

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4451129号  
(P4451129)

(45) 発行日 平成22年4月14日(2010.4.14)

(24) 登録日 平成22年2月5日(2010.2.5)

(51) Int.Cl. F 1  
C O 8 G 59/62 (2006.01) C O 8 G 59/62

請求項の数 9 (全 19 頁)

(21) 出願番号	特願2003-416443 (P2003-416443)	(73) 特許権者	000246239 ジャパンエポキシレジン株式会社 東京都中央区日本橋二丁目3番4号
(22) 出願日	平成15年12月15日(2003.12.15)	(74) 代理人	100102369 弁理士 金谷 育
(65) 公開番号	特開2005-171188 (P2005-171188A)	(74) 代理人	100087022 弁理士 井上 昭
(43) 公開日	平成17年6月30日(2005.6.30)	(74) 代理人	100078503 弁理士 中本 宏
審査請求日	平成18年6月8日(2006.6.8)	(72) 発明者	伊藤 明広 三重県四日市市塩浜町1番地 ジャパンエ ポキシレジン株式会社 開発研究所内
		審査官	川上 智昭

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物

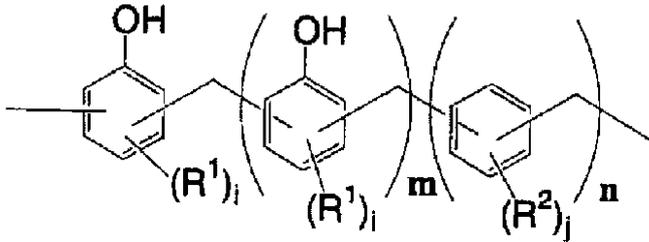
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) エポキシ樹脂、(B) フェノール系硬化剤、及び(C) 硬化促進剤を必須成分とするエポキシ樹脂組成物であって、

(A) エポキシ樹脂として、下記一般式(1)で表されるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られるエポキシ樹脂であって、そのエポキシ当量が150~330 g/e q. で、下記一般式(1)で表されるフェノール樹脂の水酸基当量から計算した理論値の1.00倍~1.50倍であり、且つ、加水分解性ハロゲンが1000 ppm以下、150における溶融粘度が0.9 Pa・s以下、及び軟化点が50~120のエポキシ樹脂を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

## 【化1】



(1)

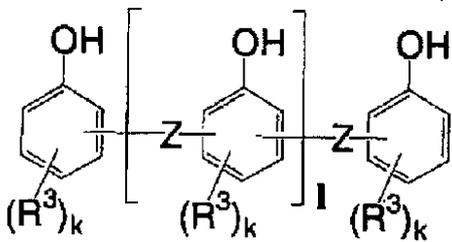
10

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ は同一であっても異なってもよく、炭素数1～10のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基である。 $m$ 、 $n$ は平均値で1～8の数であり、 $i$ 、 $j$ は0～3の整数である。)

## 【請求項2】

前記(B)フェノール系硬化剤が前記一般式(1)又は下記一般式(2)で表されるフェノール樹脂であることを特徴とする請求項1記載のエポキシ樹脂組成物。

## 【化2】

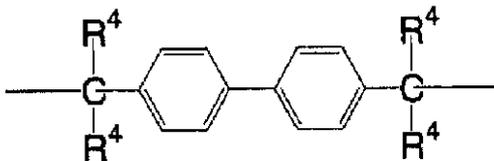


(2)

20

(式中、 $R^3$ は、互いに同一であっても異なってもよく、炭素数1～10のアルキル基、フェニル基、アラルキル基又はアルコキシ基であり、 $Z$ は、互いに同一であっても異なってもよく、メチレン基又は下記一般式(3)～(5)で表される2価の基であり、 $l$ は、平均値で0～8の数であり、 $k$ は、互いに同一であっても異なってもよく、0～3の整数である。)

## 【化3】



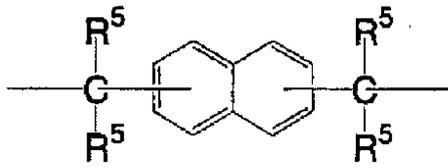
(3)

30

(式中、 $R^4$ は、互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数1～10のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基である。)

40

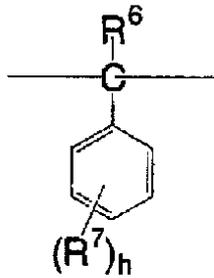
【化4】



(4)

(式中、 $R^5$  は、互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基である。)

【化5】



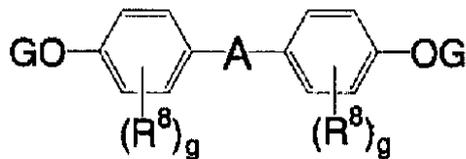
(5)

(式中、 $R^6$  は、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基であり、 $R^7$  は、互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、アラルキル基又はハロゲン原子であり、 $h$  は 0 ~ 5 の整数である。)

【請求項3】

前記(A)エポキシ樹脂として、下記一般式(6)で表される結晶性エポキシ樹脂、又は前記一般式(2)で表されるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られるエポキシ樹脂を含有してなる請求項1又は請求項2に記載のエポキシ樹脂組成物。

【化6】



(6)

(式中、 $G$  はグリシジル基である。 $A$  は直接結合、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-CH_2-$  である。 $R^8$  は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、アラルキル基である。 $g$  は 0 ~ 4 の整数である。)

【請求項4】

前記一般式(1)で表されるフェノール樹脂の遊離フェノールが3質量%以下であることを特徴とする請求項1~3のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項5】

10

20

30

40

50

前記 ( A ) エポキシ樹脂、( B ) 硬化剤の 150 における混合溶融粘度が 0.9 pa · s 以下である請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 6】

前記一般式 ( 1 ) で表されるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られるエポキシ樹脂が ( A ) エポキシ樹脂全体の 70 質量%より多いことを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 7】

無機充填剤として、破碎型及び/又は球状の、溶融及び/又は結晶シリカ粉末を組成物の 70 ~ 95 質量%配合してなる請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物。

10

【請求項 8】

難燃付与成分としてハロゲン化合物及び/又はアンチモン化合物を含まず、その硬化物が UL - 94 規格の V - 0 を満足する難燃性を有する請求項 6 又は 7 に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 9】

請求項 1 ~ 請求項 8 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有する硬化性樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、エポキシ樹脂組成物に関する。この組成物は、難燃付与成分としてハロゲン化合物、アンチモン化合物を添加することなしに、又は少量添加するだけで優れた難燃性を有し、かつ低吸湿性、密着性に優れた硬化物を与えることができ、特に半導体封止の用途に有用である。

20

【背景技術】

【0002】

半導体素子の封止には、信頼性、生産性及びコストの面から、エポキシ樹脂組成物が広く用いられている。一般のプラスチック材料と同しく、これら組成物にも難燃性が要求されており、そのために主成分とは別に難燃付与成分として、テトラプロモビスフェノール A 型エポキシ樹脂やブロム化フェノールノボラック型エポキシ樹脂などのブロム化エポキシ樹脂と酸化アンチモンが組み合わせて配合されている。

30

【0003】

近年、環境保護の観点からダイオキシン類似化合物を発生する危険のある含ハロゲン化合物や毒性の高いアンチモン化合物の使用を量規制する動きが高まっており、半導体封止用組成物に関しては、上述のブロム化エポキシ樹脂をはじめとするハロゲン化合物や酸化アンチモンを使用することなしに難燃性を達成させる技術が検討されるようになった。たとえば、赤リンを配合する方法 ( 特許文献 1 )、リン酸エステル化合物を配合する方法 ( 特許文献 2 )、ホスファゼン化合物を配合する方法 ( 特許文献 3 )、金属水酸化物を配合する方法 ( 特許文献 4 ) などのハロゲン化合物や酸化アンチモンに代わる難燃剤を配合する手法及び充填剤の配合割合を高くする手法 ( 特許文献 5 ) などが検討されている。

40

【0004】

しかし、半導体封止用エポキシ組成物に赤リンを用いた場合は耐湿信頼性の低下や赤リンの打撃発火性に起因する安全性の問題、燐酸エステルやホスファゼン化合物を用いた場合は可塑性による成形性の低下や耐湿信頼性の低下の問題、金属水酸化物を用いた場合や充填剤の配合割合を高くした場合は流動性の低下の問題がそれぞれにあり、いずれの場合もブロム化エポキシ樹脂と酸化アンチモンを併用した封止用エポキシ樹脂組成物と同等の成形性、信頼性を得るに至っていない。

【0005】

一方で、高度化した実装方式に対応するため、封止用エポキシ樹脂組成物にはなお一層の成形性、耐ハンダクラック性が要求されており、これらを達成するためには、組成物の

50

速硬化性、流動性、低熱線膨張化、低吸湿性及び密着性等にも十分配慮する必要がある。

【0006】

これらの要求を満足させるために、テトラメチルピフェノール型エポキシ樹脂とフェノールアラルキル樹脂など架橋間点の長い硬化物を与えるフェノール樹脂からなる組成物を用い、吸湿性及び低応力性を改良すること(特許文献6)、吸湿性を改善するためにジシクロペンタジエンフェノールを原料とするエポキシ樹脂を主成分に用いること(特許文献7)、耐湿性と耐熱性のバランスを取るためにオルソ-クレゾールとベンズアルデヒドの共縮合ノボラック樹脂のエポキシ物を主成分として用いること(特許文献8)など、種々の検討が提案されている。

【0007】

また、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型エポキシ樹脂を用いたものでは、通常のエポキシ樹脂と芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型エポキシ樹脂の組成物を用い、耐熱性、接着性を改良すること(特許文献9)、芳香族炭化水素樹脂変性ノボラックエポキシ樹脂と多官能性シアン酸エステル系の組成物を用い、耐熱性を改良すること(特許文献10)、(特許文献11)などが提案されている。

【0008】

しかし、どの提案も環境に配慮した提案とは言えず、難燃剤としてハロゲン化合物やアンチモン化合物を用いないと十分な難燃性を達成できない。

【特許文献1】特開平9-227765号公報

【特許文献2】特開平9-235449号公報

【特許文献3】特開平8-225714号公報

【特許文献4】特開平9-241483号公報

【特許文献5】特開平7-82343号公報

【特許文献6】特開昭61-47725号公報

【特許文献7】特開昭61-123618号公報

【特許文献8】特開平1-271415号公報

【特許文献9】特開平7-48499号公報

【特許文献10】特開平5-222148号公報

【特許文献11】特開平6-157721号公報)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、種々の用途に使用でき、難燃付与成分としてハロゲン化合物、アンチモン化合物を添加することなしに、又は少量添加するだけで優れた難燃性を有し、かつ低吸湿性、密着性に優れた硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物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】

【0010】

本発明者等は、前記の課題を解決するために種々研究を重ねた結果、エポキシ樹脂として特定の芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型エポキシ樹脂を製造し、該エポキシ樹脂を、硬化剤として特定の芳香族基を多く含むフェノール樹脂を用いることによりその目的を達成できたのである。本発明は、以下の各発明を包含する。

【0011】

(1)(A)エポキシ樹脂、(B)フェノール系硬化剤、及び(C)硬化促進剤を必須成分とし、(A)エポキシ樹脂が下記一般式(1)で表わされるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られる、エポキシ当量が150~330g/eq.、且つ一般式(1)で表わされるフェノール樹脂の水酸基当量から計算した理論値の1.00倍~1.50倍であるエポキシ樹脂を含有してなるエポキシ樹脂組成物。

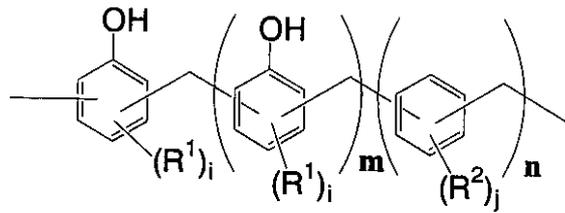
10

20

30

40

## 【化 1】



(1)

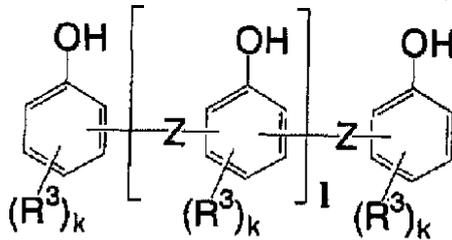
10

(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ は互いに同一であっても異なってもよく、炭素数1～10のアルキル基、置換又は無置換のフェニル基、置換又は無置換のアラルキル基である。 $m$ 、 $n$ は平均値で1～8の数であり、 $i$ 、 $j$ は0～3の整数である。)

## 【0012】

(2) 前記(B)フェノール系硬化剤が前記一般式(1)又は下記一般式(2)で表わされるフェノール樹脂であることを特徴とする(1)項記載のエポキシ樹脂組成物。

## 【化 2】



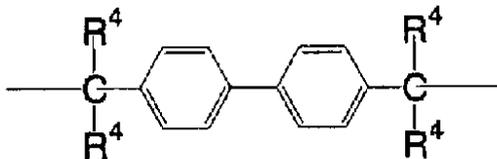
(2)

20

(式中、 $R^3$ は、互いに同一であっても異なってもよく、炭素数1～10のアルキル基、フェニル基、アラルキル基又はアルコキシ基であり、 $Z$ は、互いに同一であっても異なってもよく、メチレン基又は下記一般式(3)～(5)で表される2価の基であり、 $1$ は、平均値で0～8の数であり、 $k$ は、互いに同一であっても異なってもよく、0～3の整数である。

30

## 【化 3】

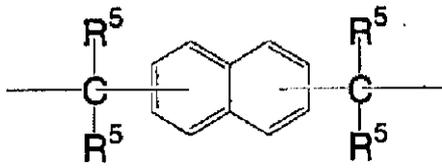


(3)

40

(式中、 $R^4$ は、互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数1～10のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基である。)

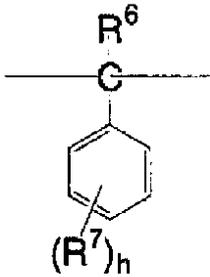
【化4】



(4)

(式中、 $R^5$  は、互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基である。)

【化5】



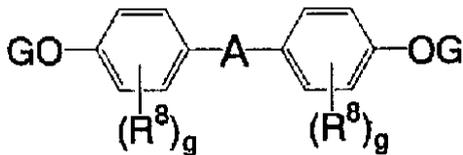
(5)

(式中、 $R^6$  は、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、又はアラルキル基であり、 $R^7$  は、互いに同一であっても異なってもよく、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、アラルキル基又はハロゲン原子であり、 $h$  は 0 ~ 5 の整数である。)

【0013】

(3) 前記(A)エポキシ樹脂として、下記一般式(6)で表わされる結晶性エポキシ樹脂、又は前記一般式(2)で表わされるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られるエポキシ樹脂を含有してなる(1)項又は(2)項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【化6】



(6)

(式中、 $G$  はグリシジル基である。 $A$  は直接結合、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-CH_2-$  である。 $R^8$  は互いに同一であっても異なってもよく、水素原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、フェニル基、アラルキル基である。 $g$  は 0 ~ 4 の整数である。)

【0015】

(4) 前記一般式(1)で表わされるフェノール樹脂の遊離フェノールが3質量%以下であることを特徴とする(1)項~(3)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【0016】

10

20

30

40

50

(5) 前記(A)エポキシ樹脂、(B)硬化剤の150における混合溶融粘度が0.9 Pa・s以下である(1)項~(4)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【0017】

(6) 前記一般式(1)で表わされるフェノール樹脂とエピハロヒドリンを反応させることにより得られるエポキシ樹脂がエポキシ樹脂全体の70質量%より多いことを特徴とする(1)項~(5)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【0018】

(7) 無機充填材として、破碎型及び/又は球状の、溶融及び/又は結晶シリカ粉末を組成物の70~95質量%配合してなる(1)項~(6)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

10

【0019】

(8) 難燃付与成分としてハロゲン化合物及び/又はアンチモン化合物を含まず、その硬化物がUL-94規格のV-0を満足する難燃性を有する(1)項~(7)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【0020】

(9) 前記(7)項又は(8)項のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含有する硬化性樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物。

【発明の効果】

【0021】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、難燃付与成分としてハロゲン化合物、アンチモン化合物を添加することなしに、又は少量添加するだけで優れた難燃性を有し、かつ低吸湿性、密着性に優れる硬化物を与えるので、電気電子分野、特に半導体封止の用途に有用である。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

前記一般式(1)で表わされる化合物は、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂、フェノール類及びホルムアルデヒドを反応させることによって得られる。芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂の具体例としては、メシチレン-ホルムアルデヒド樹脂、キシレン-ホルムアルデヒド樹脂、トルエン-ホルムアルデヒド樹脂、ベンゼン-ホルムアルデヒド樹脂などが挙げられる。フェノール類としてはフェノール、クレゾール、キシレノールなどが挙げられる。

30

【0023】

一般式(1)で表わされる化合物の製造方法は、前述した芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂とフェノールとを硫酸、塩酸、硝酸などの無機酸、トルエンスルホン酸、キシレンスルホン酸、シュウ酸などの酸性触媒により反応させた後、更にその酸性触媒を使用するか或いは酢酸カルシウム、酢酸マグネシウム、酢酸亜鉛、その他有機酸金属塩、酸化亜鉛などの中性触媒を使用して、ホルムアルデヒドと反応させる方法が挙げられる。また、フェノール類とホルムアルデヒドとを反応させた後、芳香族炭化水素ホルムアルデヒドと反応させる方法や芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂、フェノール類、及びホルムアルデヒドを同時に反応させる方法でも実施できる。

40

【0024】

このようにして得られる一般式(1)で表わされる化合物は、この後エポキシ化したものの品質性状を考えると、各成分の種類、使用割合等により変化するが、水酸基当量が100~270g/eq.、好ましくは120~240g/eq.、より好ましくは140~220g/eq.、150の溶融粘度が1.1Pa・s以下、好ましくは0.9Pa・s以下、より好ましくは0.7Pa・s以下、軟化点が70~160、好ましくは80~130、より好ましくは80~100、となるよう各種条件等を調整することが好ましい。

【0025】

また、一般式(1)のフェノール樹脂に含まれる遊離フェノールは3質量%以下、好ま

50

しくは2質量%以下、より好ましくは1質量%以下が好ましい。遊離フェノールが多すぎるとエポキシ樹脂組成物の硬化物の耐熱性が低下するだけでなく、高温での取り扱い時の作業環境の悪化にもつながる。

水酸基当量はJIS K 0070、軟化点はJIS K 7234、遊離フェノールはGC法にて測定した。

#### 【0026】

一般式(1)で表わされる化合物とエピハロヒドリンの反応によって得られるエポキシ樹脂は公知の方法によって製造することができる。代表的な例を以下に詳述する。まず、フェノール性水酸基1モル当たり3~20モルに相当する量のエピハロヒドリンに溶解させて均一な溶液とする。ついで、その溶液を攪拌しながら、これにフェノール性水酸基1モル当たり0.9~2.0モル量のアルカリ金属水酸化物を固体又は水溶液で加えて反応させる。この反応は、常圧下又は減圧下で行わせることができ、反応温度は通常、常圧下の反応の場合は30~150であり、減圧下の反応の場合は30~80である。反応は必要に応じて所定の温度を保持しながら反応液を共沸させ、揮発する蒸気を冷却して得られた凝縮液を油/水分離し、水分を除いた油分を反応系へ戻す方法により脱水する。アルカリ金属水酸化物の添加は、急激な反応を抑えるために、1~8時間かけて少量ずつを断続的もしくは連続的に添加する。その全反応時間は通常、1~10時間である。

10

#### 【0027】

反応終了後、不溶性の副生塩を濾別して除くか、水洗により除去した後、未反応のエピハロヒドリンを減圧留去して除くと、目的のエポキシ樹脂が得られる。この反応におけるエピハロヒドリンとしては、通常、エピクロロヒドリン又はエピプロモヒドリンが用いられる。アルカリ金属水酸化物としては通常、水酸化ナトリウム又は水酸化カリウムが用いられる。

20

#### 【0028】

また、この反応においては、テトラメチルアンモニウムクロリド、テトラエチルアンモニウムブロミドなどの第四級アンモニウム塩；ベンジルジメチルアミン、2,4,6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノールなどの第三級アミン；2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾールなどのイミダゾール類；エチルトリフェニルホスホニウムアイオダイドなどのホスホニウム塩；トリフェニルホスフィンなどのホスフィン類等の触媒を用いても良い。

30

#### 【0029】

さらに、この反応においては、エタノール、イソプロピルアルコールなどのアルコール類；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類；ジオキサソ、エチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類；メトキシプロパノールなどのグリコールエーテル類；ジメチルスルホキシド、ジメチルホルムアミドなどの非プロトン性極性溶媒等の不活性な有機溶媒を使用しても良い。

#### 【0030】

さらに、上記のようにして得られたエポキシ樹脂の可鹼化ハロゲン量が多すぎる場合は、再処理して十分に可鹼化ハロゲン量が低下した精製エポキシ樹脂を得ることができる。つまり、その粗製エポキシ樹脂を、イソプロピルアルコール、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、トルエン、キシレン、ジオキサソ、メトキシプロパノール、ジメチルスルホキシドなどの不活性な有機溶媒に再溶解しアルカリ金属水酸化物を固体又は水溶液で加えて約30~120の温度で0.5~8時間再閉環反応を行った後、水洗等の方法で過剰のアルカリ金属水酸化物や副性塩を除去し、さらに有機溶媒を減圧留去して除くと、精製されたエポキシ樹脂が得られる。

40

#### 【0031】

以上のようにして製造される一般式(1)とエピハロヒドリンの反応によって得られるエポキシ樹脂の品質性状は、各成分の種類、使用割合等により変化するが、エポキシ当量が150~330g/eq.、好ましくは180~300g/eq.、より好ましくは200~280g/eq.、150の熔融粘度が0.9Pa·s以下、好ましくは0.7

50

Pa・s以下、より好ましくは0.5 Pa・s以下、軟化点が50～120、好ましくは60～110、より好ましくは62～100、加水分解性ハロゲンが1000 ppm以下、好ましくは800 ppm以下、より好ましくは600 ppm以下、揮発性分(水も含む)は0.9質量%以下、好ましくは0.6質量%以下、より好ましくは0.3質量%以下となるよう各種条件等を調整することが好ましい。

【0032】

エポキシ当量が小さすぎると低吸湿性に劣り、大きすぎると硬化性が悪化する。溶融粘度が高すぎると成型時の流動性が損なわれる。軟化点が低すぎると固体としての取り扱いが困難になり、高すぎるとフェノール樹脂等との混合が困難になる。加水分解性ハロゲンが多すぎると封止材中のハロゲンイオンなどが原因で半導体集積回路のアルミ配線の腐食による不良を起こしてしまう可能性がある。揮発成分が多いと硬化不良を起こしてしまう可能性があると同時に高温での取り扱い時の作業環境の悪化にもつながる。

10

【0033】

さらに、エポキシ当量は一般式(1)のフェノール樹脂の水酸基当量から計算した理論値の1.00～1.50倍、好ましくは1.00～1.20倍なるよう各種条件等を調整することが好ましい。ここでの理論値とは、一般式(1)のフェノール樹脂のヒドロキシル基が全てグリシジル化した時の値であり、エポキシ当量が理論値より大きすぎることは、ヒドロキシル基がエピハロヒドリン以外のものと反応し、高分子化している等の原因が考えられ、硬化性の悪化や不純物の存在が懸念される。

【0034】

揮発成分はGC法で測定した揮発分とJIS K0068で測定した水分の合計とした。

20

加水分解性ハロゲンは以下の電位差滴定法にて測定した。

ビーカーに試料1.0 gを精評し、ジオキササン30 mlを加え、完全に溶解した。1 Nアルコール性KOH 5 mlをホールピペットで加えた後、ビーカーに冷却管をつけ、オイルバス中で30分間煮沸還流した。1 Nアルコール性KOHは事前に1 Lメスフラスコに水酸化カリウム56.1 gを秤量し、95.0%エタノールで溶解し調整した。その後ビーカーを冷却し、メタノール5 ml、80%アセトン水100 mlを加えた。ビーカーに回転子を入れ、硝酸2 mlを加え、0.01 N硝酸銀標準溶液を用い、電位差滴定装置にて滴定した。次式より加水分解性ハロゲンを計算した。

30

【0035】

$$\text{加水分解性ハロゲン(ppm)} = [(A - B) \times C \times F \times 10^3] / W$$

但し、A：試料の滴定に要した0.01 N硝酸銀標準溶液の量(ml)、B：空試験の滴定に要した0.01 N硝酸銀標準溶液の量(ml)、C：ハロゲンの原子量、N：硝酸銀標準溶液の規定度、F：硝酸銀標準溶液の力価、W：サンプル量(g)。

【0036】

本発明のエポキシ樹脂組成物のエポキシ樹脂は、一般式(1)で表わされるフェノール樹脂とエピハロヒドリンから得られるエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を混合することができるが、それぞれを個別に製造した後、混合しても良いし、一般式(1)で表わされるフェノール樹脂とその他のエポキシ樹脂の原料である化合物を混合使用してエピハロヒドリンと反応させ、混合エポキシ樹脂として同時に製造しても良い。

40

【0037】

その混合することができるエポキシ樹脂としては、公知のものが使用できるが、具体例としては、次のフェノール類あるいはフェノール樹脂とエピハロヒドリンから製造されるエポキシ樹脂；ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ピフェノール、テトラメチルフェノール、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、テルペンジフェノール、ハイドロキノン、メチルハイドロキノン、ジブチルハイドロキノン、レゾルシン、メチルレゾルシン、ビスフェノールS、チオジフェノール、ジヒドロキシジフェニルエーテル、ジヒドロキシナフタレン、フェノールノボラック樹脂、オルソ-クレゾールノボラック樹脂、ビスフェノールAノボラック樹脂、ジシクロペン

50

タジエンフェノール樹脂、テルペンフェノール樹脂、フェノールアラルキル樹脂、ナフトールノボラック樹脂などの種々のフェノール類や、種々のフェノール類と、ベンズアルデヒド、ヒドロキシベンズアルデヒド、クロトンアルデヒド、グリオキザールなどの種々のアルデヒド類との縮合反応で得られる多価フェノール樹脂等の各種のフェノール化合物や、石油系重質油又はピッチ類とホルムアルデヒド重合体とフェノール類とを酸触媒の存在下に重縮合させた変性フェノール樹脂など。次のアミン化合物とエピハロヒドリンとから製造されるエポキシ樹脂；ジアミノジフェニルメタン、アミノフェノール、キシレンジアミンなど、次のカルボン酸類とエピハロヒドリンとから製造されるエポキシ樹脂；メチルヘキサヒドロキシフタル酸、ダイマー酸などが挙げられ、これらを2種以上併用しても良い。

10

## 【0038】

一般式(1)で表わされる化合物とエピハロヒドリンの反応によって得られるエポキシ樹脂と混合できるそれ以外のエポキシ樹脂の混合割合は特にその制限はないが、一般式(1)で表わされる化合物とエピハロヒドリンの反応によって得られるエポキシ樹脂がエポキシ樹脂全体の70質量%より多いことが好ましい。一般式(1)で表わされる化合物とエピハロヒドリンの反応によって得られるエポキシ樹脂の混合割合が少なすぎると、本発明のエポキシ樹脂組成物に十分な性能を付与することができない。

## 【0039】

また、混合できるその他のエポキシ樹脂の中では、混合しても本発明のエポキシ樹脂組成物の特性を損なうことが少なく、流動性を低下させる効果のある結晶性のビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、テトラメチルピフェノール型エポキシ樹脂及び4,4'-ピフェノール型エポキシ樹脂、難燃性を向上させる効果のあるピフェニルフェノール型のエポキシ樹脂が特に好ましい。

20

## 【0040】

本発明のエポキシ樹脂組成物において必須成分として使用される(B)硬化剤の具体例としては、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、フェノールアラルキル樹脂、ピフェニルアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂などの種々の多価フェノール類や、種々のフェノール類とベンズアルデヒド、ヒドロキシベンズアルデヒドなどの種々のアルデヒド類との縮合反応で得られる多価フェノール樹脂等があげられ、これらは1種単独でも、2

30

## 【0041】

また、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤の150における混合熔融粘度は0.9 Pa·s以下、好ましくは0.7 Pa·s以下、より好ましくは0.5 Pa·s以下となるように各種条件などを調整する事が好ましい。熔融粘度が高すぎると成形時の流動性が損なわれる。

## 【0042】

本発明のエポキシ樹脂組成物に使用される硬化剤の使用量は、全エポキシ樹脂成分中のエポキシ基1モルに対して、全硬化剤中のエポキシ基と反応する基が0.5~2.0モルになる量が好ましく、より好ましくは0.7~1.2モルである。

40

## 【0043】

本発明のエポキシ樹脂組成物において必須成分として使用される(C)硬化促進剤としては、例えば、トリブチルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス(ジメトキシフェニル)ホスフィン、トリス(ヒドロキシプロピル)ホスフィン、トリス(シアノエチル)ホスフィンなどのホスフィン化合物、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、メチルトリブチルホスホニウムテトラフェニルボレート、メチルトリシアノエチルホスホニウムテトラフェニルボレートなどのホスホニウム塩、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、2,4-ジシアノ-6-[2-メチルイミダゾリル-(1)]-エチル-S-トリアジン、2,4-ジシアノ-6-[2-ウ

50

ンデシレイミダゾリル - ( 1 ) ] - エチル - S - トリアジンなどのイミダゾール類、 1 - シアノエチル - 2 - ウンデシレイミダゾリウムトリメリテ - ト、 2 - メチレイミダゾリウムイソシアヌレート、 2 - エチル - 4 - メチレイミダゾリウムテトラフェニルボレート、 2 - エチル - 1, 4 - ジメチレイミダゾリウムテトラフェニルボレートなどのイミダゾリウム塩、 2, 4, 6 - トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、ベンジルジメチルアミン、テトラメチルプチルグアニジン、N - メチルピペラジン、2 - ジメチルアミノ - 1 - ピロリンなどのアミン類、トリエチルアンモニウムテトラフェニルボレートなどのアンモニウム塩、1, 5 - ジアザビシクロ(5, 4, 0) - 7 - ウンデセン、1, 5 - ジアザビシクロ(4, 3, 0) - 5 - ノネン、1, 4 - ジアザビシクロ(2, 2, 2) - オクタンなどのジアザビシクロ化合物、それらジアザビシクロ化合物のテトラフェニルボレート、フェノール塩、フェノールノボラック塩、2 - エチルヘキサン酸塩などが挙げられる。それらの硬化促進剤となる化合物の中では、ホスフィン化合物、イミダゾール化合物、ジアザビシクロ化合物、及びそれらの塩が好ましい。

10

これらの促進剤の使用量は効果促進効果が得られれば特に制限はないが、(A)エポキシ樹脂と(B)硬化剤の総量に対して0.1~10重量%が好ましく、1~7重量%がより好ましい。

#### 【0044】

本発明のエポキシ樹脂組成物において使用される無機充填剤としては例えば、溶融シリカ、結晶性シリカ、ガラス粉、アルミナ、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、タルクなどが挙げられる。また、本発明のエポキシ樹脂組成物を半導体封止の用途に用いる場合には、無機充填材として、破碎型及び/又は球状の、溶融及び/又は結晶性シリカ粉末充填材を組成物全体の70~95質量%配合することが好ましい。無機充填剤を使用することにより、封止材の熱膨張係数を内部のシリコンチップやリードフレームに近づけることができ、また封止材全体の吸湿量を減らす事ができるため、耐はんだクラック性を向上させることができる。またその平均粒径は1~50 $\mu\text{m}$ 、好ましくは1.5~40 $\mu\text{m}$ 、より好ましくは2~30 $\mu\text{m}$ である。粒径が細かすぎると溶融粘度が高くなり流動性が低下してしまい、粒径が大きくなると成形時に金型の狭い隙間に充填剤が目詰まりし材料の充填性を低下させてしまう。

20

#### 【0045】

本発明のエポキシ樹脂組成物には、他の一般のエポキシ樹脂組成物と同様に、各種添加剤を配合することができる。それら各種添加剤としては例えば、カップリング剤、難燃剤、可塑剤、反応性希釈剤、顔料等があげられ、必要に応じて適宜に配合することができる。その難燃剤としては、臭素化エポキシ樹脂、臭素化フェノール樹脂などのハロゲン系難燃剤、三酸化アンチモンなどのアンチモン化合物、赤燐、リン酸エステル類、ホスフィン類などのリン系難燃剤、メラミン誘導体などの窒素系難燃剤及び水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムなどの無機系難燃剤などが挙げられる。

30

#### 【0046】

本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は難燃性に優れるため、上記のうち特に環境安全性が危惧されている臭素化エポキシ樹脂、臭素化フェノール樹脂などのハロゲン系難燃剤、三酸化アンチモンなどのアンチモン化合物について、これらの難燃剤を配合する必要があるが、少量にすることができる。ただし、組成物中の各成分の種類や配合量により難燃性は変化するので、UL-94規格のV-0あるいはそれに準じた難燃性を確保できるよう各成分の選択や配合量の調整をする必要がある。

40

#### 【0047】

本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物を封止材として用いた際の吸湿率は0.4質量%以下、好ましくは0.3質量%以下、より好ましくは0.2質量%以下である。吸湿率が高いと硬化物中の水分が急激に気化し、その結果、パッケージに大きな応力が発生しクラックが生じてしまう。吸湿率は以下の通り測定した。

直径50mm高さ3mmの円柱の試験片を成形し、105 $^{\circ}\text{C}$ で2時間乾燥した。その後、試験片の質量を精秤した後、85%RHの恒温恒湿槽に入れた。72時間後に

50

質量を測定し、その質量変化を測定した。

【0048】

本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物を封止材として用いた際のガラス転移点以下の線膨張係数 1 は  $5 \sim 25 \mu\text{m}/\text{m}$ 、好ましくは  $5 \sim 20 \mu\text{m}/\text{m}$ 、より好ましくは  $5 \sim 15 \mu\text{m}/\text{m}$  である。ガラス転移点以下の線膨張係数 2 は  $20 \sim 60 \mu\text{m}/\text{m}$ 、好ましくは  $20 \sim 50 \mu\text{m}/\text{m}$ 、より好ましくは  $20 \sim 40 \mu\text{m}/\text{m}$  である。線膨張係数がこれらの範囲から外れると封止樹脂中に熱応力が増大し、パッシベーションやチップの損傷、アルミ配線のスライド、パッケージクラックなどの不良を起こしてしまう。

線膨張係数は TMA 法 (TMA instruments 社製 TMA 2940 Thermomechanical Analyzer を使用) にて測定した。

10

【0049】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、難燃付与成分としてハロゲン化合物、アンチモン化合物を添加することなしに、又は少量添加するだけで優れた難燃性を有し、かつ低吸湿性、密着性に優れる硬化物を与えるので、電気電子分野、特に半導体封止の用途に有用である。

【0050】

以下に、本発明で使用される芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型エポキシ樹脂の製造例、本発明のエポキシ樹脂組成物の実施例及び比較例を挙げてさらに詳述する。

【0051】

20

〔予備製造例〕

温度計、攪拌装置、冷却管を備えた内容量 2 L の三口フラスコに、キシレン 220 g、硫酸 130 g、を仕込み、90 に昇温して均一に溶解させた後、35%ホルムアルデヒド水溶液 240 g を 1 時間かけて滴下した。滴下終了後、90 で 5 時間保持し反応を完了させ、水洗により硫酸を除去した。系内が中性になるまで水洗を繰り返した後、生成物から減圧下でキシレンを留去してキシレン-ホルムアルデヒド樹脂を得た。以後、このキシレン-ホルムアルデヒド樹脂を XF 樹脂とする。

【0052】

〔製造例 1〕

温度計、攪拌装置、冷却管を備えた内容量 2 L の三口フラスコに、先に得られた XF 樹脂 200 g にフェノール 300 g、p-トルエンスルホン酸 0.1 g を加え、100 で 2 時間攪拌した。その後、ホルマリン 35 g、シュウ酸 1.5 g を加え 3 時間攪拌した。反応混合物をメチルイソブチルケトン 500 g に溶解し、65 で中性になるまで水洗を繰り返した。次いで減圧下でメチルイソブチルケトン、フェノールを 160、減圧下で留去して芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂を得た。水酸基当量  $163 \text{ g}/\text{eq}$ 、150 における熔融粘度  $0.21 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 、軟化点 84、遊離フェノール 0.1 質量%以下であった。またこの樹脂は一般式 (1) において  $R^2 = \text{CH}_3$ 、 $i = 0$ 、 $j = 2$ 、 $m = 2.3$ 、 $n = 1.6$  であった。

30

【0053】

こうして得られた芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂 150 g、エピクロルヒドリン 510 g、イソプロピルアルコール 200 g を温度計、攪拌装置、冷却管を備えた内容量 2 L の三口フラスコに仕込み、40 に昇温して均一に溶解させた後、48.5 質量%の水酸化ナトリウム水溶液 90 g を 60 分かけて滴下した。その間に徐々に昇温し、滴下終了後には系内が 65 になるようにした。その後、65 で 30 分保持し反応を完了させ、水洗により副生塩及び過剰の水酸化ナトリウムを除去した。ついで、生成物から減圧下で過剰のエピクロルヒドリンとイソプロパノールを留去して、粗製エポキシ樹脂を得た。この粗製エポキシ樹脂をメチルイソブチルケトン 300 g に溶解させ、48.5 質量%の水酸化ナトリウム水溶液 9 g を加え、65 の温度で 1 時間反応させた。その後、反応液に第一リン酸ナトリウム水溶液を加えて、過剰の水酸化ナトリウムを中和し、水洗して副生塩を除去した。次いで、減圧下でメチルイソブチルケ

40

50

トン完全に除去して、目的のエポキシ樹脂 180 g を得た。得られた樹脂はエポキシ当量 247 g / eq . (水酸基当量から計算した理論値は 219 g / eq . )、加水分解性ハロゲン 400 ppm、150 における溶融粘度は 0.18 Pa · s、軟化点は 63 であった。

【0054】

〔製造例 2〕

製造例 1 においてホルマリンの量を 55 g に置き換えた以外は、製造例 1 と同様の操作を行い、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂を得た。得られた樹脂は水酸基当量 170 g / eq .、150 における溶融粘度 0.62 Pa · s、軟化点 95、遊離フェノール 0.1 質量%以下であった。またこの樹脂は一般式 (1) において  $R^2 = CH_3$ 、 $i = 0$ 、 $j = 2$ 、 $m = 2.9$ 、 $n = 2.1$  であった。つづいて製造例 1 と同様の操作を行い、エポキシ樹脂を得た。得られた樹脂はエポキシ当量 249 g / eq . (水酸基当量から計算した理論値は 226 g / eq . )、加水分解性ハロゲン 500 ppm、150 における溶融粘度は 0.48 Pa · s、軟化点は 80 であった。

【0055】

〔製造例 3〕

製造例 1 においてホルマリンの量を 70 g、メチルイソブチルケトン、フェノールの除去の温度を 120 に置き換えた以外は、製造例 1 と同様の操作を行い、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂を得た。得られた樹脂は水酸基当量 190 g / eq .、150 における溶融粘度 4.2 Pa · s、軟化点 109、遊離フェノール 3.6 質量%であった。またこの樹脂は一般式 (1) において  $R^2 = CH_3$ 、 $i = 0$ 、 $j = 2$ 、 $m = 9.8$ 、 $n = 7.5$  であった。つづいて、製造例 1 において、エピクロロヒドリンの量を 440 g、イソプロピルアルコールの量を 170 g、48.5 質量%の水酸化ナトリウム水溶液の量を 70 g とした以外は、製造例 1 と同様の操作を行い、エポキシ樹脂を得た。得られた樹脂はエポキシ当量 296 g / eq . (水酸基当量から計算した理論値は 246 g / eq . )、加水分解性ハロゲン 700 ppm、150 における溶融粘度は 2.4 Pa · s、軟化点は 97 であった。

【0056】

〔製造例 4〕

製造例 3 においてエピクロロヒドリンの量を 230 g、イソプロピルアルコールの量を 90 g、48.5 質量%の水酸化ナトリウム水溶液の量を 70 g とした以外は、製造例 1 と同様の操作を行い、エポキシ樹脂を得た。得られた樹脂はエポキシ当量 372 g / eq . (水酸基当量から計算した理論値は 246 g / eq . )、加水分解性ハロゲン 1100 ppm、150 における溶融粘度は 5.4 Pa · s、軟化点は 122 であった。

【0057】

〔エポキシ樹脂組成物実施例 1 ~ 6 及び比較例 1 ~ 4〕

表 1 に示したように、エポキシ樹脂として製造例 1 ~ 4 で得られたエポキシ樹脂、テトラメチルピフェノールから誘導されたエポキシ樹脂、ピフェノールとテトラメチルピフェノールから誘導されたエポキシ樹脂、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、テトラプロモビスフェノール A 型エポキシ樹脂又はオルソクレゾールノボラック樹脂から誘導されたエポキシ樹脂、エポキシ樹脂用硬化剤として一般式 (1) で表わされるフェノール樹脂、フェノールアラルキル樹脂、ピフェニルフェノール樹脂、フェノールノボラック型樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、フェノールノボラック樹脂、無機充填剤としてシリカ粉末、硬化促進剤としてトリフェニルホスフィンを用い、さらにカップリング剤としてエポキシシラン、離形剤としてカルナバワックスをそれぞれ用いて、各エポキシ樹脂組成物を配合した。次いで、各配合物をミキシングロールを用いて 70 ~ 120 の温度で 5 分間溶融混練した。得られた各溶融混合物は薄板状に取り出し冷却した後、粉碎して各成形材料を得た。これらの各成形材料を用い低圧トランスファー成形機で金型温度 175、成形時間 180 秒で成形して、各試験片を得、180 で 8 時間ポストキュアさ

10

20

30

40

50

せた。ポストキュア後の各試験片の吸湿率、ガラス転移温度、及び密着性、難燃性を試験した結果を表1及び表2に示した。さらに各成形材料により封止された模擬半導体装置の耐ハンダクラック性を試験した結果を表1及び表2に示した。またエポキシ樹脂と硬化剤の混合熔融粘度を表1及び表2に示した。

【 0 0 5 8 】

【 表 1 】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
エポキシ樹脂 組成物配合 (重量部)	エポキシ樹脂 配合量	100	100	75	80	85	75
	その他のエポキシ樹脂 配合量			A (*1)	B (*2)	C (*3)	D (*4)
	臭素化エポキシ樹脂 配合量	0	0	25	20	15	25
	フェノール樹脂 配合量	F (*6)	G (*7)	F	H (*8)	I (*9)	J (*10)
	無機充填剤 (*12)	71	65	76	66	88	57
	トリフェニルホスフィン	989	955	1017	961	1085	910
	カルナバワックス	1	1	1	1	1	1
	カーボンブラック	1	1	1	1	1	1
	シランカップリング剤 (*13)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	シランカップリング剤 (*13)	1	1	1	1	1	1
試験結果	混合溶融粘度 (Pa · s/150°C) (*14)	0.29	0.31	0.20	0.21	0.19	0.35
ダイラクトール (*15)	74	67	78	79	80	66	
ガラス転移温度 (°C) (*16)	128	135	119	120	116	140	
線膨張係数 α1 (μm/m°C)	13	15	14	15	14	16	
線膨張係数 α2 (μm/m°C)	29	35	34	38	36	39	
吸湿率 (%) (*17)	0.11	0.14	0.14	0.15	0.13	0.17	
密着性 (kg/mm) (*18)	0.52	0.50	0.46	0.48	0.50	0.45	
耐ハンダクラック性 (*19)	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	
難燃性 (*20)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	

【 0 0 5 9 】

10

20

30

40

50

【表 2】

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
エポキシ樹脂 組成物配合 (重量部)	エポキシ樹脂 配合量			製造例3 100	製造例4 100
	その他のエポキシ樹脂 配合量	D 100	A 100		
	臭素化エポキシ樹脂 配合量	E (*5) 8	0	0	0
	フェノール樹脂 配合量	K (*11) 54	F 91	F 59	F 47
	無機充填剤 (*12)	662	1102	921	853
	トリフェニルホスフィン	1	1	1	1
	カルナバワックス	1	1	1	1
	カーボンブラック	0.5	0.5	0.5	0.5
	シランカップリング剤 (*13)	1	1	1	1
	試験結果	0.38	0.07	1.2	2.5
混合溶解粘度 (Pa · s/150°C) (*14)	55	85	35	15	
Δ <sup>1</sup> イソプロ (*15)	155	104	145	150	
ガラス転移温度 (°C) (*16)	26	16	30	45	
線膨張係数 α <sub>1</sub> (μm/m°C)	76	50	80	95	
線膨張係数 α <sub>2</sub> (μm/m°C)	0.32	0.21	0.23	0.25	
吸湿率 (%) (*17)	0.25	0.42	0.38	0.35	
密着性 (kg/mm) (*18)	16/16	4/16	3/16	4/16	
耐ハンダクラック性 (*19)	V-0	全焼	V-1	V-1	
難燃性 (*20)					

\* 1 : A ; テトラメチルビフェニル型エポキシ樹脂 ( ジャパンエポキシレジン社商品名 エピコートYX4000H , エポキシ当量 : 193(g/eq) )

\* 2 : B ; ビフェニル型エポキシ樹脂 ( ジャパンエポキシレジン社商品名 エピコートYL6121H , エポキシ当量 : 172(g/eq) , )

\* 3 : C ; 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社商品名 エピコートYL6810 , エポキシ当量 : 172(g/eq) , )

\* 4 : D ; クレゾ - ルノボラック型エポキシ樹脂 ( ジャパンエポキシレジン社商品名

10

20

30

40

50

- エポコート180S62，エポキシ当量：197(g/eq)
- \* 5 : E ; 臭素化エポキシ樹脂 ( 日本化薬社商品名 BREN-S、エポキシ当量：385 (g/eq)、臭素含量：48% )
  - \* 6 : F ; フェノールアラルキル樹脂 ( 明和化成社商品名 MEH-7800S，水酸基当量：175(g/eq)，軟化点：75( ) )
  - \* 7 : G ; 芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性ノボラック型フェノール樹脂 ( 三菱瓦斯化学社商品名 ニカノールGLP，水酸基当量：163(g/eq)，軟化点：86( ) )
  - \* 8 : H ; フェノール/ベンズアルデヒドノボラック型樹脂 ( ジャパンエポキシレジ  
ン社商品名 エピキュア Y L H 1 0 2 7，水酸基当量：150(g/eq) )，軟  
化点：82( ) 10
  - \* 9 : I ; ビフェニルフェノール樹脂 ( 明和化成社商品名 MEH-7851S，水酸基当  
量：205(g/eq)，軟化点：75( ) )
  - \* 1 0 : J ; ナフトールアラルキル樹脂 ( 明和化成社商品名 MEH-7700，水酸基当量：  
140(g/eq)，軟化点：96( ) )
  - \* 1 1 : K ; フェノールノボラック樹脂 ( 群栄化学社商品名 レジトップPSM4261，水酸  
基当量：103(g/eq)，軟化点：85 )
  - \* 1 2 : 溶融シリカ粉末 ( 龍森社商品名 RD-8 )
  - \* 1 3 : エポキシシラン ( 信越化学工業社商品名 KBM-403 )
  - \* 1 4 : エポキシ樹脂と硬化剤のみを混合溶融させてICI粘度計により測定。 20
  - \* 1 5 : E M M I - 1 - 6 6
  - \* 1 6 : T M A 法
  - \* 1 7 : 85 、85%RH、72時間後の吸湿率
  - \* 1 8 : アルミピール試験
  - \* 1 9 : 80ピンQFP16個を85 、85%RHにおいて72時間吸湿後、260 ハンダ浴に10秒  
間浸漬し、クラックの発生した個数を求めた。
  - \* 2 0 : U L 9 4

【 0 0 6 0 】

上記表 1 及び表 2 から明らかなように、実施例 1 ~ 6 の各成形材料は、比較例 1 ~ 4 の成形材料と比較してハロゲン化合物、アンチモン化合物を添加することなしに、優れた難燃性を有するとともに、低吸湿性、密着性のバランスに優れ、さらに耐ハンダクラック性に優れていた。また比較例 3、4 の成形材料は低吸湿性、密着性には優れていたが、混合溶融粘度が高いため、スパイラルフローが短く、著しく流動性に劣っていた。

フロントページの続き

(56)参考文献 特開平07 - 048499 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08G59/00, C08L63/00