシ当量273、軟化点58、溶融粘度(150)0.1Pa $\cdot$ sのビフェニレン型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂3、日本化薬株式会社製商品名NC-3000、一般式(I)のビフェニレン基を有するアラルキル型エポキシ樹脂)、エポキシ当量468、軟化点64、溶融粘度(150)0.4Pa $\cdot$ sのビスフェノールA型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂4、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名E-1001、R<sub>9</sub>及びR<sub>10</sub>がメチル基)を使用した。

#### 【0035】

硬化剤として水酸基当量175、軟化点66、溶融粘度(150)0.11Pa $\cdot$ sのフェノール・アラルキル樹脂(硬化剤1、明和化成株式会社製商品名MEH-7800

10

20

30

40

50

-SS)、水酸基当量100、軟化点83、溶融粘度(150)0.1Pa・sのフェノール樹脂(硬化剤2、明和化成株式会社製商品名MEH-7500-3S)、水酸基当量175、軟化点70、溶融粘度(150)0.17Pa・sのフェノール・アラキル樹脂(硬化剤3、三井化学株式会社製商品名ミレックスXLC-3L)、を使用した。

【0036】

硬化促進剤としてトリフェニルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの1:1付加物(硬化促進剤)を使用した。

無機充填材として平均粒径37.0μmの球状溶融シリカ(充填材1)、平均粒径32.0μmの球状溶融シリカ(充填材2)を使用した。

難燃剤として、三酸化アンチモンおよび臭素化エポキシ樹脂(東都化成化成株式会社製YDB-400、軟化点69、臭素含量49質量%)を使用した。

カップリング剤としてγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(信越化学株式会社製商品名KBM-573)を使用した。

その他の添加剤としてカルナバワックス(クラリアント社製)及びカーボンブラック(三菱化学株式会社製商品名MA-600)を使用した。

【0037】

【表1】

配合成分	単位	実施例					比較例			
		1	2	3	4	5	1	2	3	4
エポキシ樹脂1	重量部	100	-	85	20	60	100	-	85	85
エポキシ樹脂2		-	100	-	-	-	-	100	-	-
エポキシ樹脂3		-	-	-	80	40	-	-	-	-
エポキシ樹脂4		-	-	-	-	-	-	-	-	15
臭素化エポキシ樹脂		-	-	15	-	-	-	-	15	-
硬化剤1		90	-	-	-	85	90	-	-	84
硬化剤2		-	-	55	-	-	-	-	55	-
硬化剤3		-	110	-	83	-	-	110	-	-
硬化促進剤		1.5	3.0	2.5	2.5	2.0	1.5	3.0	2.5	1.5
カップリング剤		7	7	7	7	7	7	7	7	7
カルナバワックス		2	2	2	2	2	2	2	2	2
三酸化アンチモン		-	-	15	-	-	-	-	15	-
カーボン		3	3	3	3	3	3	3	3	3
充填材1		1832	2025	-	-	1809	1832	2025	-	1778
充填材2	-	-	978	1120	-	-	-	978	-	

【0038】

作製した実施例及び比較例の封止用エポキシ樹脂成形材料を、次の各試験により評価した。結果を表2に示す。

なお、封止用エポキシ樹脂成形材料の成形は、180で90秒行った。また、後硬化は180で5時間行った。

(1) スパイラルフロー(流動性の指標)

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トランスファ成形機により、金型温度175、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で成形し、流動距離(cm)を求めた。

(2) ゲルタイム

秤量した試料（封止用エポキシ樹脂成形材料）0.5 gを175 に加熱した熱板の中心部にのせ、175 に加熱した金属製のヘラで材料が直径5 cm程度の円形になるように練り、材料の流動性がなくなった時を終点とし、材料を熱板にのせてから終点までの時間（s）を測定し、ゲルタイムとした。

（3）パウダー粒度

封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダー50 gを、目開き106 μmのフルイ（直径200 mm、JIS Z-8801準拠）にのせ、フルイ振とう器にセットし、振とう数200 rpmで10分間振とう後、フルイ上に残ったパウダーの重量を測定し、その重量%を106 μm以上の成分とする。

（4）ブロッキング性

封止用エポキシ樹脂成形材料のパウダー10 gを、直径50 mmのアルミカップに入れ、20 または25 にセットした恒温槽中に12 h放置し、パウダーのブロッキングの状態を観察した。判定は、○：ブロッキングなし、△：軽く触れる程度で固まりがくずれ、×：軽く触れても固まりがくずれない、とした。

【0039】

【表2】

項目	単位	実施例					比較例			
		1	2	3	4	5	1	2	3	4
スパイラルフロー	cm	146	151	183	188	133	146	151	183	122
ゲルタイム	s	63	56	45	47	50	63	56	45	56
パウダー粒度 (106μm以上)	重量%	99	99	99	94	92	93	94	88	93
ブロッキング (20°C)	-	○	○	○	○	○	△	×	△	○
ブロッキング (25°C)	-	△	△	○	○	△	×	×	×	○

【0040】

パウダー粒度106 μm以上の成分が97重量%未満である比較例1～3のエポキシ樹脂成形材料はブロッキング性に非常に劣っている（4/6が×）。また、150での溶融粘度が0.1 Pa・sを超えるエポキシ樹脂を含む比較例4のエポキシ樹脂成形材料は、流動性において非常に劣っている（スパイラルフロー値：122 cm）。

これに対し、150での溶融粘度が0.1 Pa・sを超えるエポキシ樹脂を含み、パウダー粒度106 μm以上の成分が97重量%以上である実施例1～3による本願発明のエポキシ樹脂成形材料は、流動性に優れ（スパイラルフロー値：146～183 cm）、かつ、ブロッキング性が良好である（4/6が○）。

また、一般式（I）で示されるエポキシ樹脂を含有する実施例4～5による本願発明のエポキシ樹脂成形材料は、ブロッキング性が良好である（3/4が○）。

---

フロントページの続き

(72)発明者 大和田 英雄

茨城県結城市大字鹿窪 1 7 7 2 - 1 日立化成工業株式会社下館事業所内

(72)発明者 小坂 正彦

茨城県結城市大字鹿窪 1 7 7 2 - 1 日立化成工業株式会社下館事業所内

(72)発明者 池内 孝敏

茨城県結城市大字鹿窪 1 7 7 2 - 1 日立化成工業株式会社下館事業所内

Fターム(参考) 4J036 AA05 AD08 AE07 DA01 DA02 FA01 FA05 FA13 FB07 JA07  
4M109 AA01 CA22 EA02 EB02 EB04 EB07 EB12 GA10