

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4715139号
(P4715139)

(45) 発行日 平成23年7月6日(2011.7.6)

(24) 登録日 平成23年4月8日(2011.4.8)

(51) Int.Cl.		F I	
CO8G 59/40	(2006.01)	CO8G 59/40	
HO1L 23/29	(2006.01)	HO1L 23/30	R
HO1L 23/31	(2006.01)		

請求項の数 7 (全 30 頁)

(21) 出願番号	特願2004-266674 (P2004-266674)	(73) 特許権者	000004455
(22) 出願日	平成16年9月14日 (2004.9.14)		日立化成工業株式会社
(65) 公開番号	特開2006-83212 (P2006-83212A)		東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(43) 公開日	平成18年3月30日 (2006.3.30)	(74) 代理人	100083806
審査請求日	平成19年8月16日 (2007.8.16)		弁理士 三好 秀和
		(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 総合研究所内
		(72) 発明者	片寄 光雄
			茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式会社 総合研究所内
		(72) 発明者	天童 一良
			茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式会社 総合研究所内

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

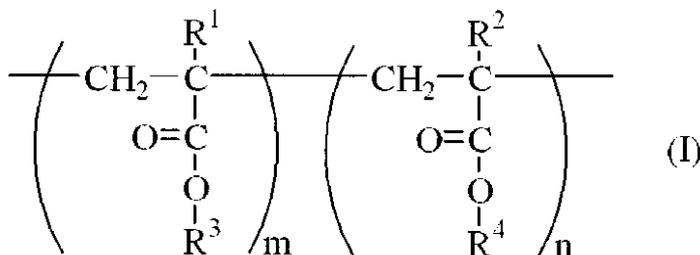
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 下記一般式(I)で示されるアクリル化合物を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料であって。

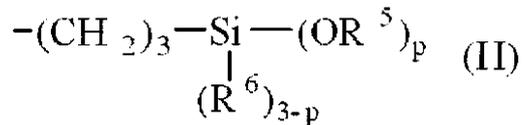
封止用エポキシ樹脂成形材料に対して(C)上記一般式(I)で示されるアクリル化合物の割合が0.05~0.7重量%である封止用エポキシ樹脂成形材料。

【化1】



(一般式(I)で、R¹、R²は水素原子及びメチル基を示し、R³は炭素数1~6の炭化水素基を示し、R⁴は下記一般式(II)で示す基、mは1~20の整数、nは0~20の整数を示し、化合物中のn/mの平均値が0.05以上3以下。)

【化 2】



(一般式(II)で、R⁵は水素原子及び炭素数1～6の炭化水素基を示し、R⁶は炭素数1～6の炭化水素基を示し、pは1～3の整数を示す。)

【請求項 2】

(A) エポキシ樹脂がビフェニル型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂、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、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂及びビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂の少なくとも1種を含有する請求項1記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

10

【請求項 3】

(B) 硬化剤がビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂、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、ノボラック型フェノール樹脂及び共重合型フェノール・アラルキル樹脂の少なくとも1種を含有する請求項1又は2に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

20

【請求項 4】

(D) シラン化合物をさらに含有する請求項1～3のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 5】

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

【請求項 6】

(F) 無機充てん剤をさらに含有する請求項1～5のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 7】

請求項1～6のいずれか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。

30

【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、及びこの成形材料で封止した素子を備えた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。

40

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なされるようになってきている。半導体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、配線板裏面から半田付けを行うため、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半導体装置全体が半田バスやリフロー装置などで処理されるため、直接半田付け温度にさらされる。この結果、パッケージが吸湿した場合、半田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

50

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。

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が、これらの方法は手間がかかり、コストも高くなる(例えば、非特許文献1参照)。別の対策としては充てん剤の含有量を増加する方法が挙げられるが、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、大幅な流動性の低下を引き起こしてしまう問題があった。これまでにエポキシ樹脂成形材料の流動性を損なうことなく充てん剤の含有量を増加する方法として、充てん剤粒度分布を最適化する方法が提案されている(例えば、特許文献1参照)が、この方法では流動性の改善には十分な効果が得られていない。また、封止用エポキシ樹脂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新たな問題も生じており流動性の向上が求められている(例えば、非特許文献2参照)。

10

【0003】

【非特許文献1】(株)日立製作所半導体事業部編「表面実装形LSIパッケージの実装技術とその信頼性向上」応用技術出版1988年11月16日、254-256頁

【特許文献1】特開平06-224328号公報

【非特許文献2】(株)技術情報協会編「半導体封止樹脂の高信頼性化」技術情報協会1990年1月31日、172-176頁

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0004】

本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、硬化性を低下させることなく流動性、耐半田リフロー性に優れる封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止した素子を備えた電子部品装置を提供しようとするものである。

【課題を解決するための手段】

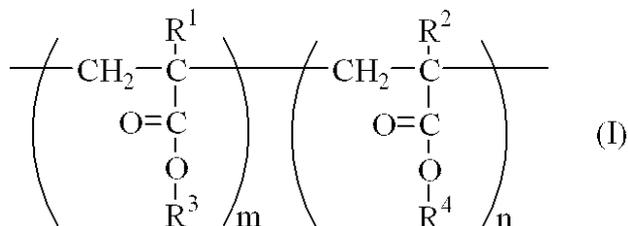
【0005】

本発明は、

(1) (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 下記一般式(I)で示されるアクリル化合物を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料、

【化1】

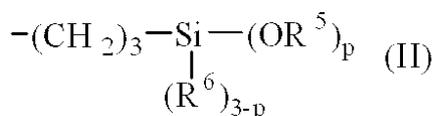
30



(一般式(I)で、R¹、R²は水素原子及びメチル基を示し、R³は炭素数1~6の炭化水素基を示し、R⁴は下記一般式(II)で示す基、mは1~20の整数、nは0~20の整数を示し、化合物中のn/mの平均値が0.05以上3以下。)

40

【化2】



(一般式(II)で、R⁵は水素原子及び炭素数1~6の炭化水素基を示し、R⁶は炭素数1~6の炭化水素基を示し、pは1~3の整数を示す。)

(2) 封止用エポキシ樹脂成形材料に対して(C)上記一般式(I)で示されるアクリル化合物の割合が0.05~0.7重量%である上記1記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

50

(3)(A) エポキシ樹脂がビフェニル型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂、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、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂及びビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂の少なくとも1種を含有する上記1又は2記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

(4)(B) 硬化剤がビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂、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、ノボラック型フェノール樹脂及び共重合型フェノール・アラルキル樹脂の少なくとも1種を含有する上記1～3のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

(5)(D) シラン化合物をさらに含有する上記1～4のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

(6) 硬化促進剤をさらに含有する上記1～5のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

(7) 無機充てん剤をさらに含有する上記1～6のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、

(8) 上記1～7のいずれか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、

に関する。

【発明の効果】

【0006】

本発明によって得られる封止用エポキシ樹脂成形材料は、硬化性を低下させることなく流動性、耐半田リフロー性に優れる信頼性の高い電子部品装置を得ることができ、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】

【0007】

本発明において用いられる(A)エポキシ樹脂は、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・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/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、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、アルキル置換又は非置換のビフェノール等のジグリシジルエーテル、スチルベン型エポキシ樹脂、ハイ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、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)ビフェニルから合成されるアラルキル型フェノール樹脂、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、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種以上を組合わせて用いてもよい。

なかでも、耐半田リフロー性の観点からはビフェニル型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂が好ましく、硬化性の観点からはノボラック型エポキシ樹脂が好ましく、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

10

20

30

40

50

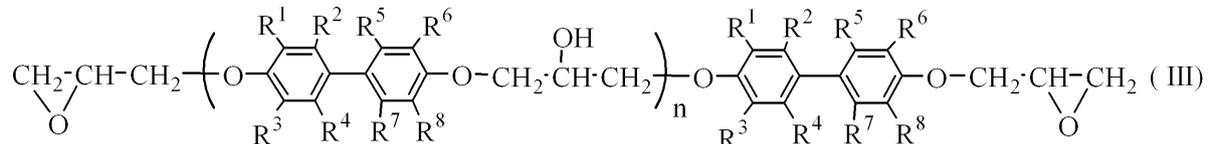
脂が好ましく、耐熱性及び低反り性の観点からはナフタレン型エポキシ樹脂及びトリフェニルメタン型エポキシ樹脂が好ましく、難燃性の観点からはビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂が好ましく、これらのエポキシ樹脂の少なくとも1種を含有していることが好ましい。

【0008】

ビフェニル型エポキシ樹脂としてはたとえば下記一般式(III)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられ、硫黄原子含有エポキシ樹脂としてはたとえば下記一般式(IV)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられ、ビスフェノールF型エポキシ樹脂としてはたとえば下記一般式(V)で示されるエポキシ樹脂が挙げられる。

【0009】

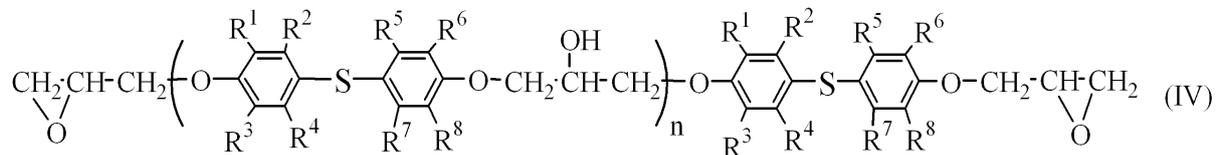
【化3】



(一般式(III)で、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ 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、これらは全てが同一でも異なってもよい。 n は0~3の整数を示す。)

【0010】

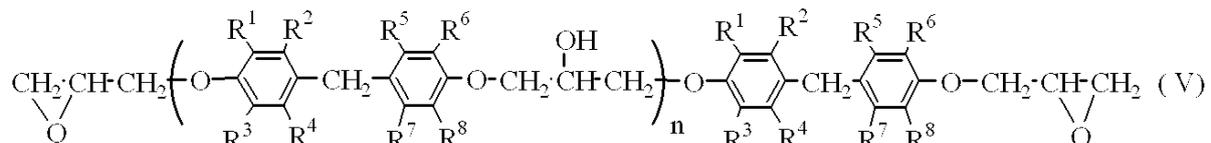
【化4】



(一般式(IV)で、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ 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、これらは全てが同一でも異なってもよい。 n は0~3の整数を示す。)

【0011】

【化5】



(一般式(V)で、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ 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、これらは全てが同一でも異なってもよい。 n は0~3の整数を示す。)

上記一般式(III)で示されるビフェニル型エポキシ樹脂としては、たとえば、4,4'-ビス(2,3-エポキシプロポキシ)ビフェニル又は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、エピクロルヒドリンと4,4'-ビフェノール又は4,4'-(3,3',5,5'-テトラメチル)ビフェノールとを反応させて得られるエポキシ樹脂等が挙げられる。なかでも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が好ましい。

上記一般式(IV)で示される硫黄原子含有エポキシ樹脂のなかでも、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ が水素原子、置換又は非置換の炭素数1~10のアルキル基及び置換又は非置換の炭素数1~10のアルコキシ基から選ばれるエポキシ樹脂が好ましく、 R^1 、 R^4 、 R^5 及び R^8 が水素原子で、 R^2 、 R^3 、 R^6 及び R^7 がアルキル基であるエポキシ樹脂がより好ましく、 R^1 、 R^4 、 R^5 及び R^8 が水素原子で、 R^2 及び R^7 がメチル基で、 R^3 及び R^6 がt-ブチル基であるエポキシ樹脂がさらに好ましい。このような化合物としては、YSL

10

20

30

40

50

V-120TE（新日鐵化学社製）等が市販品として入手可能である。

上記一般式（V）で示されるビスフェノールF型エポキシ樹脂としては、例えば、R¹、R³、R⁶及びR⁸がメチル基で、R²、R⁴、R⁵及びR⁷が水素原子であり、n = 0を主成分とするYSLV-80XY（新日鐵化学株式会社製商品名）が市販品として入手可能である。

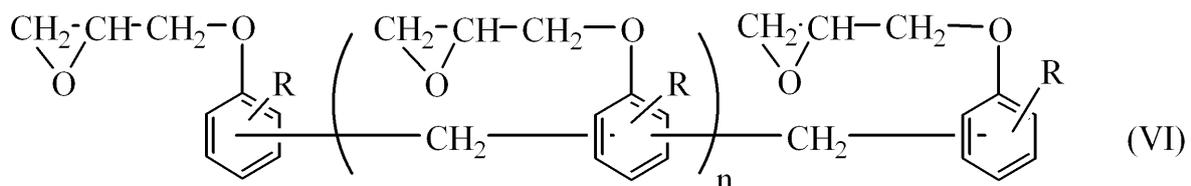
これらビフェニル型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂及びビスフェノールF型エポキシ樹脂はいずれか1種を単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよいが、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して合わせて20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、50重量%以上とすることがさらに好ましい。

【0012】

ノボラック型エポキシ樹脂としては、たとえば下記一般式（VI）で示されるエポキシ樹脂等が挙げられる。

【0013】

【化6】



（一般式（VI）で、R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。）

上記一般式（VI）で示されるノボラック型エポキシ樹脂は、ノボラック型フェノール樹脂にエピクロルヒドリンを反応させることによって容易に得られる。なかでも、上記一般式（VI）中のRとしては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等の炭素数1～10のアルコキシ基が好ましく、水素原子又はメチル基がより好ましい。nは0～3の整数が好ましい。上記一般式（VI）で示されるノボラック型エポキシ樹脂のなかでも、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が好ましい。

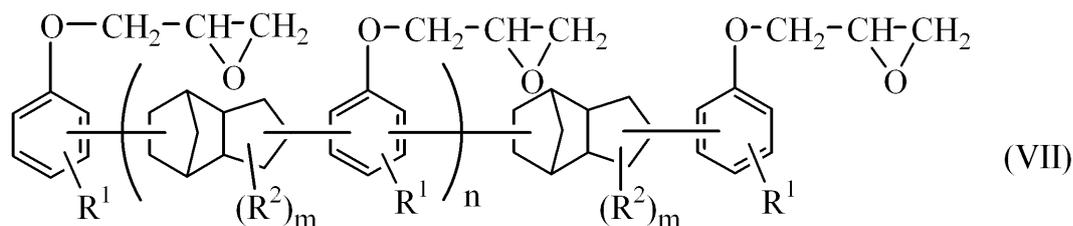
ノボラック型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましい。

【0014】

ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂としては、たとえば下記一般式（VII）で示されるエポキシ樹脂等が挙げられる。

【0015】

【化7】



（一般式（VII）で、R¹及びR²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それぞれ独立して選ばれ、nは0～10の整数を示し、mは0～6の整数を示す。）

上記一般式（VII）中のR¹としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、t-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、

10

20

30

40

50

メルカプト基置換アルキル基などの炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、メチル基及び水素原子がより好ましい。R²としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、t-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでも水素原子が好ましい。

ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して 20 重量%以上とすることが好ましく、30 重量%以上がより好ましい。

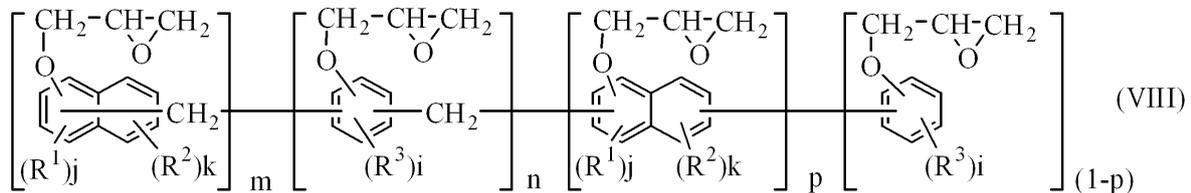
【0016】

ナフタレン型エポキシ樹脂としてはたとえば下記一般式(VIII)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられ、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂としてはたとえば下記一般式(IX)で示されるエポキシ樹脂等が挙げられる。

下記一般式(VIII)で示されるナフタレン型エポキシ樹脂としては、m個の構成単位及びn個の構成単位をランダムに含むランダム共重合体、交互に含む交互共重合体、規則的に含む共重合体、ブロック状に含むブロック共重合体が挙げられ、これらのいずれか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。また、下記一般式(IX)で示されるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂としては特に制限はないが、サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂が好ましい。

【0017】

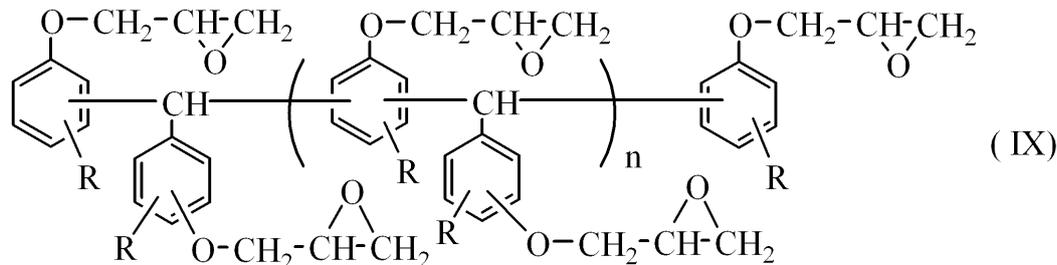
【化8】



(一般式(VIII)で、R¹ ~ R³は水素原子及び炭素数 1 ~ 12 の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、これらは全てが同一でも異なってもよい。pは1又は0で、m、nはそれぞれ0 ~ 11の整数であって、(m+n)が1 ~ 11の整数でかつ(m+p)が1 ~ 12の整数となるよう選ばれる。iは0 ~ 3の整数、jは0 ~ 2の整数、kは0 ~ 4の整数を示す。)

【0018】

【化9】



(一般式(IX)で、R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。)

これらナフタレン型エポキシ樹脂及びトリフェニルメタン型エポキシ樹脂はいずれか1種を単独で用いても両者を組合わせて用いてもよいが、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して合わせて20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、50重量%以上とすることがさらに好ましい。

【0019】

10

20

30

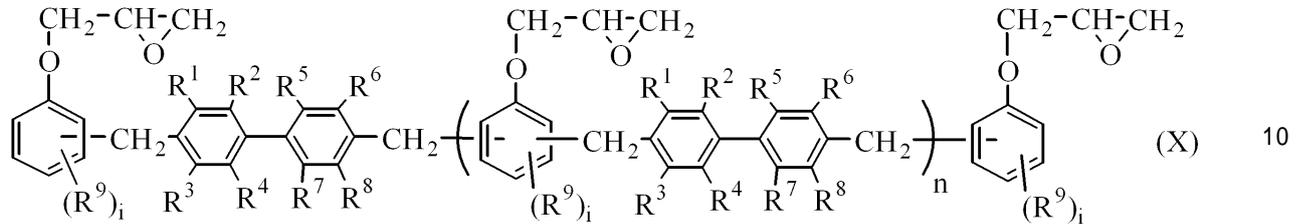
40

50

ビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂としては下記一般式(X)で示されるエポキシ樹脂が挙げられ、難燃性と耐リフロー性の観点からは下記一般式(X)の $R^1 \sim R^8$ が水素原子であることが好ましく、このような化合物としては、NC-3000(日本化薬社製)等が市販品として入手可能である。

【0020】

【化10】



(一般式(X)で、 $R^1 \sim R^9$ は水素原子、炭素数1~10の置換又は非置換のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~10のアリール基及び炭素数6~10のアラルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 i は0~3の整数を示し、 n は0~10の整数を示す。)

ビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましい。

【0021】

また、難燃性と耐リフロー性、流動性の両立の観点からは上記一般式(III)で示されるエポキシ樹脂を含有していることが好ましく、なかでも上記一般式(X)の $R^1 \sim R^8$ が水素原子で上記一般式(III)の $R^1 \sim R^8$ が水素原子で $n=0$ であることがより好ましい。また特にその配合重量比は、(III)/(X)=50/50~5/95であることが好ましく、40/60~10/90であるものがより好ましく、30/70~15/85であるものがさらに好ましい。このような配合重量比を満足する化合物としては、CER-3000L(日本化薬社製)等が市販品として入手可能である。

【0022】

上記のビフェニル型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂、ビスフェノールF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、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂及びビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂は、いずれか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が、その配合量はエポキシ樹脂全量に対して合わせて50重量%以上とすることが好ましく、60重量%以上がより好ましく、80重量%以上がさらに好ましい。

【0023】

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)ビ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、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、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などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組合わせて用いてもよい。

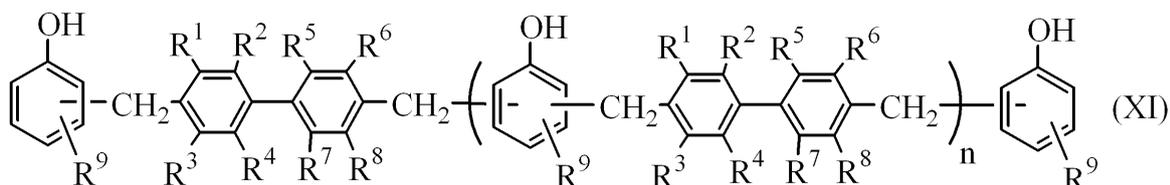
なかでも、難燃性の観点からはビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂及び共重合型フェノール・アラルキル樹脂が好ましく、耐半田リフロー性及び硬化性の観点からはフェノール・アラルキル樹脂及びナフトール・アラルキル樹脂が好ましく、低吸湿性の観点からはジシクロペンタジエン型フェノール樹脂が好ましく、耐熱性、低膨張率及び低そり性の観点からはトリフェニルメタン型フェノール樹脂が好ましく、硬化性の観点からはノボラック型フェノール樹脂が好ましく、これらのフェノール樹脂の少なくとも1種を含有していることが好ましい。

【0024】

ビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂としては、たとえば下記一般式(XI)で示されるフェノール樹脂が挙げられる。

【0025】

【化11】



(一般式(XI)で、 $R^1 \sim R^9$ は水素原子、炭素数1~10の置換又は非置換のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数6~10のアリール基及び炭素数6~10のアラルキル基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 n は0~10の整数を示す。)

上記一般式(XI)中の $R^1 \sim R^9$ としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1~10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等の炭素数1~10のアルコキシ基、フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6~10のアリール基及びベンジル基、フェネチル基等の炭素数6~10のアラルキル基から選ばれ、なかでも水素原子とメチル基が好ましい。 n は0~10の整数を示す。上記一般式(XI)で示されるビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂としては、たとえば $R^1 \sim R^9$ が全て水素原子である化合物等が挙げられ、なかでも溶融粘度の観点から、 n が1以上の縮合体を50重量%以上含む縮合体の混合物が好ましい。

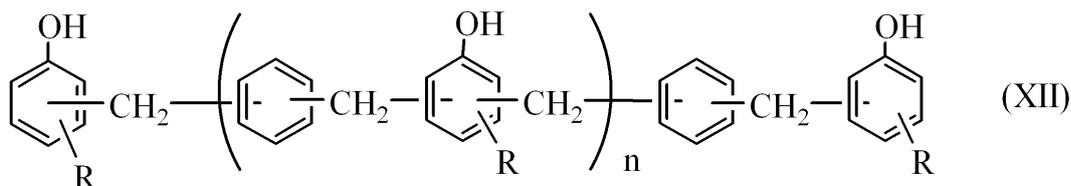
ビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂を使用する場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましく、60重量%以上がさらに好ましい。

【0026】

フェノール・アラルキル樹脂としては、たとえば下記一般式(XII)で示されるフェノール・アラルキル樹脂等が挙げられる。

【0027】

【化12】



(一般式(XII)で、 R 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。)

上記一般式(XII)中の R としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでも、 R が水素原子で、 n の平均値が0~8であるフェノール・アラルキ

10

20

30

40

50

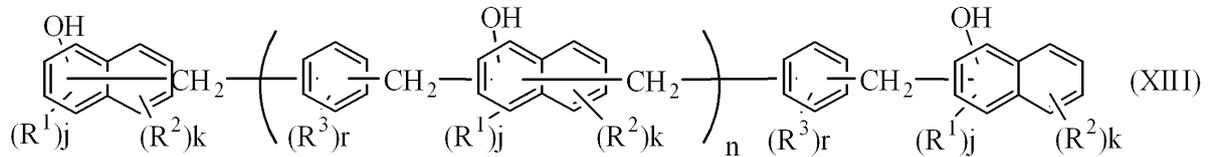
ル樹脂が好ましく、具体例としては、p-キシリレン型ザイロック、m-キシリレン型ザイロック等が挙げられる。このフェノール・アラルキル樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましく、60重量%以上がさらに好ましい。

【0028】

ナフトール・アラルキル樹脂としては、たとえば下記一般式(XIII)で示されるナフトール・アラルキル樹脂等が挙げられる。

【0029】

【化13】



10

(一般式(XIII)で、 $R^1 \sim R^3$ は全てが同一でも異なってもよく、水素原子及び炭素数1~6のアルキル基を示す。 n は0~10の整数、 j は0~2の整数、 k は0~4の整数、 r は0~4の整数を示す。)

上記一般式(XIII)中の $R^1 \sim R^3$ としてはたとえば水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1~6のアルキル基から選ばれ、なかでも $R^1 \sim R^3$ 水素原子で1分子中の平均 n が0~4の範囲に設定されることが好ましい。

20

ナフトール・アラルキル樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましい。

【0030】

上記一般式(XIII)で示されるフェノール・アラルキル樹脂及び上記一般式(XIII)で示されるナフトール・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と予備混合されていてもよい。アセナフチレンはアセナフテ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、アセナフチレンの重合体又はアセナフチレンと他の芳香族オレフィンとの重合体として用いることもできる。(B)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、(B)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、(B)硬化剤及び/又はアセナフチレン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が、均一な混合物が得られて不純物の混入が少ない溶融混合方法が好ましい。その際、混合中にアセナフチレンが重合もしくは(B)硬化剤と反応しても構わない。

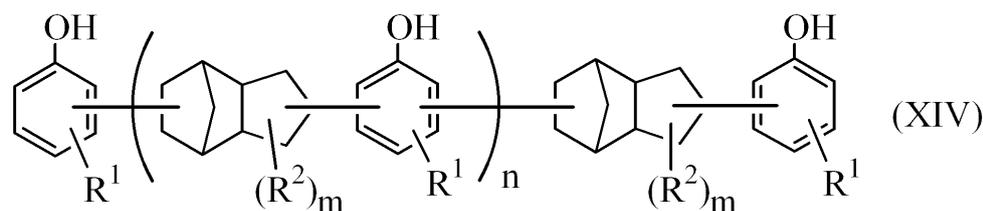
30

【0031】

ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂としては、たとえば下記一般式(XIV)で示されるフェノール樹脂等が挙げられる。

【0032】

【化14】



(一般式(XIV)で、 R^1 及び R^2 は水素原子、炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基からそれぞれ独立して選ばれ、 n は0~10の整数を示し、 m は0~6の整数を示す。)

50

上記一般式 (XIV) 中の R^1 としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、メチル基及び水素原子がより好ましい。 R^2 としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでも水素原子が好ましい。また 1 分子中の平均 n が 0 ~ 4 の範囲に設定されることが好ましい。

10

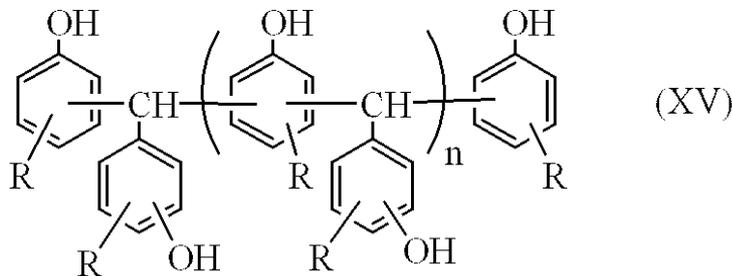
ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して 30 重量%以上とすることが好ましく、50 重量%以上がより好ましい。

【0033】

トリフェニルメタン型フェノール樹脂としては、たとえば下記一般式 (XV) で示されるフェノール樹脂等が挙げられる。

【0034】

【化15】



20

(一般式 (XV) で、 R 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。)

上記一般式 (XV) 中の R としては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、*t*-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数 1 ~ 10 の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、メチル基及び水素原子がより好ましい。

30

トリフェニルメタン型フェノール樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して 30 重量%以上とすることが好ましく、50 重量%以上がより好ましい。

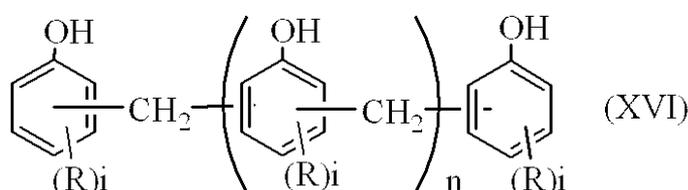
【0035】

ノボラック型フェノール樹脂としては、たとえば下記一般式 (XVI) で示されるフェノール樹脂等のノボラック型フェノール樹脂、クレゾールノボラック樹脂等が挙げられ、なかでも下記一般式 (XVI) で示されるノボラック型フェノール樹脂が好ましい。

40

【0036】

【化16】



50

(一般式(XVI)で、R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、iは0~3の整数を示し、nは0~10の整数を示す。)

上記一般式(XVI)中のRとしては、たとえば、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、t-ブチル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等のアルケニル基、ハロゲン化アルキル基、アミノ基置換アルキル基、メルカプト基置換アルキル基などの炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基が挙げられ、なかでもメチル基、エチル基等のアルキル基及び水素原子が好ましく、水素原子がより好ましく、nの平均値が0~8であることが好ましい。

ノボラック型フェノール樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましい。

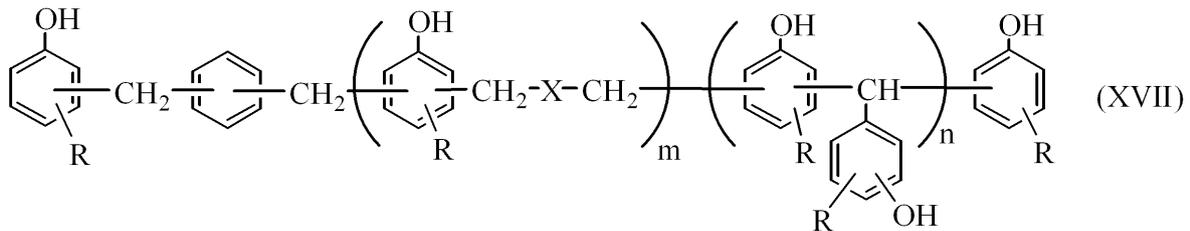
10

【0037】

共重合型フェノール・アラルキル樹脂としては、たとえば下記一般式(XVII)で示されるフェノール樹脂が挙げられる。

【0038】

【化17】



20

(一般式(XVII)で、Rは水素原子、炭素数1~12の置換又は非置換の一価の炭化水素基及び水酸基から選ばれ、すべてが同一でも異なってもよい。またXは芳香環を含む基を示す。n及びmは0又は1~10の整数を示す。)

上記一般式(XVII)中のRとしては、たとえば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基等の鎖状アルキル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等の環状アルキル基、ベンジル基、フェネチル基等のアリール基置換アルキル基、メトキシ基置換アルキル基、エトキシ基置換アルキル基、ブトキシ基置換アルキル基等のアルコキシ基置換アルキル基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のアミノ基置換アルキル基、水酸基置換アルキル基、フェニル基、ナフチル基、ピフェニル基等の無置換アリール基、トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基、ブチルフェニル基、t-ブチルフェニル基、ジメチルナフチル基等のアルキル基置換アリール基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、ブトキシフェニル基、t-ブトキシフェニル基、メトキシナフチル基等のアルコキシ基置換アリール基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のアミノ基置換アリール基、水酸基置換アリール基などが挙げられ、なかでも水素原子又はメチル基が好ましく、またn及びmは0又は1~10の整数を示し、平均で6以下がより好ましい。

30

40

上記一般式(XVII)中のXとしては、たとえばフェニレン基、ピフェニレン基、ナフチレン基等のアリーレン基、トリレン基、キシリレン基等のアルキル基置換アリーレン基、アルコキシ基置換アリーレン基、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基、アラルキル基置換アリーレン基などが挙げられ、なかでも、置換又は非置換のフェニレン基及びピフェニレン基が好ましい。一般式(XVII)で示される化合物としては、HE-510住金エア・ウォーター・ケミカル株式会社製)等が市販品として入手可能である。共重合型フェノール・アラルキル樹脂を用いる場合、その配合量はその性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましい。

【0039】

50

上記のビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル樹脂、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、ノボラック型フェノール樹脂及び共重合型フェノール・アラルキル樹脂は、いずれか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が、その配合量はフェノール樹脂全量に対して合わせて50重量%以上とすることが好ましく、60重量%以上がより好ましく、80重量%以上がさらに好ましい。

【0040】

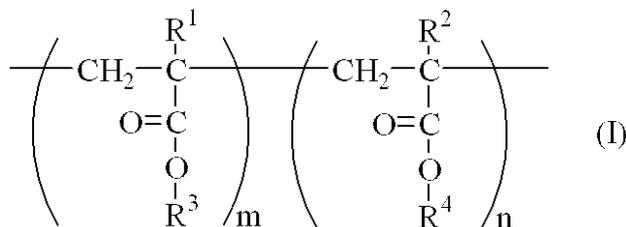
本発明において、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤との当量比、すなわちエポキシ基に対する硬化剤中の水酸基数の比(硬化剤中の水酸基数/エポキシ樹脂中のエポキシ基数)は、特に制限はないが、それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5~2の範囲に設定されることが好ましく、0.6~1.3がより好ましい。成形性、耐半田リフロー性に優れる封止用エポキシ樹脂成形材料を得るためには0.8~1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

【0041】

本発明で用いられる(C)下記一般式(I)で示されるアクリル化合物は下記一般式に示す構造であれば特に制限は無く、m個の構成単位及びn個の構成単位をランダムに含むランダム共重合体、交互に含む交互共重合体、規則的に含む共重合体、ブロック状に含むブロック共重合体が挙げられ、これらのいずれか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。またアクリル化合物の末端構造は水素原子及びメルカプト基含有化合物等、従来公知の連鎖移動剤等で修飾されていてもよい。構造中のR¹、R²としては水素原子及びメチル基が挙げられ、流動性の観点からメチル基が好ましい。R³はメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基が挙げられ、中でもメチル基、n-ブチル基が好ましく、流動性及び成形性のバランスの観点からはメチル基が特に好ましい。mは1~20の整数を示すが、成形性の観点から1~15が好ましく、3~10がより好ましい。nは0~20の整数を示すが、流動性及び成形性のバランスの観点から1~15が好ましく、3~10がより好ましい。化合物中のn/mの平均値は0.05以上3以下を示すが、流動性と成形性のバランスの観点からは0.1以上2.5以下が好ましく、0.2以上2以下がより好ましい。下記一般式(II)で示されるR⁴中のR⁵、R⁶としてはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、t-ブチル基などのアルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブテニル基等のアルケニル基など炭素数1~6の炭化水素基が挙げられ、なかでも炭素数1~6のアルキル基が好ましく、成形性又は接着性の観点からはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、等の炭素数1~4のアルキル基がより好ましい。またpは1~3の整数を示すが、接着性の観点からは2又は3であるものが好ましく、3であるものがより好ましい。一般式(I)で示されるアクリル化合物のなかでも好ましい化合物としてはAS-300(綜研化学株式会社製)等が市販品として入手可能である。

【0042】

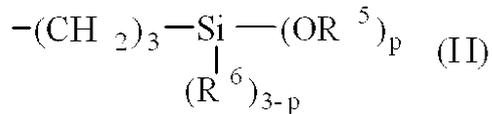
【化18】



(一般式(I)で、R¹、R²は水素原子及びメチル基を示し、R³は炭素数1~6の炭化水素基を示し、R⁴は下記一般式(II)で示す基、mは1~20の整数、nは0~20の整数を示し、化合物中のn/mの平均値が0.05以上3以下。)

【0043】

【化19】



(一般式(II)で、R⁵は水素原子及び炭素数1～6の炭化水素基を示し、R⁶は炭素数1～6の炭化水素基を示し、pは1～3の整数を示す。)

【0044】

(C)上記一般式で示されるアクリル化合物の全配合量は流動性、成形性及び耐リフロー性の観点から封止用エポキシ樹脂成形材料に対して0.03～0.8重量%が好ましく、0.04～0.75重量%がより好ましく、0.05～0.7重量%がさらに好ましい。0.03重量%未満では発明の効果が小さくなる傾向にあり、0.8重量%を超える場合には流動性は向上するが耐リフロー性が大幅に低下する傾向がある。

10

【0045】

本発明で用いられる(C)上記一般式(I)で示されるアクリル化合物の製造方法は、得られる化合物が上記一般式(I)に示す構造であれば特に制限は無い。例えば、重合開始剤としてアゾ化合物や過酸化物を用い、連鎖移動剤としてメルカプタン類の存在下アクリル系モノマーを重合する方法や、メタロセン化合物とメルカプトプロピルトリメトキシシラン等の反応性シリル基存在下アクリル系モノマーを重合する方法等が挙げられる。

20

【0046】

本発明で用いられる(D)シラン化合物は、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、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であり、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)

30

40

50

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、これらの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。

【0047】

(D) シラン化合物の全配合量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に対して0.06 ~ 2重量%が好ましく、0.1 ~ 0.75重量%がより好ましく、0.2 ~ 0.7重量%がさらに好ましい。0.06重量%未満では各種パッケージ部材との接着性が低下する傾向にあり、2重量%を超える場合にはボイド等の成形不良が発生しやすい傾向がある。

【0048】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、従来公知のカップリング剤を配合してもよい。たとえば、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、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、これらの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。またこれらカップリング剤の全配合量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に対して0.06 ~ 2重量%が好ましく、0.1 ~ 0.75重量%がより好ましく、0.2 ~ 0.7重量%がさらに好ましい。0.06重量%未満では各種パッケージ部材との接着性が低下する傾向にあり、2重量%を超える場合にはボイド等の成形不良が発生しやすい傾向がある。

【0049】

本発明で用いられる(E)硬化促進剤としては、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特に限定はないが、たとえば、1, 8 - ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン - 7、1, 5 - ジアザビシクロ[4.3.0]ノネン - 5、5, 6 - ジブチルアミノ - 1, 8 - ジアザビシクロ[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)フェノール等の三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、2 - ヘプタデシ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有機ホスフィン類及びこれらのホスフィン類に無水マレイン酸、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

10

20

30

40

50

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及びこれらの誘導体などが挙げられ、これらの1種を単独で用いても2種以上組み合わせて用いてもよい。

なかでも、硬化性及び流動性の観点からは第三ホスフィンとキノン化合物との付加物が好ましく、保存安定性の観点からはシクロアミジン化合物とフェノール樹脂との付加物が好ましく、ジアザピシクロウンデセンのノボラック型フェノール樹脂塩がより好ましい。これらの硬化促進剤の配合量は硬化促進剤全量に対して合わせて60重量%以上が好ましく、80重量%以上がより好ましい。

10

【0050】

第三ホスフィンとキノン化合物との付加物に用いられる第三ホスフィンとしては特に制限はないが、たとえば、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-ブチルフェニル)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ホスフィンが挙げられ、成形性の点からはトリフェニルホスフィンが好ましい。

20

また、第三ホスフィン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が、たとえば、o-ベンゾキノ、p-ベンゾキノ、ジフェノキノ、1,4-ナフトキノ、アントラキノ等が挙げられ、耐湿性又は保存安定性の観点からはp-ベンゾキノが好ましい。

【0051】

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限定されるものではないが、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤の合計量100重量部に対して0.1~10重量部が好ましく、0.3~5重量部がより好ましい。0.1重量部未満では短時間で硬化させることが困難となり、10重量部を超えると硬化速度が早すぎて良好な成形品が得られない傾向がある。

30

【0052】

本発明で用いられる(F)無機充てん剤は、吸湿性、線膨張係数低減、熱伝導性向上及び強度向上のために成形材料に配合されるものであり、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が、例えば、熔融シリカ、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、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。なかでも、線膨張係数低減の観点からは熔融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましく、充てん剤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熔融シリカが好ましい。

40

【0053】

無機充てん剤の配合量は、難燃性、成形性、吸湿性、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に対して70~95重量%が好ましく、吸湿性、線膨張係数低減の観点から85~95重量%がより好ましい。70重量%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重量%を超えると流動性が不足する傾向が

50

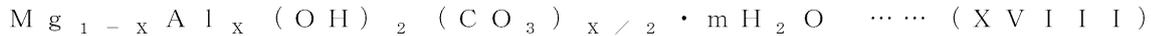
ある。

【0054】

また、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、ICの耐湿性、高温放置特性を向上させる目的で陰イオン交換体を必要に応じて配合することができる。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が、たとえば、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、これらを単独で用いても2種類以上を組み合わせ用いてもよい。なかでも、下記組成式(XVIIII)で示されるハイドロタルサイトが好ましい。

【0055】

【化20】



($0 < x \leq 0.5$ 、 m は正の数)

陰イオン交換体の配合量は、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が、(A)エポキシ樹脂100重量部に対して、0.1~30重量部が好ましく、1~5重量部がより好ましい。

【0056】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、接着性をより向上させるために、必要に応じて接着促進剤を用いることができる。接着促進剤としては、たとえば、イミダゾール、トリアゾール、テトラゾール、トリアジン等の誘導体、アントラニル酸、没食子酸、マロン酸、リンゴ酸、マレイン酸、アミノフェノール、キノリン等及びこれらの誘導体、脂肪族酸アミド化合物、ジチオカルバミン酸塩、チアジアゾール誘導体などが挙げられ、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用いてもよい。

【0057】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、必要に応じて離型剤を用いてもよい。離型剤としては、酸化型又は非酸化型のポリオレフィン(A)エポキシ樹脂100重量部に対して0.01~10重量部用いることが好ましく、0.1~5重量部用いることがより好ましい。0.01重量部未満では離型性が不十分となる傾向があり、10重量部を超えると接着性が低下する傾向がある。酸化型又は非酸化型のポリオレフィンとしては、ヘキスト株式会社製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、これ以外の離型剤としては、たとえばカルナバワックス、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、これらの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。酸化型又は非酸化型のポリオレフィンに加えてこれら他の離型剤を併用する場合、その配合量は合わせて(A)エポキシ樹脂100重量部に対して0.1~10重量部が好ましく、0.5~3重量部がより好ましい。

【0058】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には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、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及び/又はフェノール樹脂等の熱硬化性樹脂等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及び下記組成式(XIX)で示される複合金属水酸化物などが挙げられる。

【0059】

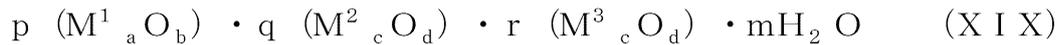
10

20

30

40

【化 2 1】



(一般式 (X I X) で、 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 、 p 、 q 及び m は正の数、 r は 0 又は正の数を示す。)

上記組成式 (X I X) 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が、難燃性の観点からは、 M^1 が第 3 周期の金属元素、I I A 族のアルカリ土類金属元素、I V B 族、I I B 族、V I I I 族、I B 族、I I I A 族及び I V A 族に属する金属元素から選ばれ、 M^2 が I I I B ~ I I B 族の遷移金属元素から選ばれることが好ましく、 M^1 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。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。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率表 (出典：共立出版株式会社発行「化学大辞典 4」1987年2月15日縮刷版第30刷) に基づいて行った。また、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。難燃剤の配合量は特に制限はないが、(A) エポキシ樹脂 100 重量部に対して 1 ~ 30 重量部が好ましく、2 ~ 15 重量部がより好ましい

10

20

また、本発明の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用いても良い。

さらに、その他の添加剤として、シリコンオイルやシリコ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。

【0060】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、各種成分を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いても調製できるが、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。たとえば、上述した成分の所定量を均一に攪拌、混合し、予め $70 \sim 140$ 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、粉碎するなどの方法で得ることができる。成形条件に合うような寸法及び重量でタブレット化すると使いやすい。

30

【0061】

本発明で得られる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た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、必要な部分を本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止した、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は、たとえば、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 Lead 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、本発明の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

40

50

フボンディング、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ノ又はコンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子を、本発明の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、本発明の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本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は有効に使用できる。

【0062】

本発明の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い。

【実施例】

【0063】

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。

【0064】

以下の成分をそれぞれ表1～表8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、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。

【0065】

エポキシ樹脂としてはエポキシ当量200、軟化点67のオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂1、住友化学工業株式会社製商品名ESC N-190)、エポキシ当量196、融点106のビフェニル型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂2、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名YX-4000H)、エポキシ当量176、融点111のビフェニル型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂3、ジャパンエポキシレジン株式会社製商品名YL-6121H)、エポキシ当量242、融点118の硫黄原子含有エポキシ樹脂(エポキシ樹脂4、新日本製鐵化学株式会社製商品名YSLV-120TE)、エポキシ当量264、軟化点64のジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂5、大日本インキ化学工業株式会社製商品名HP-7200)、エポキシ当量217、軟化点72のナフタレン型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂6、日本化薬株式会社製商品名NC-7300)、エポキシ当量170、軟化点65のトリフェニルメタン型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂7、日本化薬株式会社製商品名EPPN-502H)、エポキシ当量192、融点79のビスフェノールF型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂8、新日本製鐵化学株式会社製商品名YSLV-80XY)、エポキシ当量241、軟化点96のビフェニレン骨格含有フェノール・アラルキル型エポキシ樹脂(エポキシ樹脂9、日本化薬株式会社製商品名CER-3000L)、エポキシ当量375、軟化点80、臭素含有量48重量%のビスフェノールA型プロム化エポキシ樹脂(エポキシ樹脂10)を使用した。

【0066】

硬化剤としては水酸基当量199、軟化点89のビフェニレン骨格型フェノール樹脂(硬化剤1、明和化成株式会社製商品名MEH-7851)、水酸基当量176、軟化点70のフェノール・アラルキル樹脂(硬化剤2、三井化学株式会社製商品名ミレックスXLC)、水酸基当量183、軟化点79のナフトール・アラルキル樹脂(硬化剤3、新日本製鐵化学株式会社製商品名SN-170)、水酸基当量170、軟化点93のジシクロペンタジエン型フェノール樹脂(硬化剤4、日本石油化学株式会社製商品名DPP)、水酸基当量104、軟化点83のトリフェニルメタン型フェノール樹脂(硬化剤5、明和化成株式会社製商品名MEH-7500)、水酸基当量106、軟化点64のノボラック型フェノール樹脂(硬化剤6、明和化成株式会社製商品名H-4)、水酸基当量156、軟化点83のフェノール樹脂(硬化剤7、住金エア・ウォーター・ケミカル株

10

20

30

40

50

式会社製商品名 H E - 5 1 0) を使用した。

【 0 0 6 7 】

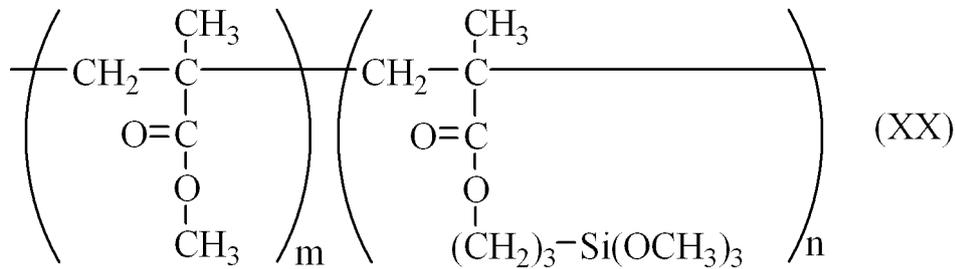
シラン化合物としては - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (シラン化合物 1)、 - アミノプロピルトリエトキシシラン (シラン化合物 2)、硬化促進剤としてはトリフェニルホスフィンと p - ベンゾキノンとのベタイン型付加物 (硬化促進剤 1)、トリブチルホスフィンと p - ベンゾキノンとのベタイン型付加物 (硬化促進剤 2)、無機充填剤としては平均粒径 1 7 . 5 μ m、比表面積 3 . 8 m² / g の球状溶融シリカ、その他の添加成分としてはカルナバワックス、三酸化アンチモン、カーボンブラックを使用した。

【 0 0 6 8 】

アクリル化合物としては下記一般式 (X X) で示される化合物のうち、 n / m が 1 . 1、数平均分子量 (M n) 6 9 1、分子量分布 (M w / M n) 1 . 4 4、粘度 (2 5) 1 . 6 P a · S のアクリル化合物 (綜研化学株式会社製商品名 A S - 3 0 0) を使用した。 M n 及び M w / M n はゲルパーミエーションクロマトグラフィー法 (G P C) により標準ポリスチレンによる検量線を用いて測定した。 G P C は、ポンプ (株式会社日立製作所製 L - 6 2 0 0 型)、カラム (T S K g e l - G 2 0 0 0 H 8 + T S K g e l - G 1 0 0 0 H 8、いずれも東ソー株式会社製商品名)、検出器 (株式会社日立製作所製 L - 3 3 0 0 R I 型) を用い、テトラヒドロフランを溶離液として温度 3 0、流量 1 . 0 m l / m i n の条件で測定した。

【 0 0 6 9 】

【 化 2 2 】



(一般式 (X X) で、 m は 1 ~ 2 0 の整数、 n は 0 ~ 2 0 の整数を示し、化合物中の n / m の平均値が 0 . 0 5 以上 3 以下。)

【 0 0 7 0 】

10

20

30

【表 1】

表1 配合組成1

配合成分	実施例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
エポキシ樹脂1	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	42.5	—	—	—	—
エポキシ樹脂2	—	—	—	—	—	42.5	85.0	85.0	85.0	85.0
エポキシ樹脂10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤1	92.5	—	—	—	—	—	94.3	—	—	—
硬化剤2	—	81.8	—	—	—	82.6	—	83.4	—	—
硬化剤3	—	—	85.1	—	—	—	—	—	86.7	—
硬化剤4	—	—	—	77.2	—	—	—	—	—	78.6
硬化剤6	—	—	—	—	49.3	—	—	—	—	—
シラン化合物1	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
硬化促進剤1	3.5	3.0	3.2	3.0	2.8	3.2	4.3	3.5	3.8	3.0
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
溶融シリカ	1599	1517	1542	1483	1277	1524	1618	1532	1558	1493
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.28	0.29	0.29	0.30	0.34	0.29	0.27	0.29	0.28	0.29

10

20

【 0 0 7 1 】

【表 2】

表2 配合組成2

配合成分	実施例									
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
エポキシ樹脂1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	42.5
エポキシ樹脂2	85.0	85.0	85.0	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂4	—	—	—	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	42.5
エポキシ樹脂10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤1	—	—	—	77.9	—	—	—	—	—	—
硬化剤2	—	—	—	—	68.9	—	—	—	—	73.3
硬化剤3	—	—	—	—	—	71.6	—	—	—	—
硬化剤4	—	—	—	—	—	—	64.9	—	—	—
硬化剤5	49.3	—	—	—	—	—	—	40.7	—	—
硬化剤6	—	50.2	—	—	—	—	—	—	41.5	—
硬化剤7	—	—	73.9	—	—	—	—	—	—	—
シラン化合物1	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
硬化促進剤1	3.0	3.0	3.0	4.5	3.8	4.0	3.0	3.0	2.8	3.8
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
溶融シリカ	1278	1285	1459	1499	1428	1449	1393	1215	1220	1460
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.34	0.34	0.30	0.29	0.31	0.30	0.32	0.36	0.36	0.30

30

40

【 0 0 7 2 】

【表3】

表3 配合組成3

配合成分	実施例									
	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
エポキシ樹脂2	42.5	—	—	—	42.5	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂4	42.5	42.5	42.5	42.5	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂5	—	42.5	—	—	42.5	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂6	—	—	42.5	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂7	—	—	—	42.5	—	85.0	85.0	—	—	65.0
エポキシ樹脂8	—	—	—	—	—	—	—	85.0	85.0	20.0
エポキシ樹脂10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤2	76.1	66.3	72.4	81.9	73.5	95.0	—	85.0	—	—
硬化剤5	—	—	—	—	—	—	56.2	—	50.2	54.8
シラン化合物1	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
硬化促進剤1	4.3	3.8	3.0	2.8	3.5	2.2	1.7	—	—	2.5
硬化促進剤2	—	—	—	—	—	—	—	3.8	3.0	—
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1484	1409	1448	1516	1459	1607	1319	1546	1285	1315
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.30	0.31	0.30	0.29	0.30	0.27	0.33	0.28	0.34	0.33

【0073】

【表4】

表4 配合組成4

配合成分	実施例									
	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40
エポキシ樹脂2	—	—	100.0	50.0	—	—	—	—	85.0	85.0
エポキシ樹脂3	85.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂8	—	100.0	—	50.0	100.0	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂9	—	—	—	—	—	100.0	100.0	100.0	—	—
エポキシ樹脂10	15.0	—	—	—	—	—	—	—	15.0	15.0
硬化剤1	—	103.6	—	30.8	—	82.2	—	—	—	—
硬化剤2	—	—	89.8	—	—	—	72.7	—	83.4	83.4
硬化剤3	—	—	—	—	—	—	—	75.6	—	—
硬化剤5	54.4	—	—	37.5	—	—	—	—	—	—
硬化剤7	—	—	—	—	81.3	—	—	—	—	—
シラン化合物1	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	3.0	8.0
硬化促進剤1	3.0	3.4	—	—	—	—	—	—	3.5	3.5
硬化促進剤2	—	—	4.5	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	—	—
三酸化アンチモン	6.0	—	—	—	—	—	—	—	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1316	2007	1893	1686	1803	1811	1725	1751	1517	1554
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.33	0.22	0.24	0.27	0.25	0.25	0.26	0.26	0.17	0.45

【0074】

10

20

30

40

50

【表 5】

表5 配合組成5

配合成分	比較例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
エポキシ樹脂1	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	42.5	—	—	—	—
エポキシ樹脂2	—	—	—	—	—	42.5	85.0	85.0	85.0	85.0
エポキシ樹脂10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤1	92.5	—	—	—	—	—	94.3	—	—	—
硬化剤2	—	81.8	—	—	—	82.6	—	83.4	—	—
硬化剤3	—	—	85.1	—	—	—	—	—	86.7	—
硬化剤4	—	—	—	77.2	—	—	—	—	—	78.6
硬化剤6	—	—	—	—	49.3	—	—	—	—	—
シラン化合物1	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	—	—	—	—	—
シラン化合物2	—	—	—	—	—	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
硬化促進剤1	3.5	3.0	3.2	3.0	2.8	3.2	4.3	3.5	3.8	3.0
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1562	1480	1506	1446	1240	1487	1581	1495	1522	1456
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

10

20

【 0 0 7 5 】

【表 6】

表6 配合組成6

配合成分	比較例									
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
エポキシ樹脂1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	42.5
エポキシ樹脂2	85.0	85.0	85.0	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂4	—	—	—	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	42.5
エポキシ樹脂10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤1	—	—	—	77.9	—	—	—	—	—	—
硬化剤2	—	—	—	—	68.9	—	—	—	—	73.3
硬化剤3	—	—	—	—	—	71.6	—	—	—	—
硬化剤4	—	—	—	—	—	—	64.9	—	—	—
硬化剤5	49.3	—	—	—	—	—	—	40.7	—	—
硬化剤6	—	50.2	—	—	—	—	—	—	41.5	—
硬化剤7	—	—	73.9	—	—	—	—	—	—	—
シラン化合物1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
シラン化合物2	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
硬化促進剤1	3.0	3.0	3.0	4.5	3.8	4.0	3.0	3.0	2.8	3.8
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1242	1248	1422	1462	1391	1412	1356	1178	1183	1423
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

30

40

【 0 0 7 6 】

50

【表 7】

表 7 配合組成 7

配合成分	比較例									
	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
エポキシ樹脂 2	42.5	—	—	—	42.5	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 4	42.5	42.5	42.5	42.5	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 5	—	42.5	—	—	42.5	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 6	—	—	42.5	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 7	—	—	—	42.5	—	85.0	85.0	—	—	65.0
エポキシ樹脂 8	—	—	—	—	—	—	—	85.0	85.0	20.0
エポキシ樹脂 10	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
硬化剤 2	76.1	66.3	72.4	81.9	73.5	95.0	—	85.0	—	—
硬化剤 5	—	—	—	—	—	—	56.2	—	50.2	54.8
シラン化合物 1	—	7.5	—	7.5	—	7.5	7.5	—	—	—
シラン化合物 2	7.5	—	7.5	—	7.5	—	—	7.5	7.5	7.5
アクリル化合物	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
硬化促進剤 1	4.3	3.8	3.0	2.8	3.5	2.2	1.7	—	—	2.5
硬化促進剤 2	—	—	—	—	—	—	—	3.8	3.0	—
三酸化アンチモン	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1448	1372	1411	1479	1423	1571	1283	1509	1248	1278
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00

10

20

【 0 0 7 7 】

【表 8】

表 8 配合組成 8

配合成分	比較例									
	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40
エポキシ樹脂 2	—	—	100.0	50.0	—	—	—	—	85.0	85.0
エポキシ樹脂 3	85.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 8	—	100.0	—	50.0	100.0	—	—	—	—	—
エポキシ樹脂 9	—	—	—	—	—	100.0	100.0	100.0	—	—
エポキシ樹脂 10	15.0	—	—	—	—	—	—	—	15.0	15.0
硬化剤 1	—	103.6	—	30.8	—	82.2	—	—	—	—
硬化剤 2	—	—	89.8	—	—	—	72.7	—	83.4	83.4
硬化剤 3	—	—	—	—	—	—	—	75.6	—	—
硬化剤 5	54.4	—	—	37.5	—	—	—	—	—	—
硬化剤 7	—	—	—	—	81.3	—	—	—	—	—
シラン化合物 1	—	—	—	—	—	—	—	—	7.5	7.5
シラン化合物 2	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	—	—
アクリル化合物	—	—	—	—	—	—	—	—	0.4	15.0
硬化促進剤 1	3.0	—	—	—	—	—	—	—	3.5	3.5
硬化促進剤 2	—	4.5	4.5	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	—	—
三酸化アンチモン	6.0	—	—	—	—	—	—	—	6.0	6.0
カルナバワックス	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
カーボンブラック	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
熔融シリカ	1279	1972	1848	1641	1758	1766	1680	1706	1498	1605
総配合量に対する アクリル化合物量(重量%)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.82

30

40

【 0 0 7 8 】

50

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)～(8)の各種特性試験により評価した。評価結果を表14～26に示す。なお、封止用エポキシ樹脂成形材料の成形は、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。

(1) スパイラルフロー

E M M I - 1 - 6 6 に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、封止用エポキシ成形材料を上記条件で成形し、流動距離(cm)を求めた。

(2) 円板フロー

200mm(W)×200mm(D)×25mm(H)の上型と200mm(W)×200mm(D)×15mm(H)の下型を有する円板フロー測定用平板金型を用いて、上皿天秤にて秤量した封止用エポキシ樹脂成形材料5gを180℃に加熱した下型の中心部にのせ、5秒後に180℃に加熱した上型を閉じて、荷重78N、硬化時間90秒の条件で圧縮成形し、ノギスで成形品の長径(mm)及び短径(mm)を測定して、その平均値(mm)を円板フローとした。

10

(3) 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型硬度計を用いて測定した。

(4) 接着保持率

上記条件で30μmのアルミ箔上に封止用エポキシ樹脂成形材料を成形、後硬化して試験片を作製し、PCT処理(121℃、0.2MPa、100時間)前後で試験片の90度方向のピール強度(N/m)を測定し、接着保持率(%) = PCT処理後アルミピール強度 / PCT処理前アルミピール強度 × 100で評価した。

20

(5) 耐半田リフロー性

42アロイリードフレーム上に8×10mmのシリコンチップを搭載した外形寸法20×14×2mmの80ピンフラットパッケージを、封止用エポキシ樹脂成形材料を用いて上記条件で成形、後硬化して作製し、85℃、85%RHの条件で加湿して所定時間ごとに240℃、10秒の条件でリフロー処理を行い、クラックの発生の有無を観察し、試験パッケージ数(10)に対するクラック発生パッケージ数で評価した。

(6) 吸水率

上記(3)で成形した円板を上記条件で後硬化し、85℃、85%RHの条件下で72時間放置し、放置前後の重量変化を測定して、吸水率(重量%) = (放置後の円板重量 - 放置前の円板重量) / 放置前の円板重量 × 100で評価した。

30

(7) ガラス転移温度(Tg)

上記条件で19mm×3mm×3mmの形状に封止用エポキシ樹脂成形材料を成形、後硬化して試験片を作製し、株式会社リガク製の熱機械分析装置(TMA-8140、TAS-100)により、昇温速度5℃/minの条件で測定を行い、線膨張曲線の屈曲点からガラス転移温度(Tg、単位:℃)を求めた。

(8) 難燃性

厚さ1/16インチの試験片を成形する金型を用いて、封止用エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形して後硬化を行い、UL-94試験法に従って難燃性を評価した。

40

【0079】

【表 9】

表9 評価結果1

評価項目	実施例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
スパイラルフロー(cm)	100	98	96	100	91	100	118	123	118	125
円板フロー(mm)	87	85	82	87	81	87	85	95	96	102
熱時硬度	82	82	82	83	83	81	80	80	81	79
接着保持率(%)	88	90	90	88	86	91	88	91	91	89
耐半田リフロー性	24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	72h	1/10	0/10	0/10	1/10	1/10	0/10	0/10	0/10	0/10
吸水率(%)	0.16	0.16	0.16	0.15	0.16	0.15	0.15	0.15	0.15	0.14
Tg(°C)	133	134	134	129	141	130	118	119	119	114
難燃性	V-0									

10

【0080】

【表 10】

表10 評価結果2

評価項目	実施例									
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
スパイラルフロー(cm)	105	105	121	118	121	118	125	105	105	107
円板フロー(mm)	91	91	98	96	98	96	102	91	91	93
熱時硬度	82	81	80	80	80	80	79	83	82	82
接着保持率(%)	84	88	91	90	92	92	90	88	90	84
耐半田リフロー性	24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	72h	1/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	1/10
吸水率(%)	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.14	0.15	0.15	0.15
Tg(°C)	134	131	120	117	118	118	113	133	130	129
難燃性	V-0									

20

【0081】

【表 11】

表11 評価結果3

評価項目	実施例									
	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
スパイラルフロー(cm)	118	100	105	100	119	98	95	121	105	99
円板フロー(mm)	97	87	91	87	98	86	83	96	98	94
熱時硬度	80	82	80	83	80	84	84	81	85	84
接着保持率(%)	91	90	90	88	91	90	85	92	88	88
耐半田リフロー性	24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	72h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	2/10	0/10	0/10
吸水率(%)	0.15	0.14	0.14	0.15	0.15	0.16	0.17	0.15	0.15	0.16
Tg(°C)	119	123	131	134	124	137	156	118	133	142
難燃性	V-0									

40

【0082】

【表 1 2】

表12 評価結果4

評価項目	実施例									
	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40
スパイラルフロー(cm)	108	117	106	103	107	98	98	101	120	124
円板フロー(mm)	102	96	99	100	99	93	93	96	95	96
熱時硬度	83	84	83	84	83	83	84	83	80	81
接着保持率(%)	88	90	89	89	89	89	90	90	91	88
耐半田リフロー性24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	72h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
吸水率(%)	0.15	0.14	0.15	0.15	0.15	0.14	0.14	0.14	0.15	0.15
Tg(°C)	133	117	116	119	118	115	116	116	119	118
難燃性	V-0									

10

【 0 0 8 3】

【表 1 3】

表13 評価結果5

評価項目	比較例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
スパイラルフロー(cm)	82	80	78	82	72	60	67	65	65	69
円板フロー(mm)	71	69	66	71	63	57	64	62	62	66
熱時硬度	81	81	81	82	83	80	78	78	78	78
接着保持率(%)	68	72	72	68	67	73	68	73	73	69
耐半田リフロー性24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	5/10	4/10	4/10	5/10	6/10	3/10	2/10	1/10	2/10
	72h	10/10	8/10	8/10	9/10	10/10	7/10	6/10	5/10	6/10
吸水率(%)	0.17	0.17	0.17	0.15	0.17	0.15	0.15	0.15	0.15	0.14
Tg(°C)	132	133	133	128	140	129	117	118	118	113
難燃性	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0

20

【 0 0 8 4】

【表 1 4】

表14 評価結果6

評価項目	比較例									
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
スパイラルフロー(cm)	59	59	67	67	65	65	69	59	59	60
円板フロー(mm)	56	56	64	64	62	62	66	56	56	57
熱時硬度	81	80	79	78	78	78	78	81	80	80
接着保持率(%)	66	68	73	72	74	74	72	68	72	66
耐半田リフロー性24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	4/10	4/10	2/10	2/10	1/10	1/10	2/10	4/10	4/10
	72h	8/10	8/10	6/10	6/10	5/10	5/10	6/10	8/10	7/10
吸水率(%)	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.14	0.15	0.15	0.15
Tg(°C)	133	130	119	116	117	117	112	132	129	128
難燃性	V-0									

40

【 0 0 8 5】

【表 15】

表15 評価結果7

評価項目	比較例									
	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30
スパイラルフロー(cm)	66	82	59	82	67	80	78	67	59	54
円板フロー(mm)	63	71	56	71	64	69	67	54	56	52
熱時硬度	78	80	78	81	78	82	83	81	85	84
接着保持率(%)	73	72	72	68	73	72	66	74	68	68
耐半田リフロー性	24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10
	48h	1/10	0/10	2/10	0/10	1/10	1/10	2/10	1/10	4/10
	72h	5/10	5/10	6/10	5/10	5/10	6/10	7/10	5/10	8/10
吸水率(%)	0.15	0.14	0.14	0.15	0.15	0.16	0.17	0.15	0.15	0.16
T _g (°C)	118	122	130	133	123	138	155	117	132	141
難燃性	V-0									

10

【0086】

【表 16】

表16 評価結果8

評価項目	比較例									
	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40
スパイラルフロー(cm)	61	60	60	59	60	54	54	57	82	118
円板フロー(mm)	58	57	56	56	57	49	49	54	71	94
熱時硬度	82	83	82	84	83	82	84	83	79	81
接着保持率(%)	68	69	69	68	68	68	69	69	74	75
耐半田リフロー性	24h	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	2/10
	48h	4/10	1/10	1/10	1/10	1/10	1/10	1/10	1/10	6/10
	72h	8/10	5/10	5/10	6/10	6/10	5/10	5/10	5/10	10/10
吸水率(%)	0.15	0.14	0.15	0.15	0.15	0.14	0.14	0.14	0.16	0.16
T _g (°C)	132	116	115	117	117	116	116	116	118	125
難燃性	V-0									

20

【0087】

表9～12に見られるように実施例1～40では同一樹脂組成の比較例と比べてスパイラルフロー及び円板フローにおいて良好な特性を示している。また72時間吸湿後のリフロー処理においてほぼ不良は無く、また48時間吸湿後のリフロー処理においてもパッケージクラックが無く耐半田リフロー性に優れている。

30

特に、実施例8、10、13、39、又は40に示すようにエポキシ樹脂としてエポキシ樹脂2(ビフェニル型エポキシ樹脂)を、硬化剤として硬化剤2(フェノール・アラルキル樹脂)、硬化剤4(ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂)又は硬化剤7を併用した場合、及び実施例15又は17に示すようにエポキシ樹脂4(硫黄原子含有エポキシ樹脂)を、硬化剤として硬化剤2(フェノール・アラルキル樹脂)、硬化剤4(ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂)を併用した場合は流動性に優れ、中でも実施例10又は17に示すように硬化剤として硬化剤4(ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂)を併用した場合は低吸湿性にも優れる。

40

また、実施例5に示すようにエポキシ樹脂としてエポキシ樹脂1(オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂)を、硬化剤として硬化剤6(ノボラック型フェノール樹脂)を併用した場合、及び実施例27及び30に示すようにエポキシ樹脂としてエポキシ樹脂7(トリフェニルメタン型エポキシ樹脂)を、硬化剤として硬化剤5(トリフェニルメタン型フェノール樹脂)を併用した場合は特に高いT_gを示し耐熱性に優れる。

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。すなわち表13～16に示される比較例1～40では、流動性が低く、72時間吸湿後のリフロー処理において50%以上ものパッケージクラックが発生し、さらに48時間吸湿後のリフロー処理

50

においてもパッケージクラックが発生しており耐半田リフロー性に劣る。

フロントページの続き

審査官 川上 智昭

(56)参考文献 特開平10-321769(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

C08G59/00, C08L63/00