

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014 年 7 月 17 日(17.07.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/109212 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 63/00 (2006.01) *C09J 163/00* (2006.01)
C08G 59/24 (2006.01) *H01L 23/29* (2006.01)
C08L 33/14 (2006.01) *H01L 23/31* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) *H01L 33/56* (2010.01)
C09J 133/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/084278
- (22) 国際出願日: 2013 年 12 月 20 日(20.12.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-002167 2013 年 1 月 9 日(09.01.2013) JP
- (71) 出願人: 株式会社ダイセル(DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田三丁目 4 番 5 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 鈴木弘世(SUZUKI, Hirose); 〒7390695 広島県大竹市東栄 2 丁目 1 番 4 号株式会社ダイセル内 Hiroshima (JP). ▲高▼林尚史(TAKABAYASHI, Naofumi); 〒7390695 広島県大竹市東栄 2 丁目 1 番 4 号株式会社ダイセル内 Hiroshima (JP).
- (74) 代理人: 後藤幸久(GOTO, Yukihisa); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町 2 番 1 8 号南森町共同ビル 2 階 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: CURABLE EPOXY RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 硬化性エポキシ樹脂組成物

(57) Abstract: Provided is a curable epoxy resin composition capable of forming a cured product which exhibits excellent transparency, heat resistance, thermal-shock resistance, and adhesion properties. A curable epoxy resin composition containing an alicyclic epoxy compound (A) and an acrylic resin (B), the curable epoxy resin composition being characterized in that the acrylic resin (B) contains an acrylic monomer and a styrene monomer as essential monomer components, and is a polymer having an epoxy group in the side chain thereof. It is preferable for the curable epoxy resin composition to contain the alicyclic epoxy compound (A) in the amount of 65-95 wt% and the acrylic resin (B) in the amount of 5-35 wt%, given that the alicyclic epoxy compound (A) and the acrylic resin (B) are equivalent to 100 wt% in total.

(57) 要約: 透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物を形成できる硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。脂環式エポキシ化合物 (A) とアクリル樹脂 (B) とを含む組成物であって、アクリル樹脂 (B) が、アクリル系単量体及びスチレン系単量体を必須の単量体成分として含有し、なおかつ側鎖にエポキシ基を有する重合体であることを特徴とする硬化性エポキシ樹脂組成物。当該硬化性エポキシ樹脂組成物においては、脂環式エポキシ化合物 (A) とアクリル樹脂 (B) の合計量 (100 重量%) に対する脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量が 65 ~ 95 重量%、アクリル樹脂 (B) の含有量が 5 ~ 35 重量%であることが好ましい。



WO 2014/109212 A1

明 細 書

発明の名称： 硬化性エポキシ樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、硬化性エポキシ樹脂組成物、該硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化して得られる硬化物、該硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置、及び上記硬化性エポキシ樹脂組成物により光半導体素子が電極（金属）に接着された光半導体装置に関する。本願は、2013年1月9日に日本に出願した特願2013-002167号の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 光半導体装置には、硬化させることによって透明な硬化物（樹脂硬化物）を形成するエポキシ樹脂が広く使用されている。上記エポキシ樹脂は、光半導体装置において主に、光半導体素子を封止して保護するための封止剤として、また、光半導体素子と電極（金属）とを接着し、固定するための接着剤（ダイアタッチペースト剤、ダイボンド剤）などとして使用される。

[0003] 光半導体装置において使用されるエポキシ樹脂としては、例えば、モノアリルジグリシジルイソシアヌレートとビスフェノールA型エポキシ樹脂とを含む組成物が知られている（特許文献1参照）。しかしながら、上記組成物を光半導体装置における封止剤やダイアタッチペースト剤として使用した場合には、光半導体素子から発せられる光や熱によって硬化物（封止材、接着材）の着色が進行し、光半導体装置の光取り出し効率が低下するという問題が生じていた。

[0004] また、光半導体装置において使用されるエポキシ樹脂としては、その他に、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル（3,4-エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレート、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル（3,4-エポキシ）シクロヘキサンカルボキシレートとε-カプロラク톤の付加物、1,2,8,9-ジエポキシリモネンなどの脂環骨格を有する液状の脂環

式エポキシ樹脂などが知られている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2000-344867号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、上述の脂環式エポキシ樹脂の硬化物は各種応力に弱く、クラック（ひび割れ）を生じやすいという問題を有していた。このため、上述の脂環式エポキシ樹脂を光半導体装置における封止剤やダイアタッチペースト剤として使用した場合には、特に、高温環境下（例えば、リフロー工程のような極めて高温で加熱された場合や、長時間高温に曝露された場合など）や、冷熱サイクル（加熱と冷却を周期的に繰り返すこと）のような熱衝撃が加えられた場合に、光度が低下しやすいという問題が生じていた。また、特に脂環式エポキシ樹脂をダイアタッチペースト剤として使用する場合、その硬化物は、光半導体装置における光半導体素子と電極（金属）とを固定するための接着力が十分でなく、光半導体装置に対して熱衝撃等による応力が加えられた場合に、光半導体素子が電極（金属）から剥離し、光半導体素子の封止材にクラックを顕著に生じさせる場合があった。

[0007] 一方、特に、上記脂環式エポキシ樹脂をダイアタッチペースト剤として使用する場合には、その耐熱衝撃性を改良するためにフィラー等の無機物が配合される場合がある。しかしながら、このような場合には形成される硬化物の透明性が低下し、光半導体素子から発せられる光が当該硬化物により吸収され、光半導体装置の光取り出し効率が低下するという問題が生じていた。

[0008] 従って、本発明の目的は、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性（熱衝撃が加えられた場合にもクラック等の不具合を生じにくい特性）、及び接着性に優れた硬化物を形成できる硬化性エポキシ樹脂組成物を提供することにある。

また、本発明の他の目的は、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に

優れた硬化物を提供することにある。

さらに、本発明の他の目的は、光半導体装置の高温における通電特性、耐リフロー性（リフロー工程を経た場合にも封止材へのクラック発生や光半導体装置の光度低下などの不具合を生じにくい特性）、及び耐熱衝撃性を向上させることができる光半導体封止用樹脂組成物（光半導体素子の封止剤）を提供することにある。

さらに、本発明の他の目的は、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れ、特に光半導体装置におけるダイアタッチペースト剤として使用することにより、光半導体装置の光取り出し効率、耐熱衝撃性、及び耐熱性を向上させることができる接着剤用樹脂組成物（接着剤）を提供することにある。

さらに、本発明の他の目的は、光取り出し効率が高く、高温における通電特性、耐リフロー性、及び耐熱衝撃性に優れた光半導体装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、脂環式エポキシ化合物と、特定構造のアクリル樹脂とを含む硬化性エポキシ樹脂組成物が、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物を形成でき、なおかつ光半導体素子の封止剤や光半導体装置におけるダイアタッチペースト剤として有用であることを見出し、本発明を完成させた。

[0010] すなわち、本発明は、脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）とを含む組成物であって、

アクリル樹脂（B）が、アクリル系単量体及びスチレン系単量体を必須の単量体成分として含有し、なおかつ側鎖にエポキシ基を有する重合体であることを特徴とする硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

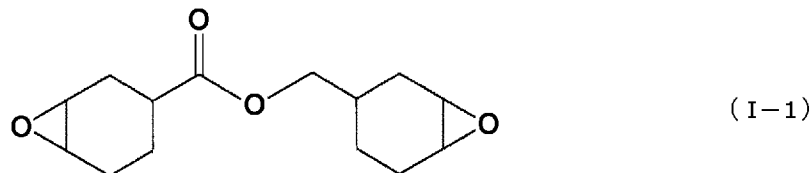
[0011] さらに、脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）の合計量（100重量％）に対する脂環式エポキシ化合物（A）の含有量が65～95重量％、アクリル樹脂（B）の含有量が5～35重量％である前記の硬化性エ

ポキシ樹脂組成物を提供する。

[0012] さらに、脂環式エポキシ化合物（A）が、シクロヘキセンオキシド基を有する化合物である前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0013] さらに、脂環式エポキシ化合物（A）が、下記式（I-1）

[化1]



で表される化合物である前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0014] さらに、酸化防止剤（C）及び紫外線吸収剤（D）からなる群より選択された少なくとも1種を含む前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0015] さらに、硬化剤（E）及び硬化促進剤（F）、又は、硬化触媒（G）を含む前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0016] また、本発明は、前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化させることにより得られる硬化物を提供する。

[0017] さらに、光半導体封止用樹脂組成物である前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0018] また、本発明は、前記の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置を提供する。

[0019] さらに、接着剤用樹脂組成物である前記の硬化性エポキシ樹脂組成物を提供する。

[0020] また、本発明は、前記の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が電極に接着された光半導体装置を提供する。

[0021] すなわち、本発明は以下に関する。

（1）脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）とを含む組成物であって、アクリル樹脂（B）が、アクリル系単量体及びスチレン系単量体を必須の単量体成分として含有し、なおかつ側鎖にエポキシ基を有する重合体であることを特徴とする硬化性エポキシ樹脂組成物。

(2) 脂環式エポキシ化合物 (A) とアクリル樹脂 (B) の合計量 (100重量%) に対する脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量が65～95重量%、アクリル樹脂 (B) の含有量が5～35重量%である (1) に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(3) 脂環式エポキシ化合物 (A) が、シクロヘキセンオキシド基を有する化合物である (1) 又は (2) に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(4) 脂環式エポキシ化合物 (A) が、前記式 (I-1) で表される化合物である (1) ～ (3) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(5) さらに、酸化防止剤 (C) 及び紫外線吸収剤 (D) からなる群より選択された少なくとも1種を含む (1) ～ (4) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(6) さらに、硬化剤 (E) 及び硬化促進剤 (F)、又は、硬化触媒 (G) を含む (1) ～ (5) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(7) 脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物 (100重量%) に対して、10～95重量%である (1) ～ (6) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(8) 硬化性エポキシ樹脂組成物が硬化剤 (E) を含む場合、脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物 (100重量%) に対して、10～90重量%である (6) 又は (7) に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(9) 硬化触媒 (G) を含む場合、脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物 (100重量%) に対して、25～95重量%である (6) 又は (7) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(10) 硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量 (全エポキシ化合物) (100重量%) に対する脂環式エポキシ化合物 (A) の含有量 (配合量) が、20～98重量%である (1) ～ (9) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(11) アクリル系単量体が、炭素数1～10のアルキル基を有する(メタ)アクリル酸アルキルエステル及びエポキシ基含有アクリル系単量体からなる群より選択された少なくとも1種である(1)～(10)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(12) スチレン系単量体が、スチレンである(1)～(11)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(13) エポキシ基含有単量体が、グリシジルメタクリレート及び3,4-エポキシシクロヘキシルメチルアクリレートからなる群より選択された少なくとも1種である(1)～(12)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(14) アクリル樹脂(B)を構成する単量体の全量(100重量%)に対するアクリル系単量体の割合が、45～98重量%である(1)～(13)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(15) アクリル樹脂(B)を構成する単量体の全量(100重量%)に対するスチレン系単量体の割合が、1～50重量%である(1)～(14)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(16) アクリル樹脂(B)を構成する単量体の全量(100重量%)に対するエポキシ基含有単量体の割合が、5～50重量%である(1)～(15)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(17) アクリル樹脂(B)を構成する単量体の全量(100重量%)に対するその他の単量体の割合が、10重量%未満である(1)～(16)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(18) アクリル樹脂(B)の重量平均分子量が、500～100000である(1)～(17)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(19) アクリル樹脂(B)の数平均分子量が、200～50000である(1)～(18)のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(20) アクリル樹脂(B)の含有量(配合量)が、硬化性エポキシ樹脂組成物(100重量%)に対して、1～40重量%である(1)～(19)

のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(21) 脂環式エポキシ化合物 (A) とアクリル樹脂 (B) の合計量 (100重量%) に対するアクリル樹脂 (B) の含有量 (配合量) が、5～35重量%である (1)～(20) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(22) 酸化防止剤 (C) が、フェノール系酸化防止剤 (フェノール系化合物)、ヒンダードアミン系酸化防止剤 (ヒンダードアミン系化合物)、リン系酸化防止剤 (リン系化合物)、及びイオウ系酸化防止剤 (イオウ系化合物) からなる群より選択された少なくとも1種である (1)～(21) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(23) 酸化防止剤 (C) の含有量 (配合量) が、脂環式エポキシ化合物 (A) 100重量部に対して、0.1～5重量部である (1)～(22) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(24) 紫外線吸収剤 (D) が、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤 (ベンゾフェノン系化合物)、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤 (ベンゾトリアゾール系化合物)、及びベンゾエート系紫外線吸収剤 (ベンゾエート系化合物) からなる群より選択された少なくとも1種である (1)～(23) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(25) 紫外線吸収剤 (D) の含有量 (配合量) が、脂環式エポキシ化合物 (A) 100重量部に対して、0.1～5重量部である (1)～(24) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(26) 硬化剤 (E) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量100重量部に対して、50～200重量部である (1)～(25) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(27) 硬化促進剤 (F) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量 (100重量部) に対して、0.01～5重量部である (1)～(26) のいずれかに記載の硬化性エ

ポキシ樹脂組成物。

(28) 硬化触媒 (G) の含有量 (配合量) が、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量 100 重量部に対して、0.01～15 重量部である (1)～(27) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(29) (1)～(28) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化させることにより得られる硬化物。

(30) 光半導体封止用樹脂組成物である (1)～(28) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(31) (30) に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置。

(32) 接着剤用樹脂組成物である (1)～(28) のいずれかに記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

(33) (32) に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が電極に接着された光半導体装置。

発明の効果

[0022] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は上記構成を有するため、該樹脂組成物を硬化させることにより、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物を形成することができる。このため、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体素子の封止剤として用いることにより、光半導体装置の高温における通電特性、耐リフロー性、及び耐熱衝撃性を向上させることができる。また、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体装置におけるダイアタッチペースト剤として用いることにより、光半導体装置の光取り出し効率、耐熱衝撃性、及び耐熱性を向上させることができる。従って、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を用いることにより、耐久性及び品質の高い光半導体装置を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止

された光半導体装置の一実施形態を示す概略図である。左側の図（a）は斜視図であり、右側の図（b）は断面図である。

[図2]実施例のはんだ耐熱性試験における光半導体装置の表面温度プロファイル（二度の加熱処理のうち一方の加熱処理における温度プロファイル）の一例である。

発明を実施するための形態

[0024] <硬化性エポキシ樹脂組成物>

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）とを少なくとも含む組成物（硬化性組成物）である。本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、脂環式エポキシ化合物（A）やアクリル樹脂（B）以外にも必要に応じて、その他の成分を含んでもよい。

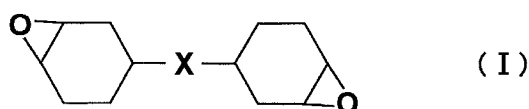
[0025] [脂環式エポキシ化合物（A）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における脂環式エポキシ化合物（A）は、分子内（一分子中）に脂環（脂肪族炭化水素環）構造とエポキシ基とを少なくとも有する化合物である。脂環式エポキシ化合物（A）としては、具体的には、（i）脂環を構成する隣接する2つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基（脂環エポキシ基）を有する化合物、（ii）脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物、（iii）脂環とグリシジル基とを有する化合物などが挙げられる。但し、脂環式エポキシ化合物（A）には、アクリル樹脂（B）は含まれないものとする。

[0026] 上述の（i）脂環を構成する隣接する2つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基（脂環エポキシ基）を有する化合物としては、公知乃至慣用のものの中から任意に選択して使用することができる。中でも、上記脂環エポキシ基としては、シクロヘキセンオキシド基が好ましい。

[0027] 上述の（i）脂環を構成する隣接する2つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基を有する化合物としては、透明性、耐熱性の観点で、シクロヘキセンオキシド基を有する化合物が好ましく、特に、下記式（I）で表される化合物（脂環式エポキシ化合物）が好ましい。

[化2]



[0028] 上記式 (I) 中、Xは単結合又は連結基（1以上の原子を有する2価の基）を示す。上記連結基としては、例えば、2価の炭化水素基、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、これらが複数個連結した基などが挙げられる。

[0029] 上記式 (I) 中のXが単結合である化合物としては、3, 4, 3', 4'-ジエポキシビスクロヘキサンなどが挙げられる。

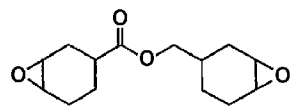
[0030] 上記2価の炭化水素基としては、炭素数が1～18の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基、2価の脂環式炭化水素基などが挙げられる。炭素数が1～18の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基などが挙げられる。上記2価の脂環式炭化水素基としては、例えば、1, 2-シクロペンチレン基、1, 3-シクロペンチレン基、シクロペンチリデン基、1, 2-シクロヘキシレン基、1, 3-シクロヘキシレン基、1, 4-シクロヘキシレン基、シクロヘキシリデン基などの2価のシクロアルキレン基（シクロアルキリデン基を含む）などが挙げられる。

[0031] 上記連結基Xとしては、特に、酸素原子を含有する連結基が好ましく、具体的には、 $-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-COO-$ 、 $-O-$ 、 $-CONH-$ ；これらの基が複数個連結した基；これらの基の1又は2以上と2価の炭化水素基の1又は2以上とが連結した基などが挙げられる。2価の炭化水素基としては上記で例示したものが挙げられる。

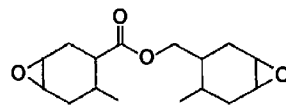
[0032] 上記式 (I) で表される脂環式エポキシ化合物の代表的な例としては、下記式 (I-1) ～ (I-10) で表される化合物などが挙げられる。なお、下記式 (I-5)、(I-7) 中のl、mは、それぞれ1～30の整数を表す。下記式 (I-5) 中のRは炭素数1～8のアルキレン基であり、メチレ

ン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、ブチレン基、イソブチレン基、s-ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基等の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が挙げられる。これらの中でも、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基等の炭素数1～3の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。下記式（I-9）、（I-10）中の $n_1 \sim n_6$ は、それぞれ1～30の整数を示す。

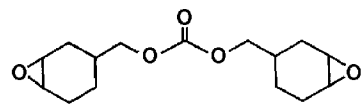
[化3]



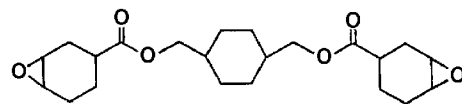
(I-1)



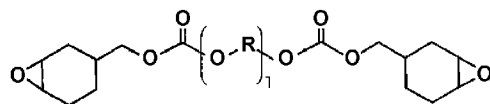
(I-2)



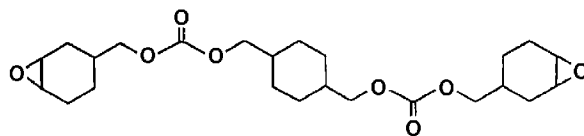
(I-3)



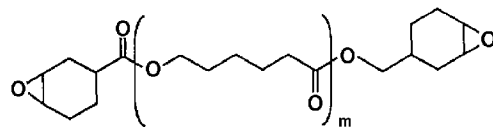
(I-4)



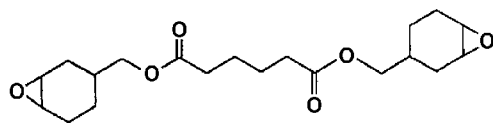
(I-5)



(I-6)

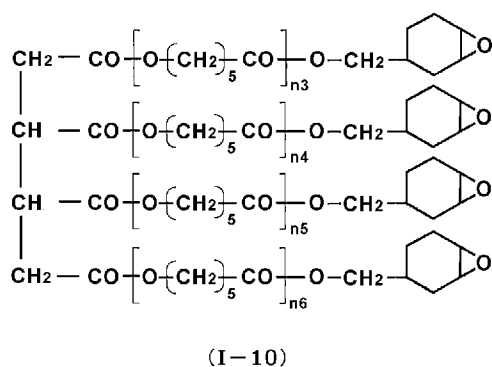
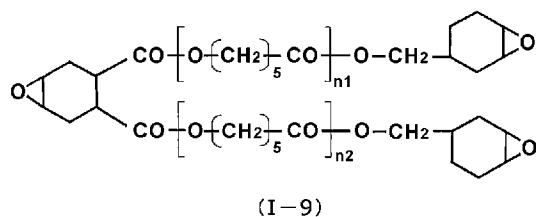


(I-7)



(I-8)

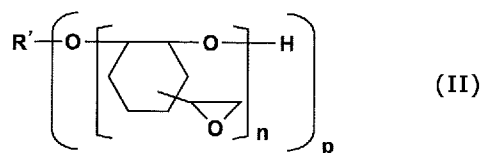
[化4]



[0033] また、式（I）で表される化合物として、上述した以外に、2，2ービス（3，4ーエポキシシクロヘキシル）プロパン、1，2ービス（3，4ーエポキシシクロヘキシル）エタン、2，3ービス（3，4ーエポキシシクロヘキシル）オキシラン、ビス（3，4ーエポキシシクロヘキシルメチル）エーテルが挙げられる。

[0034] 上述の（i i）脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物としては、例えば、下記式（I I）で表される化合物などが挙げられる。

[化5]



[0035] 式（I I）中、R' はp価のアルコールからp個のーOHを除いた基であり、p、nはそれぞれ自然数を表す。p価のアルコール [R' - (OH)_p] としては、2，2ービス（ヒドロキシメチル）ー1ーブタノール等の多価アルコールなど（炭素数1～15のアルコール等）が挙げられる。pは1～6

が好ましく、 n は1～30が好ましい。 p が2以上の場合、それぞれの（
）内（丸括弧内）の基における n は同一でもよく異なってもよい。上記式（11）で表される化合物としては、具体的には、2, 2-ビス（ヒドロキシメチル）-1-ブタノールの1, 2-エポキシ-4-（2-オキシラニル）シクロヘキサン付加物〔例えば、商品名「EHPE3150」（株）ダイセル製）など〕などが挙げられる。

[0036] 上述の（iii）脂環とグリシジル基とを有する化合物としては、例えば、2, 2-ビス〔4-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕プロパン、2, 2-ビス〔3, 5-ジメチル-4-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕プロパンなどのビスフェノールA型エポキシ化合物を水素化した化合物（水素化ビスフェノールA型エポキシ化合物）；ビス〔o, o-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔o, p-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔p, p-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔3, 5-ジメチル-4-（2, 3-エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタンなどのビスフェノールF型エポキシ化合物を水素化した化合物（水素化ビスフェノールF型エポキシ化合物）；水添ビスフェノール型エポキシ化合物；水添フェノールノボラック型エポキシ化合物；水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物；ビスフェノールAの水添クレゾールノボラック型エポキシ化合物；水添ナフタレン型エポキシ化合物；トリスフェノールメタンから得られるエポキシ化合物の水添エポキシ化合物などの水素化芳香族グリシジルーエーテル系エポキシ化合物などが挙げられる。

[0037] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物において、脂環式エポキシ化合物（A）は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせで使用することができる。また、脂環式エポキシ化合物（A）としては、例えば、商品名「セロキサイド2021P」、「セロキサイド2081」（以上、（株）ダイセル製）などの市販品を使用することもできる。

[0038] 脂環式エポキシ化合物（A）としては、上記式（1-1）で表される化合

物〔3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル(3, 4-エポキシ)シクロヘキサンカルボキシレート; 例えば、商品名「セロキサイド2021P」((株)ダイセル製)など〕が特に好ましい。

[0039] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における脂環式エポキシ化合物(A)の含有量(配合量)は、特に限定されないが、硬化性エポキシ樹脂組成物(100重量%)に対して、10~95重量%が好ましく、より好ましくは15~95重量%、さらに好ましくは20~90重量%である。脂環式エポキシ化合物(A)の含有量が上記範囲を外れると、硬化物の耐熱性や耐光性が不十分となる場合がある。

[0040] また、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における脂環式エポキシ化合物(A)の含有量(配合量)は、特に限定されないが、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物が硬化剤(E)を必須成分として含む場合には、硬化性エポキシ樹脂組成物(100重量%)に対して、10~90重量%が好ましく、より好ましくは15~80重量%、さらに好ましくは20~70重量%である。一方、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物が硬化触媒(G)を必須成分として含む場合には、脂環式エポキシ化合物(A)の含有量(配合量)は、硬化性エポキシ樹脂組成物(100重量%)に対して、25~95重量%が好ましく、より好ましくは30~90重量%、さらに好ましくは35~90重量%である。

[0041] 硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量(全エポキシ化合物)(100重量%)に対する脂環式エポキシ化合物(A)の含有量(配合量)は、特に限定されないが、20~98重量%が好ましく、より好ましくは30~95重量%、さらに好ましくは40~95重量%である。脂環式エポキシ化合物(A)の含有量が20重量%未満では、硬化物の耐熱性、耐光性、耐熱衝撃性、耐吸湿リフロー性が低下する場合がある。

[0042] [アクリル樹脂(B)]

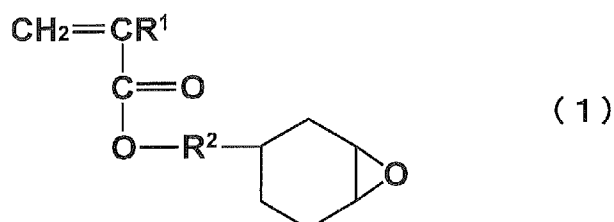
本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物におけるアクリル樹脂(B)は、アクリル系単量体及びスチレン系単量体を必須の単量体成分として含有し、なお

かつ側鎖にエポキシ基を有する重合体（共重合体）である。即ち、アクリル樹脂（B）は、アクリル系単量体に由来する構成単位及びスチレン系単量体に由来する構成単位を必須の構成単位として含み、なおかつ側鎖にエポキシ基を有する重合体である。

[0043] アクリル樹脂（B）の必須の単量体成分であるアクリル系単量体としては、公知乃至慣用のアクリル系単量体を使用することができ、特に限定されないが、例えば、（メタ）アクリル酸；（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸n-プロピル、（メタ）アクリル酸イソプロピル、（メタ）アクリル酸n-ブチル、（メタ）アクリル酸イソブチル、（メタ）アクリル酸t-ブチル、（メタ）アクリル酸2-エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸ラウリルなどの（メタ）アクリル酸アルキルエステル（例えば、炭素数1～18のアルキル基を有する（メタ）アクリル酸アルキルエステルなど）；（メタ）アクリル酸ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸ヒドロキシプロピルなどの（メタ）アクリル酸ヒドロキシアルキル；（メタ）アクリル酸グリシジル、下記式（1）で表される化合物（例えば、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル（メタ）アクリレートなど）などのエポキシ含有アクリル系単量体； γ -トリメトキシシラン（メタ）アクリレート、 γ -トリエトキシシラン（メタ）アクリレートなどのシリル基含有アクリル系単量体；（メタ）アクリルアミド、N-メチル（メタ）アクリルアミド、N-メチロール（メタ）アクリルアミド、N-ブトキシメチル（メタ）アクリルアミドなどのアミド基含有アクリル系単量体；アクロレイン、メタクロレインなどのアルデヒド基含有アクリル系単量体などが挙げられる。なお、アクリル樹脂（B）の単量体成分としてアクリル系単量体は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。中でも、アクリル系単量体としては、炭素数1～10のアルキル基を有する（メタ）アクリル酸アルキルエステル、エポキシ基含有アクリル系単量体が好ましく、より好ましくは炭素数1～4のアルキル基を有する（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸グリシジル、下記式（

1) で表される化合物である。なお、本明細書において「(メタ) アクリル」とは、アクリル及び／又はメタクリル(アクリル及びメタクリルのいずれか一方又は両方)を意味するものとし、その他の同様の表現についても同義である。

[化6]



[式(1)中、 R^1 は、水素原子又はメチル基を示す。 R^2 は、アルキレン基を示す。]

[0044] 上記式(1)における R^2 としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基などの炭素数1～10のアルキレン基などが挙げられる。

[0045] アクリル樹脂(B)の必須の単量体成分であるスチレン系単量体としては、公知乃至慣用の芳香族ビニル単量体(スチレン骨格を有する単量体)を使用でき、特に限定されないが、例えば、スチレン、*o*-メチルスチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、2,4-ジメチルスチレン、2,5-ジメチルスチレン、エチルスチレン、トリメチルスチレン、ペンタメチルスチレン、ジエチルスチレン、イソプロピルスチレン、ブチルスチレン(3-*t*-ブチルスチレン、4-*t*-ブチルスチレンなど)などのアルキルスチレン；クロロスチレン(*o*-クロロスチレン、*m*-クロロスチレン、*p*-クロロスチレンなど)、ジクロロスチレン(2,4-ジクロロスチレン、2,5-ジクロロスチレンなど)、トリクロロスチレン、ブロモスチレン(2-ブロモスチレン、3-ブロモスチレン、4-ブロモスチレンなど)、フルオロスチレン(2-フルオロスチレン、3-フルオロスチレン、4-フルオロスチレンなど)、*p*-ヨードスチレンなどのハロゲン化スチレン；メトキ

シスチレン、メトキシメチルスチレン、ジメトキシシスチレン、エトキシシスチレン、ビニルフェニルアリルエーテルなどのアルコキシシスチレン；ヒドロキシシスチレン、メトキシヒドロキシシスチレン、アセトキシシスチレン、 α -メチルスチレン、 α -メチルー

-メチルスチレン、1, 1-ジフェニルエチレン、p-(N, N-ジエチルアミノエチル)スチレン、p-(N, N-ジエチルアミノメチル)スチレン、ビニルナフタレン、[(4-エテニルフェニル)メチル]オキシラン、4-(グリシジルオキシ)スチレンなどなどが挙げられる。なお、アクリル樹脂(B)の単量体成分としてスチレン系単量体は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。中でも、スチレン系単量体としては、スチレンが好ましい。

[0046] アクリル樹脂(B)が側鎖に有するエポキシ基は、通常、分子内にエポキシ基を有する単量体(「エポキシ基含有単量体」と称する場合がある)に由来する構造である。上記エポキシ基含有単量体としては、分子内に重合性官能基とエポキシ基とを有する公知乃至慣用の単量体を使用することができ、特に限定されないが、例えば、(メタ)アクリル酸グリシジル、上記式(1)で表される化合物(例えば、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル(メタ)アクリレート)、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレートグリシジルーエーテルなどのエポキシ基含有アクリル系単量体；[(4-エテニルフェニル)メチル]オキシラン、4-(グリシジルオキシ)スチレンなどのエポキシ基を有するスチレン系単量体；4-ビニルエポキシシクロヘキサン、ジグリシジルフマレート、ジエポキシシクロヘキシルメチルフマレート、アリルグリシジルーエーテルなどが挙げられる。なお、アクリル樹脂(B)の単量体成分としてエポキシ基含有単量体は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。中でも、エポキシ基含有単量体としては、グリシジルメタクリレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチルアクリレートが好ましい。

[0047] アクリル樹脂(B)は、特に限定されないが、上述の単量体以外の単量体

（「その他の単量体」と称する場合がある）を単量体成分として含んでもよい。上記その他の単量体としては、例えば、（メタ）アクリロニトリルなどの不飽和ニトリル化合物；エチレン、プロピレン、イソプレン、イソブテンなどのオレフィン；ブタジエンなどの共役ジエン；塩化ビニル；塩化ビニリデン；無水マレイン酸などの不飽和酸無水物；酢酸ビニルやプロピオン酸ビニルなどのビニルエステル、イソブチルビニルエーテル、メチルビニルスルフィド、N-ビニルカルバゾール、メチルビニルケトンなどの各種ビニル化合物などが挙げられる。なお、アクリル樹脂（B）の単量体成分としてその他の単量体は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0048] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の全量（100重量%）に対するアクリル系単量体の割合は、特に限定されないが、45～98重量%が好ましく、より好ましくは60～95重量%、さらに好ましくは65～90重量%である。即ち、アクリル樹脂（B）におけるアクリル系単量体に由来する構成単位の割合（含有量）は、特に限定されないが、アクリル樹脂（B）の全構成単位（100重量%）に対して、45～98重量%が好ましく、より好ましくは60～95重量%、さらに好ましくは65～90重量%である。アクリル系単量体の割合（アクリル系単量体に由来する構成単位の割合）が45重量%未満であると、硬化物の耐熱性、接着性が低下する場合がある。一方、上記割合が98重量%を超えると、相対的に単量体成分としてのスチレン系共重合体の割合が少なくなり、接着性が低下する場合がある。

[0049] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の全量（100重量%）に対するスチレン系単量体の割合は、特に限定されないが、1～50重量%が好ましく、より好ましくは5～45重量%、さらに好ましくは10～40重量%である。即ち、アクリル樹脂（B）におけるスチレン系単量体に由来する構成単位の割合（含有量）は、特に限定されないが、アクリル樹脂（B）の全構成単位（100重量%）に対して、1～50重量%が好ましく、より好ましくは5～45重量%、さらに好ましくは10～40重量%である。スチレン系

単量体の割合（スチレン系単量体に由来する構成単位の割合）が1重量%未満であると、硬化物の接着性が低下する場合がある。一方、上記割合が50重量%を超えると、溶解性が低下し、透明性が低下する場合がある。

[0050] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の全量（100重量%）に対するエポキシ基含有単量体の割合は、特に限定されないが、5～50重量%が好ましく、より好ましくは15～45重量%、さらに好ましくは25～40重量%である。即ち、アクリル樹脂（B）におけるエポキシ基含有単量体に由来する構成単位の割合（含有量）は、特に限定されないが、アクリル樹脂（B）の全構成単位（100重量%）に対して、5～50重量%が好ましく、より好ましくは15～45重量%、さらに好ましくは25～40重量%である。エポキシ基含有単量体の割合（エポキシ基含有単量体に由来する構成単位の割合）が5重量%未満であると、硬化物の耐熱性、接着性が低下する場合がある。一方、上記割合が50重量%を超えると、硬化物が硬くなり過ぎて、耐熱衝撃性が低下する場合がある。

[0051] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の全量（100重量%）に対するその他の単量体の割合は、特に限定されないが、10重量%未満（例えば、0重量%以上、10重量%未満）が好ましく、より好ましくは5重量%未満である。即ち、アクリル樹脂（B）を構成する単量体の全量（100重量%）に対するアクリル系単量体、スチレン系単量体、及びエポキシ基含有単量体の割合（合計割合）は、特に限定されないが、90重量%以上（例えば、90～100重量%）が好ましく、より好ましくは95重量%以上である。その他の単量体の割合が10重量%以上であると、硬化物の耐熱性、透明性、接着性、耐熱衝撃性が低下する場合がある。

[0052] アクリル樹脂（B）は、アクリル系単量体、スチレン系単量体、及びエポキシ基含有単量体、さらに必要に応じてその他の単量体を重合（共重合）することによって製造することができる。アクリル樹脂（B）の製造方法としては、公知乃至慣用の重合体の製造方法が挙げられ、特に限定されないが、例えば、上記単量体のラジカル重合反応（ラジカル共重合反応）を進行させ

てアクリル樹脂（B）を生成させる方法などが挙げられる。

[0053] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の重合反応は、溶媒の非存在下で進行させることもできるし、溶媒（重合溶媒）の存在下で進行させることもできる。上記重合溶媒としては、例えば、ヘキサン、ヘプタン、オクタンなどの脂肪族炭化水素；シクロヘキサンなどの脂環式炭化水素；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼンなどの芳香族炭化水素；クロロホルム、ジクロロメタン、1，2-ジクロロエタンなどのハロゲン化炭化水素；ジエチルエーテル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチルなどのエステル；N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミドなどのアミド；アセトニトリル、プロピオニトリル、ベンゾニトリルなどのニトリル；メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノールなどのアルコール；ジメチルスルホキシドなどの各種有機溶媒が挙げられる。なお、重合溶媒は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0054] また、重合溶媒としては、脂環式エポキシ化合物（A）を使用することもできる。脂環式エポキシ化合物（A）を重合溶媒として使用し、当該重合溶媒中でアクリル樹脂（B）を構成する単量体の重合反応を進行させることにより、脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）の混合物を一段階で得ることができる。このような方法は、溶媒として周知慣用の有機溶剤を使用した方法と比較して、アクリル樹脂（B）から重合溶媒を除去し、脂環式エポキシ化合物（A）に溶解（再溶解）させる手間や、アクリル樹脂（B）を含む重合溶媒に脂環式エポキシ化合物（A）を溶解させ、その後、重合溶媒を除去する手間などを省くことができるため、生産性及びコストの観点で有利である。なお、重合溶媒として使用する脂環式エポキシ化合物（A）は、硬化性エポキシ樹脂組成物を構成する脂環式エポキシ化合物（A）の一部の量であってもよいし、全量であってもよい。

- [0055] 上記重合溶媒の使用量は、特に限定されないが、アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の全量１００重量部に対して、１０～８００重量部が好ましく、より好ましくは５０～７００重量部である。なお、脂環式エポキシ化合物（Ａ）を重合溶媒として使用する場合には、所望の組成の脂環式エポキシ化合物（Ａ）とアクリル樹脂（Ｂ）の混合物が得られるように、脂環式エポキシ化合物（Ａ）の使用量を適宜設定できる。
- [0056] アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の重合反応は、重合開始剤の存在下で進行させることができる。上記重合開始剤としては、公知乃至慣用の重合開始剤が挙げられ、特に限定されないが、例えば、２，２′－アゾビスイソブチロニトリル（ＡＩＢＮ）、ベンゾイルパーオキサイド、イソブチリルパーオキサイドなどが挙げられる。なお、重合開始剤は１種を単独で使用することもできるし、２種以上を組み合わせることもできる。
- [0057] 上記重合開始剤の使用量は、特に限定されないが、アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の全量１００重量部に対して、０．１～５重量部が好ましく、より好ましくは０．２～３重量部である。重合開始剤の使用量が０．１重量部未満であると、アクリル樹脂（Ｂ）の分子量が小さく、硬化物における架橋構造が緩すぎて耐熱性が低下する場合がある。一方、重合開始剤の使用量が５重量部を超えると、アクリル樹脂（Ｂ）の分子量が大きくなり、硬化物において架橋構造が緻密に形成され、耐熱衝撃性が低下する場合がある。
- [0058] アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の重合反応は、例えば、樹脂の分子量制御を目的として、メトキシヒドロキノン、ヒドロキノンなどの公知乃至慣用の重合禁止剤の存在下で進行させてもよい。重合禁止剤は１種を単独で使用することもできるし、２種以上を組み合わせることもできる。重合禁止剤の使用量は、特に限定されないが、アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の全量１００重量部に対して、０．０１～５重量部が好ましく、より好ましくは０．１～１重量部である。
- [0059] アクリル樹脂（Ｂ）を構成する単量体の重合反応を進行させる温度（重合温度）は、使用する重合開始剤の種類等により適宜選択でき、特に限定され

ないが、0～150℃が好ましく、より好ましくは80～130℃である。
なお、重合反応を進行させる間、重合温度は一定となるように制御すること
もできるし、段階的又は連続的に変動するように制御することもできる。ま
た、上記重合反応を進行させる時間（重合時間）は、特に限定されないが、
1～900分が好ましく、より好ましくは180～480分である。

[0060] アクリル樹脂（B）を構成する単量体の重合反応は、常圧下で進行させる
こともできるし、加圧下又は減圧下で進行させることもできる。また、上記
重合反応は、特に限定されないが、窒素雰囲気下やアルゴン雰囲気下などの
不活性ガス雰囲気下で進行させることが好ましい。

[0061] 重合反応の終了後、必要に応じて、アクリル樹脂（B）を公知乃至慣用の
方法（例えば、再沈殿、濾過、濃縮、蒸留、抽出、晶析、再結晶、カラムク
ロマトグラフィー等の分離手段や、これらを組み合わせた分離手段など）に
より精製することができる。なお、上述のように、重合溶媒として脂環式エ
ポキシ化合物（A）を使用した場合には、上記重合反応により一段階で脂環
式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）との混合物を生成させること
ができるため、アクリル樹脂（B）の分離を行わなくてもよく、コスト面で
有利である。

[0062] アクリル樹脂（B）の重量平均分子量は、特に限定されないが、500～
100000が好ましく、より好ましくは1000～60000、さらに好
ましくは3000～50000である。重量平均分子量が100000を超
えると、硬化性エポキシ化合物（A）との相溶性が低下し、硬化物の透明性
、接着性、耐熱衝撃性等が低下する場合がある。一方、重量平均分子量が5
00未満であると、硬化物の耐熱性、耐熱衝撃性が低下する場合がある。

[0063] アクリル樹脂（B）の数平均分子量は、特に限定されないが、200～5
0000が好ましく、より好ましくは400～30000、さらに好ましく
は1000～30000である。数平均分子量が50000を超えると、硬
化性エポキシ化合物（A）との相容性が低下し、硬化物の透明性、接着性、
耐熱衝撃性等が低下する場合がある。一方、数平均分子量が200未満であ

ると、硬化物の耐熱性、耐熱衝撃性が低下する場合がある。なお、アクリル樹脂（Ｂ）の重量平均分子量及び数平均分子量は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー（ＧＰＣ）法により測定される標準ポリスチレン換算の分子量から算出することができる。

[0064] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物においてアクリル樹脂（Ｂ）は、１種を単独で使用することもできるし、２種以上を組み合わせることもできる。

[0065] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物におけるアクリル樹脂（Ｂ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性エポキシ樹脂組成物（１００重量％）に対して、１～４０重量％が好ましく、より好ましくは３～３０重量％である。アクリル樹脂（Ｂ）の含有量が１重量％未満であると、硬化物の耐熱衝撃性、接着性が低下する場合がある。一方、アクリル樹脂（Ｂ）の含有量が４０重量％を超えると、硬化物の透明性が低下する場合がある。

[0066] 脂環式エポキシ化合物（Ａ）とアクリル樹脂（Ｂ）の合計量（１００重量％）に対するアクリル樹脂（Ｂ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、５～３５重量％が好ましく、より好ましくは８～３２重量％である。即ち、脂環式エポキシ化合物（Ａ）とアクリル樹脂（Ｂ）の合計量（１００重量％）に対する脂環式エポキシ化合物（Ａ）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、６５～９５重量％が好ましく、より好ましくは６８～９２重量％である。アクリル樹脂（Ｂ）の含有量が５重量％未満であると、硬化物の耐熱衝撃性、接着性が低下する場合がある。一方、アクリル樹脂（Ｂ）の含有量が３５重量％を超えると、硬化物の透明性が低下する場合がある。

[0067] [酸化防止剤（Ｃ）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、酸化防止剤（Ｃ）を含んでいてもよい。酸化防止剤（Ｃ）としては、公知乃至慣用の酸化防止剤を使用することができ、特に限定されないが、例えば、フェノール系酸化防止剤（フェノール系化合物）、ヒンダードアミン系酸化防止剤（ヒンダードアミン系化合物）、リン系酸化防止剤（リン系化合物）、イオウ系酸化防止剤（イオウ系

化合物)などが挙げられる。

[0068] 上記フェノール系酸化防止剤としては、例えば、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール、ブチル化ヒドロキシアニソール、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-エチルフェノール、ステアリル- β -(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート等のモノフェノール類; 2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4, 4'-チオビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4, 4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、3, 9-ビス[1, 1-ジメチル-2-{ β -(3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ}エチル]2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ[5. 5]ウンデカン等のビスフェノール類; 1, 1, 3-トリス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル)ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、テトラキス[メチレン-3-(3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、ビス[3, 3'-ビス-(4'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチルフェニル)ブチリックアシッド]グリコールエステル、1, 3, 5-トリス(3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンジル)-s-トリアジン-2, 4, 6-(1H, 3H, 5H)トリオン、トコフェノール等の高分子型フェノール類などが挙げられる。

[0069] 上記ヒンダードアミン系酸化防止剤としては、例えば、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)[[3, 5-ビス(1, 1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル]メチル]ブチルマロネート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、メチル-1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルセバケート、4-ベンゾイルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンなどが挙げられる。

[0070] 上記リン系酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、ジイソデシルペンタエリスリトールホスファイト、トリス（2、4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（オクタデシル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（2、4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス（2、4-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ホスファイト、ビス〔2-tert-ブチル-6-メチル-4-〔2-（オクタデシルオキシカルボニル）エチル〕フェニル〕ヒドロゲンホスファイト等のホスファイト類；9，10-ジヒドロ-9-オキサー10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-（3，5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル）-9，10-ジヒドロ-9-オキサー10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド等のオキサホスファフェナントレンオキサイド類などが挙げられる。

[0071] 上記イオウ系酸化防止剤としては、例えば、ドデカンチオール、ジラウリル-3，3'-チオジプロピオネート、ジミリスチル-3，3'-チオジプロピオネート、ジステアリル-3，3'-チオジプロピオネートなどが挙げられる。

[0072] なお、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物において酸化防止剤（C）は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。また、酸化防止剤（C）としては、フェノール系酸化防止剤の市販品として、例えば、商品名「イルガノックス1010」、「イルガノックス1076」、「イルガノックス1098」、「イルガノックス1330」、「イルガノックス245」、「イルガノックス259」、「イルガノックス3114」、「イルガノックス3790」（以上、BASF製）；商品名「アデカスタブ AO-60」、「アデカスタブ AO-30」、「アデカスタブ AO-40」、「アデカスタブ AO-80」（以上、（株）ADEKA製）などが挙げられる。また、リン系酸化防止剤の市販品として、

例えば、商品名「IRGAFOS 168」、「IRGAFOS P-EPQ」、「IRGAFOS 12」（以上、BASF製）；商品名「アデカスタブHP-10」、「アデカスタブTPP」、「アデカスタブC」、「アデカスタブ517」、「アデカスタブ3010」、「アデカスタブPEP-24G」、「アデカスタブPEP-4C」、「アデカスタブPEP-36」、「アデカスタブPEP-45」、「アデカスタブ1178」、「アデカスタブ135A」、「アデカスタブ1178」、「アデカスタブPEP-8」、「アデカスタブ329K」、「アデカスタブ260」、「アデカスタブ522A」、「アデカスタブ1500」（以上、（株）ADEKA製）商品名「GSY-P101」、「Chellex-OL」、「Chellex-PC」（以上、堺化学工業（株）製）；商品名「JP302」、「JP304」、「JPM313」、「JP308」、「JPP100」、「JPS312」、「JP318E」、「JP333E」、「JPH1200」、「HBP」（以上、城北化学工業（株）製）；商品名「SANKO-HCA」（三光（株）製）などが挙げられる。

[0073] 中でも、酸化防止剤（C）としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤が好ましく、特に、フェノール系酸化防止剤とリン系酸化防止剤とを併用することが好ましい。

[0074] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における酸化防止剤（C）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、脂環式エポキシ化合物（A）100重量部に対して、0.1～5重量部が好ましく、より好ましくは0.2～3重量部である。酸化防止剤（C）の含有量が0.1重量部未満であると、硬化物の耐熱性、耐光性が不十分となる場合がある。一方、酸化防止剤（C）の含有量が5重量部を超えると、硬化物が着色しやすく、光半導体装置の光度が低下しやすくなる場合がある。

[0075] [紫外線吸収剤（D）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、紫外線吸収剤（D）を含んでいてもよい。紫外線吸収剤（D）としては、公知乃至慣用の紫外線吸収剤を使用

することができ、特に限定されないが、例えば、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤（ベンゾフェノン系化合物）、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤（ベンゾトリアゾール系化合物）、ベンゾエート系紫外線吸収剤（ベンゾエート系化合物）などが挙げられる。

[0076] 上記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、例えば、2-ヒドロキシ-4-n-オクトキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノンなどが挙げられる。

[0077] 上記ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-アミル-5'-イソブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-イソブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-イソブチル-5'-プロピルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-5'-(1, 1, 3, 3-テトラメチル)フェニル]ベンゾトリアゾールなどが挙げられる。

[0078] 上記ベンゾエート系紫外線吸収剤としては、例えば、2, 4-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾエート、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾエート、2, 4-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエートなどが挙げられる。

[0079] なお、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物において紫外線吸収剤(D)は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。また、紫外線吸収剤(D)としては、例えば、商品名「V i o s o r b 1 3 0」(ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、共同薬品(株)製)

などの市販品を使用することもできる。

[0080] 中でも、紫外線吸収剤（D）としては、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が好ましい。

[0081] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における紫外線吸収剤（D）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、脂環式エポキシ化合物（A）100重量部に対して、0.1～5重量部が好ましく、より好ましくは0.2～3重量部である。紫外線吸収剤（D）の含有量が0.1重量部未満であると、硬化物の耐光性が不十分となる場合がある。一方、紫外線吸収剤（D）の含有量が5重量部を超えると、硬化物が着色しやすく、光半導体装置の光度が低下し易くなる場合がある。

[0082] [硬化剤（E）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、硬化剤（E）を含んでいてもよい。硬化剤（E）は、エポキシ基を有する化合物を硬化させる働きを有する化合物である。硬化剤（E）としては、エポキシ樹脂用硬化剤として公知乃至慣用の硬化剤を使用することができる。硬化剤（E）としては、中でも、25℃で液状の酸無水物が好ましく、例えば、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、ドデセニル無水コハク酸、メチルエンドメチレンテトラヒドロ無水フタル酸などが挙げられる。また、例えば、無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルシクロヘキセンジカルボン酸無水物などの常温（約25℃）で固体状の酸無水物についても、常温（約25℃）で液状の酸無水物に溶解させて液状の混合物とすることで、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物における硬化剤（E）として好ましく使用することができる。なお、硬化剤（E）は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。上述のように、硬化剤（E）としては、硬化物の耐熱性、耐光性、耐クラック性の観点で、飽和単環炭化水素ジカルボン酸の無水物（環にアルキル基等の置換基が結合したものも含む）が好ましい。

[0083] また、本発明においては、硬化剤（E）として、商品名「リカシッド M

H-700」、「リカシッド MH-700F」（以上、新日本理化（株）製）；商品名「HN-5500」（日立化成工業（株）製）等の市販品を使用することもできる。

[0084] 硬化剤（E）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量100重量部に対して、50～200重量部が好ましく、より好ましくは100～145重量部である。より具体的には、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれる全てのエポキシ基を有する化合物におけるエポキシ基1当量当たり、0.5～1.5当量となる割合で使用する事が好ましい。硬化剤（E）の含有量が50重量部未満であると、硬化が不十分となり、硬化物の強靱性が低下する傾向がある。一方、硬化剤（E）の含有量が200重量部を超えると、硬化物が着色して色相が悪化する場合がある。なお、硬化剤（E）として2種以上を使用する場合には、これらの硬化剤（E）の総量が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0085] [硬化促進剤（F）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、硬化促進剤（F）を含んでいてもよい。硬化促進剤（F）は、エポキシ基を有する化合物が硬化剤（E）により硬化する際に、硬化速度を促進する機能を有する化合物である。硬化促進剤（F）としては、公知乃至慣用の硬化促進剤を使用することができ、例えば、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7（DBU）又はその塩（例えば、フェノール塩、オクチル酸塩、p-トルエンスルホン酸塩、ギ酸塩、テトラフェニルボレート塩など）；1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]ノネン-5（DBN）又はその塩（例えば、フェノール塩、オクチル酸塩、p-トルエンスルホン酸塩、ギ酸塩、テトラフェニルボレート塩など）；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、N,N-ジメチルシクロヘキシルアミンなどの3級アミン；2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾールなどのイミダゾール；リン酸エステル、トリフェ

ニルホスフィンなどのホスフィン類；テトラフェニルホスホニウムテトラ（*p*-トリル）ボレートなどのホスホニウム化合物；オクチル酸亜鉛やオクチル酸スズなどの有機金属塩；金属キレートなどが挙げられる。硬化促進剤（F）は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0086] また、本発明においては、硬化促進剤（F）として、商品名「U-CAT SA 506」、「U-CAT SA 102」、「U-CAT 5003」、「U-CAT 18X」、「12XD」（開発品）（以上、サンアプロ（株）製）；商品名「TPP-K」、「TPP-MK」（以上、北興化学工業（株）製）；商品名「PX-4ET」（日本化学工業（株）製）などの市販品を使用することもできる。

[0087] 硬化促進剤（F）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量（100重量部）に対して、0.01～5重量部が好ましく、より好ましくは0.03～3重量部、さらに好ましくは0.03～2重量部である。硬化促進剤（F）の含有量が0.01重量部未満であると、硬化促進効果が不十分となる場合がある。一方、硬化促進剤（F）の含有量が5重量部を超えると、硬化物が着色して色相が悪化する場合がある。

[0088] [硬化触媒（G）]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、さらに（例えば、硬化剤（E）及び硬化促進剤（F）の代わりに）、硬化触媒（G）を含んでいてもよい。硬化触媒（G）は、エポキシ基を有する化合物の硬化反応を開始及び／又は促進する機能を有する化合物である。硬化触媒（G）としては、特に限定されないが、紫外線照射又は加熱処理を施すことによりカチオン種を発生して、重合を開始させるカチオン触媒（カチオン重合開始剤）が挙げられる。なお、硬化触媒（G）は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0089] 紫外線照射によりカチオン種を発生するカチオン触媒としては、例えば、ヘキサフルオロアンチモネート塩、ペンタフルオロヒドロキシアニチモネー

ト塩、ヘキサフルオロホスフェート塩、ヘキサフルオロアルゼネート塩などが挙げられる。上記カチオン触媒としては、例えば、商品名「UVACURE 1590」（ダイセル・サイテック（株）製）；商品名「CD-1010」、「CD-1011」、「CD-1012」（以上、米国サートマー製）；商品名「イルガキュア264」（BASF製）；商品名「CIT-1682」（日本曹達（株）製）などの市販品を好ましく使用することもできる。

[0090] 加熱処理を施すことによりカチオン種を発生するカチオン触媒としては、例えば、アリールジアゾニウム塩、アリールヨードニウム塩、アリールスルホニウム塩、アレンーイオン錯体などが挙げられ、商品名「PP-33」、「CP-66」、「CP-77」（以上（株）ADEKA製）；商品名「FC-509」（スリーエム製）；商品名「UVE1014」（G. E. 製）；商品名「サンエイド S1-60L」、「サンエイド S1-80L」、「サンエイド S1-100L」、「サンエイド S1-110L」、「サンエイド S1-150L」（以上、三新化学工業（株）製）；商品名「CG-24-61」（BASF製）などの市販品を好ましく使用することができる。さらに、アルミニウムやチタンなどの金属とアセト酢酸若しくはジケトン類とのキレート化合物とトリフェニルシラノール等のシラノールとの化合物、又は、アルミニウムやチタンなどの金属とアセト酢酸若しくはジケトン類とのキレート化合物とビスフェノールS等のフェノール類との化合物であってもよい。

[0091] 硬化触媒（G）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、硬化性エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ基を有する化合物の全量100重量部に対して、0.01～15重量部が好ましく、より好ましくは0.01～12重量部、さらに好ましくは0.05～10重量部、特に好ましくは0.05～8重量部である。硬化触媒（G）を上記範囲内で使用することにより、耐熱性、耐光性、透明性に優れた硬化物を得ることができる。

[0092] [添加剤]

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、上記以外にも、本発明の効果を損

なわない範囲内で各種添加剤を含んでいてもよい。上記添加剤として、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリンなどの水酸基を有する化合物を含有させると、反応を緩やかに進行させることができる。その他にも、粘度や透明性を損なわない範囲内で、シリコーン系やフッ素系消泡剤、レベリング剤、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシランや3-メルカプトプロピルトリメトキシシランなどのシランカップリング剤、界面活性剤、シリカ、アルミナなどの無機充填剤、難燃剤、着色剤、イオン吸着体、顔料、蛍光体（例えば、YAG系の蛍光体微粒子、シリケート系蛍光体微粒子などの無機蛍光体微粒子など）、離型剤などの慣用の添加剤を使用することができる。

[0093] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、特に限定されないが、上記の各成分を、必要に応じて加熱した状態で攪拌・混合することにより調製することができる。なお、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、各成分があらかじめ混合されたものをそのまま使用する1液系の組成物として使用することもできるし、例えば、別々に保管しておいた2以上の成分（各成分は2以上の成分の混合物であってもよい）を使用前に所定の割合で混合して使用する多液系（例えば、2液系）の組成物として使用することもできる。上記攪拌・混合の方法は、特に限定されず、例えば、ディゾルバー、ホモジナイザーなどの各種ミキサー、ニーダー、ロール、ビーズミル、自公転式攪拌装置などの公知乃至慣用の攪拌・混合手段を使用できる。また、攪拌・混合後、真空下にて脱泡してもよい。

[0094] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物の25℃における粘度は、特に限定されないが、100～50000 mPa・sが好ましく、より好ましくは2000～30000 mPa・s、さらに好ましくは300～20000 mPa・sである。25℃における粘度が100 mPa・s未満であると、注型や塗工する際の作業性が低下したり、硬化物に注型不良や塗工不良に由来する不具合が生じやすくなる傾向がある。一方、25℃における粘度が50000 mPa・sを超えると、注型や塗工する際の作業性が低下したり、硬化物に

注型不良や塗工不良に由来する不具合が生じやすくなる傾向がある。なお、硬化性エポキシ樹脂組成物の25℃における粘度は、例えば、デジタル粘度計（型番「DVU-E11型」、（株）トキメック製）を用いて、ローター：標準1°34'×R24、温度：25℃、回転数：0.5～10rpmの条件で測定することができる。

[0095] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物の波長450nmの光の光線透過率〔厚み10mm換算〕は、特に限定されないが、80%以上（例えば、80%以上、100%未満）が好ましく、より好ましくは82%以上である。全光線透過率が80%未満であると、硬化物の透明性が低くなる場合がある。なお、上記光線透過率は、例えば、分光光度計（例えば、商品名「UV-2400」、（株）島津製作所製））を使用して測定することができる。

[0096] <硬化物>

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化させることにより、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物（「本発明の硬化物」と称する場合がある）を得ることができる。硬化の際の加熱温度（硬化温度）は、特に限定されないが、45～200℃が好ましく、より好ましくは100～190℃、さらに好ましくは100～180℃である。また、硬化の際に加熱する時間（硬化時間）は、特に限定されないが、30～600分が好ましく、より好ましくは45～540分、さらに好ましくは60～480分である。硬化温度と硬化時間が上記範囲の下限值より低い場合は硬化が不十分となり、逆に上記範囲の上限値より高い場合は樹脂成分の分解が起きる場合があるので、いずれも好ましくない。硬化条件は種々の条件に依存するが、例えば、硬化温度を高くした場合は硬化時間を短く、硬化温度を低くした場合は硬化時間を長くする等により、適宜調整することができる。

[0097] 本発明の硬化物の波長450nmの光の光線透過率〔厚み3mm換算〕は、特に限定されないが、80%以上（例えば、80%以上、100%未満）が好ましく、より好ましくは82%以上である。全光線透過率が80%未満であると、硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体装置における光半導体素子

の封止剤やダイアタッチペースト剤などとして使用した場合に、光半導体装置から発せられる光度が低くなる場合がある。なお、上記光線透過率は、例えば、分光光度計（例えば、商品名「UV-2400」、（株）島津製作所製）を使用して測定することができる。

[0098] ＜光半導体封止用樹脂組成物＞

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、特に、光半導体装置における光半導体（光半導体素子）を封止するための樹脂組成物、即ち、光半導体封止用樹脂組成物（光半導体素子の封止剤）として好ましく使用できる。本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体封止用樹脂組成物として用いることにより、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置が得られる。

[0099] ＜接着剤用樹脂組成物＞

また、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、特に、部材等を被着体に接着・固定するための樹脂組成物、即ち、接着剤用樹脂組成物（接着剤）としても好ましく使用できる。特に、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、光半導体装置において光半導体素子を電極（金属）に接着及び固定するためのダイアタッチペースト剤（ダイボンド剤）（例えば、図1に示す光半導体装置における接着材（ダイアタッチペースト材）105を構成するための接着剤）として好ましく使用できる。本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物をダイアタッチペースト剤として用いることにより、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物により光半導体素子が電極（金属）に接着された光半導体装置が得られる。本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物（接着剤用樹脂組成物）は、ダイアタッチペースト剤以外にも、例えば、カメラ等のレンズを被着体に固定したり、レンズ同士を貼り合わせたりするためのレンズ用接着剤；光学フィルム（例えば、偏光子、偏光子保護フィルム、位相差フィルムなど）を被着体に固定したり、光学フィルム同士又は光学フィルムとその他のフィルムとを貼り合わせたりするための光学フィルム用接着剤などの、特に、優れた透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性を奏することが

要求される各種用途に使用することができる。

[0100] <光半導体装置>

本発明の光半導体装置は、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物（光半導体封止用樹脂組成物）の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置、又は、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物（接着剤用樹脂組成物）の硬化物により光半導体素子が電極（金属）に接着された光半導体装置である。本発明の光半導体装置は、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物（接着剤用樹脂組成物）の硬化物により光半導体素子が電極（金属）に接着され、なおかつ、当該光半導体素子が本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物（光半導体封止用樹脂組成物）の硬化物により封止された光半導体装置であってもよい。従って、本発明の光半導体装置は、光取り出し効率が高く、高温における通電特性、耐リフロー性、及び耐熱衝撃性に優れ、高い品質及び耐久性を有する。

[0101] 本発明の光半導体装置における光半導体素子の封止は、公知乃至慣用の方法により実施でき、特に限定されないが、例えば、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を所定の成形型内に注入し、所定の条件で加熱硬化して行うことができる。これにより、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置が得られる。硬化温度と硬化時間は、硬化物の調製時と同様の範囲で適宜設定することができる。一方、本発明の光半導体装置における電極（金属）への光半導体素子の接着は、公知乃至慣用の方法により実施でき、特に限定されないが、例えば、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体装置における電極（金属）の所定の位置に塗工（塗布）し、該硬化性エポキシ樹脂組成物上に光半導体素子を載置した後、所定の条件で加熱硬化することによって行うことができる。これにより、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が電極（金属）に接着された光半導体装置が得られる。なお、本発明の光半導体装置を得るにあたり、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を注入又は塗工する方法としては、公知乃至慣用の方法を利用することができ、特に限定されないが、例えば、ディスペンサー、プリンター、スピンコーター、バーコーターな

どを用いた方法などが挙げられる。

- [0102] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、上述の光半導体素子の封止用途や接着剤用途に限定されず、例えば、電気絶縁材、積層板、コーティング、インク、塗料、シーラント、レジスト、複合材料、透明基材、透明シート、透明フィルム、光学素子、光学レンズ、光学部材、光造形、電子ペーパー、タッチパネル、太陽電池基板、光導波路、導光板、ホログラフィックメモリなどの各種用途に使用することができる。

実施例

- [0103] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。なお、表1～3における「－」は、当該成分の配合を行わなかったことを意味する。

[0104] 製造例1

(アクリル樹脂の製造)

攪拌装置、温度計、窒素ガス導入管、及び還流冷却管を備えた300ml反応容器に、酢酸ブチル100重量部を仕込み、窒素ガス雰囲気中で95℃まで昇温し、MMA（メチルメタクリレート）40重量部、スチレン30重量部、GMA（グリシジルメタクリレート）30重量部、AIBN（2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル）1重量部、及びMEHQ 0.2重量部を加えて、95℃で45分反応させた。その後、120℃で45分保温した後、冷却して、メタノールで再沈殿してろ取、その後乾燥し、アクリル樹脂（B1）を得た。

[0105] 製造例2～5

(アクリル樹脂の製造)

使用する単量体の種類及び量を表1に示すように変更したこと以外は製造例1と同様にして、アクリル樹脂（B2）～（B5）を製造した。

[0106]

[表1]

(表 1)

		製造例1 アクリル樹脂(B1)	製造例2 アクリル樹脂(B2)	製造例3 アクリル樹脂(B3)	製造例4 アクリル樹脂(B4)	製造例5 アクリル樹脂(B5)
単量体	ST	30	20	15	50	—
	GMA	30	30	30	—	10
	MMA	40	30	30	50	70
	BMA	—	20	20	—	20
	BA	—	—	5	—	—
重合開始剤	AIBN	1	1	1	1	1
重合禁止剤	MEHQ	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
アクリル樹脂のMw		9800	6400	37000	8000	12000
アクリル樹脂のMn		4400	2800	16000	3600	5500

[0107] 製造例 6

(硬化剤組成物の製造)

表2に示す配合割合(単位:重量部)で、商品名「リカシッド MH-700」(硬化剤、新日本理化(株)製)、商品名「U-CAT 18X」(硬化促進剤、サンアプロ(株)製)、及びエチレングリコール(添加剤、和光純薬工業(株)製)を、自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して硬化剤組成物(「K剤」と称する場合がある)を得た。

[0108] 実施例 1

まず、表2に示す配合割合(単位:重量部)で、商品名「セロキサイド2021P」(脂環式エポキシ化合物、(株)ダイセル製)、及び製造例1で得られたアクリル樹脂(B1)を、自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して、脂環式エポキシ化合物とアクリル樹脂の混合物を作製した。

次に、表2に示す配合割合(単位:重量部)となるように、上記で得た混合物と、製造例6で得られた硬化剤組成物とを自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して、硬化性エポキシ樹脂組成物を得た。

さらに、上記で得た硬化性エポキシ樹脂組成物を図1に示す光半導体のリードフレーム(InGaN素子、3.5mm×2.8mm)に注型した後、120℃のオーブン(樹脂硬化オーブン)で5時間加熱することで、上記硬

化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置を得た。なお、図1において、100はリフレクター（光反射用樹脂組成物）、101は金属配線（電極）、102は光半導体素子、103はボンディングワイヤ、104は硬化物（封止材）、105は接着材（ダイアタッチペースト材）を示す。

[0109] 実施例2～8、比較例1～5

硬化性エポキシ樹脂組成物の組成を表2に示す組成に変更したこと以外は実施例1と同様にして、硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。なお、酸化防止剤及び／又は紫外線吸収剤を使用する場合、これらの成分については、脂環式エポキシ化合物及びアクリル樹脂の混合物（又は脂環式エポキシ化合物）と混合する際に、表2に示す配合割合（単位：重量部）となるように、自公転式攪拌装置（商品名「あわとり練太郎AR-250」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して作製した。なお、酸化防止剤を使用する場合は、80℃で1時間攪拌して酸化防止剤を溶解して行い、酸化防止剤及び紫外線吸収剤を使用する場合は、80℃で1時間攪拌して酸化防止剤を溶解し、更に50℃で1時間攪拌して紫外線吸収剤を溶解して行った。次に、上記で得た混合物と、製造例6で得られた硬化剤組成物とを自公転式攪拌装置（商品名「あわとり練太郎AR-250」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して、硬化性エポキシ樹脂組成物を得た。

また、実施例1と同様にして光半導体装置を作製した。

[0110] 実施例9

まず、表3に示す配合割合（単位：重量部）で、商品名「セロキサイド2021P」（脂環式エポキシ化合物、（株）ダイセル製）、及び製造例1で得られたアクリル樹脂（B1）を、自公転式攪拌装置（商品名「あわとり練太郎AR-250」、（株）シンキー製）を使用して均一に混合し、脱泡して、脂環式エポキシ化合物とアクリル樹脂の混合物を作製した。

次に、表3に示す配合割合（単位：重量部）となるように、上記で得た混合物と、商品名「サンエイド S1-100L」（硬化触媒、三新化学工業

(株)製)とを自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して、硬化性エポキシ樹脂組成物を得た。

さらに、上記で得た硬化性エポキシ樹脂組成物を図1に示す光半導体のリードフレーム(InGaN素子、3.5mm×2.8mm)に注型した後、120℃のオーブン(樹脂硬化オーブン)で5時間加熱することで、上記硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置を得た。

[0111] 実施例10～16、比較例6～10

硬化性エポキシ樹脂組成物の組成を表3に示す組成に変更したこと以外は実施例9と同様にして、硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。なお、酸化防止剤及び／又は紫外線吸収剤を使用する場合、これらの成分については、脂環式エポキシ化合物及びアクリル樹脂の混合物(又は脂環式エポキシ化合物)と硬化触媒とを混合する際に、表3に示す配合割合(単位：重量部)となるように、自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して作製した。なお、酸化防止剤を使用する場合は、80℃で1時間攪拌して酸化防止剤を溶解して行い、酸化防止剤及び紫外線吸収剤を使用する場合は、80℃で1時間攪拌して酸化防止剤を溶解し、更に50℃で1時間攪拌して紫外線吸収剤を溶解して行った。次に、上記で得た混合物と、商品名「サンエイドSI-100L」(硬化触媒、三新化学工業(株)製)とを自公転式攪拌装置(商品名「あわとり練太郎AR-250」、(株)シンキー製)を使用して均一に混合し、脱泡して、硬化性エポキシ樹脂組成物を得た。

また、実施例9と同様にして光半導体装置を作製した。

[0112] <評価>

実施例及び比較例で得られた硬化性エポキシ樹脂組成物及び光半導体装置について、下記の評価試験を実施した。

[0113] [初期の光線透過率]

実施例及び比較例で得られた硬化性エポキシ樹脂組成物を型に充填し、120℃のオーブン（樹脂硬化オーブン）で5時間加熱することで、厚みが3mmの硬化物を得た。得られた硬化物の波長450nmの光の光線透過率（厚み方向）を、分光光度計（商品名「UV-2400」、（株）島津製作所製）を用いて測定した（「初期の光線透過率」とする）。結果を表2、3の「初期の光線透過率」の欄に示す。

[0114] [通電試験]

実施例及び比較例で得られた光半導体装置の全光束を全光束測定機を用いて測定し、これを「0時間の全光束」とした。さらに、85℃の恒温槽内で100時間、光半導体装置に20mAの電流を流した後の全光束を測定し、これを「100時間後の全光束」とした。そして、次式から光度保持率を算出した。結果を表2、3の「光度保持率 [%]」の欄に示す。

{光度保持率 (%)}

$$= \{100\text{時間後の全光束 (lm)}\} / \{0\text{時間の全光束 (lm)}\} \times 100$$

[0115] [はんだ耐熱性試験]

実施例及び比較例で得られた光半導体装置（各硬化性エポキシ樹脂組成物につき2個ずつ用いた）を、30℃、70%RHの条件下で192時間静置して吸湿処理した。次いで、上記光半導体装置をリフロー炉に入れ、下記加熱条件にて加熱処理した。その後、上記光半導体装置を室温環境下に取り出して放冷した後、再度リフロー炉に入れて同条件で加熱処理した。即ち、当該はんだ耐熱性試験においては、光半導体装置に対して下記加熱条件による熱履歴を二度与えた。

[加熱条件（光半導体装置の表面温度基準）]

(1) 予備加熱：150～190℃で60～120秒

(2) 予備加熱後の本加熱：217℃以上で60～150秒、最高温度260℃

但し、予備加熱から本加熱に移行する際の昇温速度は最大で3℃/秒に制

御した。

図2には、リフロー炉による加熱の際の光半導体装置の表面温度プロファイル（二度の加熱処理のうち一方の加熱処理における温度プロファイル）の一例を示す。

その後、デジタルマイクロスコープ（商品名「VHX-900」、（株）キーエンス製）を使用して光半導体装置を観察し、硬化物に長さが90 μ m以上のクラックが発生したか否かを評価した。光半導体装置2個のうち、硬化物に長さが90 μ m以上のクラックが発生した光半導体装置の個数を表2、3の「はんだ耐熱性試験〔個数〕」の欄に示した。

[0116] [熱衝撃試験]

実施例及び比較例で得られた光半導体装置（各硬化性エポキシ樹脂組成物につき2個ずつ用いた）に対し、-40℃の雰囲気下に30分曝露し、続いて、120℃の雰囲気下に30分曝露することを1サイクルとした熱衝撃を、熱衝撃試験機を用いて200サイクル分与えた。その後、光半導体装置における硬化物に生じたクラックの長さを、デジタルマイクロスコープ（商品名「VHX-900」、（株）キーエンス製）を使用して観察し、光半導体装置2個のうち硬化物に長さが90 μ m以上のクラックが発生した光半導体装置の個数を計測した。結果を表2、3の「熱衝撃試験〔個数〕」の欄に示す。

[0117] [総合判定1]

各試験の結果、下記（1-1）～（1-4）をいずれも満たすものを○（良好）と判定した。一方、下記（1-1）～（1-4）のいずれかを満たさない場合には×（不良）と判定した。

（1-1）初期の光線透過率が80%以上

（1-2）通電試験：光度保持率が80%以上

（1-3）はんだ耐熱性試験：硬化物に長さが90 μ m以上のクラックが発生した光半導体装置の個数が0個

（1-4）熱衝撃試験：硬化物に長さが90 μ m以上のクラックが発生した

光半導体装置の個数が0個

結果を表2、3の「総合判定1」の欄に示す。なお、当該総合判定1は、硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体封止用樹脂組成物（光半導体素子の封止剤）として使用する場合の適否を判定するものである。

[0118] [120℃エージング後の光線透過率]

上記で初期の光線透過率を測定した硬化物（厚み：3mm）をオーブンに入れ、120℃で200時間エージングした。その後、エージング後の硬化物について、波長450nmの光の光線透過率（厚み方向）を、分光光度計（商品名「UV-2400」、（株）島津製作所製）を用いて測定した（「エージング後の光線透過率」とする）。結果を表2、3の「120℃エージング後の光線透過率 [%]」の欄に示す。

[0119] [ダイシエア試験]

AgメッキしたCu基板上に、接着面積が1.25mm×1.25mmになるように硬化性エポキシ樹脂組成物を塗布し、1.25mm角のSiチップを載せた。次に、これを150℃で2時間加熱し、硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化させて、テストサンプルを作製した。上記テストサンプルについて、ダイシエアテスター（商品名「DAGE 4000」、（株）アークテック製）を用いて、300μm/秒の速度で、25℃でのダイシエア強度を評価した。結果を表2、3の「ダイシエア試験」の欄に示す。

[0120] [総合判定2]

各試験の結果、下記（2-1）～（2-3）をいずれも満たすものを○（良好）と判定した。一方、下記（2-1）～（2-3）のいずれかを満たさない場合には×（不良）と判定した。

（2-1）初期の光線透過率が80%以上

（2-2）120℃エージング後の光線透過率が80%以上

（2-3）ダイシエア試験：ダイシエア強度が20Nを超える値

結果を表2、3の「総合判定2」の欄に示す。なお、当該総合判定2は、硬化性エポキシ樹脂組成物を接着剤用樹脂組成物（接着剤、特に、ダイアタ

[0122] [表3]

(表 3)		実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10
硬化性エポキシ樹脂組成物	CEL202IP	90	90	90	80	70	80	80	80	90	70	90	70	100
	YD-128	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	アクル重合物	10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B1	-	10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	B3	-	-	10	20	30	20	20	20	-	-	-	-	-
	B4	-	-	-	-	-	-	-	-	10	30	-	-	-
	B5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	10	30	-
	酸化防止剤	-	-	-	-	-	0.5	0.5	0.5	-	-	-	-	-
	AO-60	-	-	-	-	-	-	-	0.5	-	-	-	-	-
硬化物 (光半導体装置)	HP-10	-	-	-	-	-	-	-	0.5	-	-	-	-	-
	紫外線吸収剤	-	-	-	-	-	-	0.5	0.5	-	-	-	-	-
	Visorb130	-	-	-	-	-	-	-	0.5	-	-	-	-	-
	硬化触媒	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
	サンイデ SF-100L	87.6	86.8	85.6	86.9	87.1	87.4	86.9	86.4	82.0	74.2	81.0	70.5	88.8
	初期の光線透過率[%]	83	82	83	84	85	86	87	83	71	68	70	64	76
	光線保持率[%]	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2
	はんだ面熱性試験[個数]	0	0	0	0	0	0	0	0	2	2	2	2	2
	熱衝撃試験[個数]	0	0	0	0	0	0	0	0	2	2	2	2	2
	総合判定1	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×
硬化物 (接着剤)	初期の光線透過率[%]	87.6	86.8	85.6	86.9	87.1	87.4	86.9	86.4	82.0	74.2	81.0	70.5	88.8
	120℃エーシング後の光線透過率[%]	82.3	83.1	82.7	83.6	84.9	85.6	84.2	84.5	72.8	62.5	70.1	59.8	75.6
	ダイマ7試験[N]	42	43	45	46	50	48	43	45	29	28	21	22	15
	総合判定2	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×

[0123] なお、本実施例で使用した成分は、以下の通りである。

(アクリル樹脂の単量体)

S T : スチレン

G M A : グリシジルメタクリレート

M M A : メチルメタクリレート

B M A : ブチルメタクリレート

B A : ブチルアクリレート

(重合開始剤)

A I B N : アゾビスイソブチロニトリル

(重合禁止剤)

M E H Q : パラメトキシフェノール

(エポキシ樹脂)

C E L 2 0 2 1 P (セロキサイド 2 0 2 1 P) : 3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル (3, 4-エポキシ) シクロヘキサンカルボキシレート、(株) ダイセル製

Y D - 1 2 8 : ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、新日鐵化学 (株) 製

(酸化防止剤)

A O - 6 0 (アデカスタブ A O - 6 0) : フェノール系酸化防止剤、(株) A D E K A 製

H P - 1 0 (アデカスタブ H P - 1 0) : リン系酸化防止剤、(株) A D E K A 製

(紫外線吸収剤)

V i o s o r b 1 3 0 : ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、共同薬品 (株) 製

(硬化剤組成物)

M H - 7 0 0 (リカシッド M H - 7 0 0) : 4-メチルヘキサヒドロ無水フタル酸/ヘキサヒドロ無水フタル酸 = 7 0 / 3 0、新日本理化 (株) 製

U - C A T 1 8 X : 硬化促進剤、サンアプロ (株) 製

エチレングリコール : 和光純薬工業 (株) 製

(硬化触媒)

サンエイド S I - 1 0 0 L : 硬化触媒、三新化学工業 (株) 製

[0124] 試験機器

・樹脂硬化オーブン

エスベック (株) 製 G P H H - 2 0 1

・恒温槽

エスベック (株) 製 小型高温チャンバー S T - 1 2 0 B 1

・全光束測定機

オプトロニックラボラトリーズ社製 マルチ分光放射測定システム O

L 7 7 1

・熱衝撃試験機

エスベック (株) 製 小型冷熱衝撃装置 T S E - 1 1 - A

・リフロー炉

日本アントム (株) 製、U N I - 5 0 1 6 F

産業状の利用可能性

[0125] 本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は上記構成を有するため、該樹脂組成物を硬化させることにより、透明性、耐熱性、耐熱衝撃性、及び接着性に優れた硬化物を形成することができる。このため、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体素子の封止剤として用いることにより、光半導体装置の高温における通電特性、耐リフロー性、及び耐熱衝撃性を向上させることができる。また、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を光半導体装置におけるダイアタッチペースト剤として用いることにより、光半導体装置の光取り出し効率、耐熱衝撃性、及び耐熱性を向上させることができる。従って、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物を用いることにより、耐久性及び品質の高い光半導体装置を得ることができる。

符号の説明

[0126] 1 0 0 : リフレクター (光反射用樹脂組成物)

1 0 1 : 金属配線 (電極)

1 0 2 : 光半導体素子

1 0 3 : ボンディングワイヤ

1 0 4 : 硬化物（封止材）

1 0 5 : 接着材（ダイアタッチペースト材）

請求の範囲

[請求項1] 脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）とを含む組成物であって、

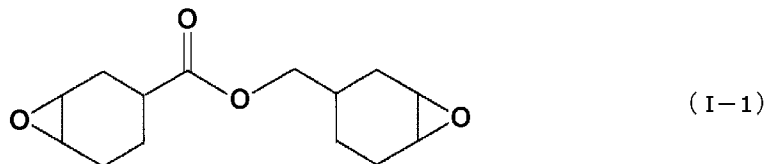
アクリル樹脂（B）が、アクリル系単量体及びスチレン系単量体を必須の単量体成分として含有し、なおかつ側鎖にエポキシ基を有する重合体であることを特徴とする硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項2] 脂環式エポキシ化合物（A）とアクリル樹脂（B）の合計量（100重量％）に対する脂環式エポキシ化合物（A）の含有量が65～95重量％、アクリル樹脂（B）の含有量が5～35重量％である請求項1に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項3] 脂環式エポキシ化合物（A）が、シクロヘキセンオキシド基を有する化合物である請求項1又は2に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項4] 脂環式エポキシ化合物（A）が、下記式（I-1）

[化1]



で表される化合物である請求項1～3のいずれか1項に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項5] さらに、酸化防止剤（C）及び紫外線吸収剤（D）からなる群より選択された少なくとも1種を含む請求項1～4のいずれか1項に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項6] さらに、硬化剤（E）及び硬化促進剤（F）、又は、硬化触媒（G）を含む請求項1～5のいずれか1項に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化させることにより得られる硬化物。

[請求項8] 光半導体封止用樹脂組成物である請求項1～6のいずれか1項に記

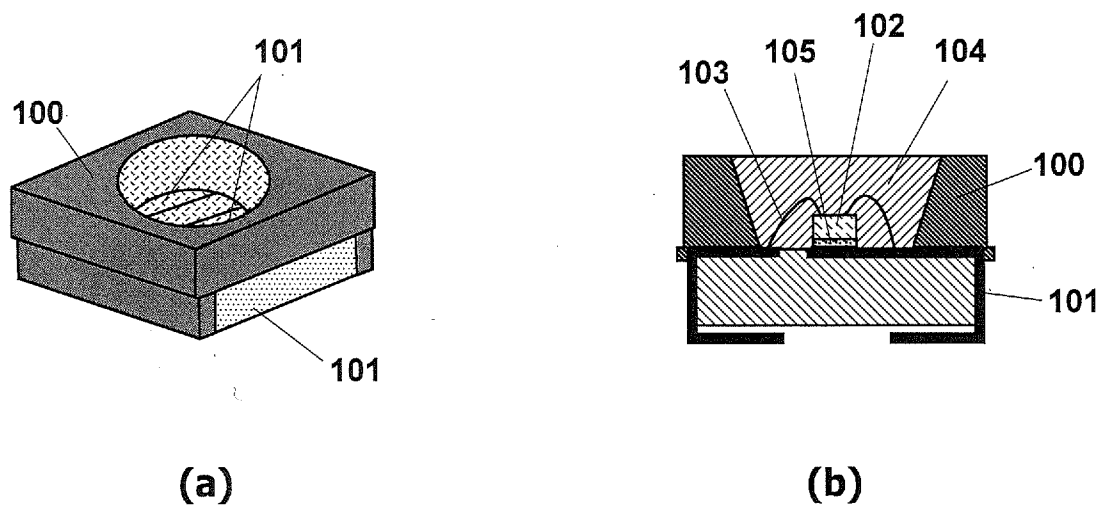
載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項9] 請求項8に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が封止された光半導体装置。

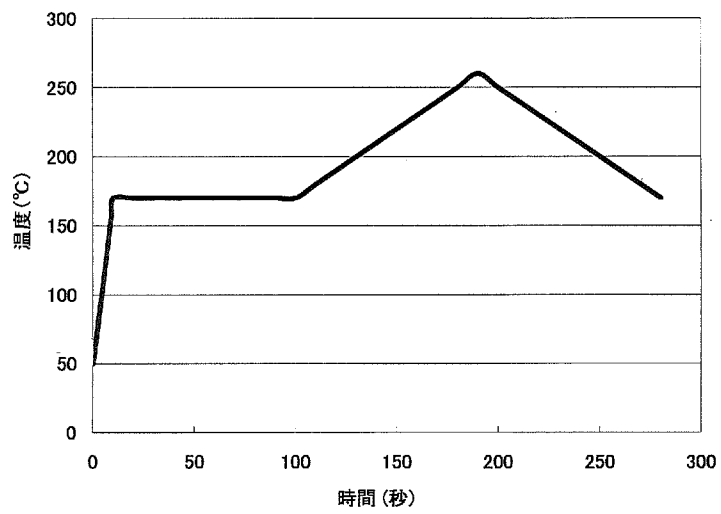
[請求項10] 接着剤用樹脂組成物である請求項1～6のいずれか1項に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

[請求項11] 請求項10に記載の硬化性エポキシ樹脂組成物の硬化物により光半導体素子が電極に接着された光半導体装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/084278

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L63/00(2006.01)i, C08G59/24(2006.01)i, C08L33/14(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J133/14(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i, H01L33/56(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L63/00-63/10, C08G59/00-59/72, C08L33/00-33/26, C09J11/00-11/08, C09J133/00-133/26, C09J163/00-163/10, H01L23/29, H01L23/31, H01L33/56

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 5-125150 A (Daicel Chemical Industries, Ltd.), 21 May 1993 (21.05.1993), claims; paragraph [0001]; examples (Family: none)	1-4, 6-7, 10 5-6, 8-9, 11
X Y	JP 10-310681 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 24 November 1998 (24.11.1998), claims; paragraphs [0001], [0007] to [0013], [0020] to [0022] (Family: none)	1-4, 6-7, 10 5-6, 8-9, 11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
18 March, 2014 (18.03.14)

Date of mailing of the international search report
01 April, 2014 (01.04.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/084278

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/165413 A1 (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 06 December 2012 (06.12.2012), claims; paragraphs [0013] to [0015], [0066], [0074], [0076], [0079], [0082] to [0092] & TW 201302909 A	5-6, 8-9, 11
Y	WO 2012/086463 A1 (Daicel Corp.), 28 June 2012 (28.06.2012), claims; paragraphs [0023] to [0027], [0039] to [0048], [0069] to [0078], [0089] to [0090], [0092] & US 2013/0158167 A1 & CN 103068917 A	5-6, 8-9
A	WO 2013/002052 A1 (Daicel Corp.), 03 January 2013 (03.01.2013), claims; paragraphs [0021] to [0028], [0030] to [0033], [0066] to [0075], [0085] to [0086], [0089] & TW 201305270 A	1-11
A	JP 2007-231091 A (Nagase Chemtex Corp.), 13 September 2007 (13.09.2007), claims; paragraphs [0014] to [0024], [0029] (Family: none)	1-11
A	JP 2006-57078 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 02 March 2006 (02.03.2006), claims; paragraphs [0008] to [0009], [0015] to [0021] & US 2006/0020051 A1 & EP 1630215 A2 & CN 1724587 A	1-11
A	JP 1-158088 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 21 June 1989 (21.06.1989), claims (Family: none)	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L63/00(2006.01)i, C08G59/24(2006.01)i, C08L33/14(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i,
C09J133/14(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i,
H01L33/56(2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L63/00-63/10, C08G59/00-59/72, C08L33/00-33/26, C09J11/00-11/08, C09J133/00-133/26,
C09J163/00-163/10, H01L23/29, H01L23/31, H01L33/56

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 5-125150 A (ダイセル化学工業株式会社) 1993. 05. 21, 特許請求の範囲, 【0001】, 実施例 (ファミリーなし)	1-4, 6-7, 10 5-6, 8-9, 11
X Y	JP 10-310681 A (東洋インキ製造株式会社) 1998. 11. 24, 特許請求の範囲, 【0001】, 【0007】 - 【0013】, 【0020】 - 【0022】 (ファミリーなし)	1-4, 6-7, 10 5-6, 8-9, 11

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 8 . 0 3 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

0 1 . 0 4 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 のぞみ

4 J

4 5 1 3

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2012/165413 A1 (三菱レイヨン株式会社) 2012. 12. 06, 請求の範囲, [0013]-[0015], [0066], [0074], [0076], [0079], [0082]-[0092] & TW 201302909 A	5-6, 8-9, 11
Y	WO 2012/086463 A1 (株式会社ダイセル) 2012. 06. 28, 請求の範囲, [0023]-[0027], [0039]-[0048], [0069]-[0078], [0089]-[0090], [0092] & US 2013/0158167 A1 & CN 103068917 A	5-6, 8-9
A	WO 2013/002052 A1 (株式会社ダイセル) 2013. 01. 03, 請求の範囲, [0021]-[0028], [0030]-[0033], [0066]-[0075], [0085]-[0086], [0089] & TW 201305270 A	1-11
A	JP 2007-231091 A (ナガセケムテックス株式会社) 2007. 09. 13, 特許請求の範囲, 【0014】 - 【0024】 , 【0029】 (ファミリーなし)	1-11
A	JP 2006-57078 A (三井化学株式会社) 2006. 03. 02, 特許請求の範囲, 【0008】 - 【0009】 , 【0015】 - 【0021】 & US 2006/0020051 A1 & EP 1630215 A2 & CN 1724587 A	1-11
A	JP 1-158088 A (三井東圧化学株式会社) 1989. 06. 21, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-11