

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl.
C08G 59/40 (2006.01)



[12] 发明专利申请公布说明书

[21] 申请号 200780042863.3

[43] 公开日 2009 年 9 月 16 日

[11] 公开号 CN 101535367A

[22] 申请日 2007.12.3

[21] 申请号 200780042863.3

[30] 优先权

[32] 2006.12.4 [33] JP [31] 327219/2006

[86] 国际申请 PCT/JP2007/073736 2007.12.3

[87] 国际公布 WO2008/069333 英 2008.6.12

[85] 进入国家阶段日期 2009.5.19

[71] 申请人 陶氏康宁东丽株式会社

地址 日本东京

[72] 发明人 森田好次 植木浩

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利
商标事务所
代理人 张 钦

权利要求书 2 页 说明书 12 页

[54] 发明名称

可固化的环氧树脂组合物、其固化体及其用途

[57] 摘要

包含至少下述组分的可固化的环氧树脂组合物能生产高强度但低弹性模量(低应力)的固化体:

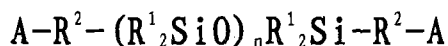
(I) 环氧树脂; (II) 用于环氧树脂的固化剂; (III) 在两个分子末端具有用下述平均单元式: $(XR_2^1SiO_{1/2})_a(SiO_{4/2})_b$ 表示的硅氧烷残基的二有机基硅氧烷(其中 R^1 是不含不饱和脂族键的单价烃基, 和 X 是单键、氢原子、用 R^1 表示的基团、含环氧基的单价有机基团、或烷氧基甲硅烷基烷基; 然而, 在一个分子中至少一个用 X 表示的基团是单键, 至少两个用 X 表示的基团是含环氧基的烷基; a 是正数; b 是正数; 和 a/b 是范围为 0.2 - 4 的数值), 和 (IV) 无机填料。

1. 一种可固化的环氧树脂组合物，它包含至少下述组分：

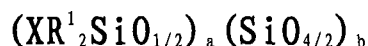
(I) 环氧树脂；

(II) 用于环氧树脂的固化剂；

(III) 用下述通式表示的二有机基硅氧烷，其中以每 100 重量份组分(I)和(II)之和计，其用量为 0.1-100 重量份：



其中 R^1 表示不含不饱和脂族键的相同或不同的未取代或取代的单价烃基； R^2 表示二价有机基团，A 表示用下述平均单元式表示的硅氧烷残基：



其中 R^1 与以上定义的相同，和 X 是单键、氢原子、用 R^1 表示的基团、含环氧基的单价有机基团、或烷氧基甲硅烷基烷基；然而，在一个分子中至少一个用 X 表示的基团是单键，至少两个用 X 表示的基团是含环氧基的烷基；a 是正数；b 是正数；和 a/b 是范围为 0.2-4 的数值，和其中 n 是等于或大于 1 的整数；和

(IV) 无机填料，其以至少 20wt% 的用量包含在组合物内。

2. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中组分(I)是含有联苯基的环氧树脂。

3. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中组分(II)是含有酚羟基的化合物。

4. 权利要求 3 的可固化的环氧树脂组合物，其中含有酚羟基的化合物是含联苯的酚醛树脂。

5. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中组分(II)的含量使得以每 1mol 在组分(I)内的环氧基计，组分(II)内的环氧基反应性官能团的含量范围为 0.5-2.5mol。

6. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中在组分(III)中，至少一个用 X 表示的基团是具有大于或等于 6 个碳原子的单价烃基。

7. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中在组分(III)中，至少一个用 X 表示的基团是烷氧基甲硅烷基烷基。

8. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中组分(IV)是球状无机填料。

9. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，其中组分(IV)是球状无定形二氧化硅。

10. 权利要求 1 的可固化的环氧树脂组合物，进一步提供有(V)用于环氧树脂的固化促进剂。

11. 权利要求 1 - 10 任何一项的可固化的环氧树脂组合物，其中可固化的环氧树脂组合物是半导体器件用密封剂。

12. 通过固化权利要求1 - 10任何一项的可固化的环氧树脂组合物获得的固化体。

可固化的环氧树脂组合物、其固化体及其用途

技术领域

[0001]本发明涉及可固化的环氧树脂组合物，以及该组合物的固化体和该组合物的用途。

背景技术

[0002]已知可固化的环氧树脂组合物用作密封和粘结电学或电子器件的试剂。然而，由于通过固化常规的可固化的环氧树脂组合物获得的固化体的特征在于弹性模量高和因此硬度高，因此与电学或电子器件结合使用这种固化体具有的问题是，例如产生高应力，所述高应力在固化时在热膨胀和收缩条件下生成。为了降低前述组合物的固化体的弹性模量，建议结合可固化的环氧树脂组合物与含环氧基的二有机基聚硅氧烷。在日本未审专利申请公布（下文称为“Kokai”）H06-56999 中公开的这种二有机基聚硅氧烷是在分子末端具有带环氧基的硅氧烷残基的物质。Kokai H06-56999 没有给出前述可固化的环氧树脂组合物内容的具体实例。然而，当所推荐的二有机基聚硅氧烷加入到可固化的环氧树脂组合物中时，通过这种添加提供的固化体的弹性模量的下降可能伴随着强度下降。

[0003]另一方面，在 Kokai 2006-257115 中提出了用可固化的硅氧烷组合物替代可固化的环氧树脂组合物，所述可固化的硅氧烷组合物包含在两个分子末端具有含环氧基的硅氧烷残基的二有机基聚硅氧烷和用于环氧树脂的固化剂。尽管这种可固化的硅氧烷组合物提供具有优良弹性模量和粘合性的固化体，但使用这一组合物仍然受到限制，因为该固化体的强度不足。

[0004]本发明的目的是提供可固化的环氧树脂组合物，其特征在于优良的可模塑性，和当固化时，它形成尽管弹性模量低（应力低）但强度高的固化体。另一目的是提供适合于用作半导体器件用密封剂的

可固化的环氧树脂组合物。本发明进一步的目的是提供兼有低弹性模量(低应力)与高强度的固化体。

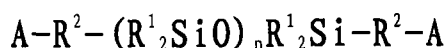
发明公开

[0005]本发明通过提供可固化的环氧树脂组合物来解决上述问题,所述可固化的环氧树脂组合物包含至少下述组分:

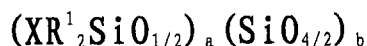
(I) 环氧树脂;

(II) 用于环氧树脂的固化剂;

(III) 用下述通式表示的二有机基硅氧烷,其中以每 100 重量份组分(I)和(II)之和计,其用量为 0.1-100 重量份:



{其中 R^1 表示不含不饱和脂族键的相同或不同的未取代或取代的单价烃基; R^2 是二价有机基团, A 是用下述平均单元式表示的硅氧烷残基:



(其中 R^1 与以上定义的相同, 和 X 是单键、氢原子、用 R^1 表示的基团、含环氧基的单价有机基团、或烷氧基甲硅烷基烷基; 然而, 在一个分子中至少一个用 X 表示的基团是单键, 至少两个用 X 表示的基团是含环氧基的烷基; a 是正数; b 是正数; 和 a/b 是范围为 0.2-4 的数值, 和其中 n 是等于或大于 1 的整数)), 和

(IV) 无机填料(以至少 20wt%的用量包含在组合物内)。

[0006]本发明的可固化的环氧树脂组合物的特征在于用作半导体器件用密封剂或粘合剂。

[0007]通过固化本发明的组合物来获得本发明的固化体。

发明效果

[0008]本发明的可固化的环氧树脂组合物有效地拥有优良的可模塑性, 和当固化时, 可形成强度高但弹性模量低(应力低)的固化体。此外, 该组合物的固化体的特征在于高强度以及低弹性模量(低应力)。

发明详述

[0009]构成组分(I)的环氧树脂是该组合物的主要组分。对组分(I)

没有特别限制，条件是这一组分含有环氧基，例如缩水甘油基或脂环族环氧基。组分(I)可例举酚醛型环氧树脂，甲酚醛型环氧树脂，三酚-烷烃型环氧树脂，芳烷基型环氧树脂，具有联苯骨架的芳烷基型环氧树脂，联苯型环氧树脂，二环戊二烯型环氧树脂，杂环型环氧树脂，含萘环的环氧树脂，双酚-A型环氧树脂，双酚F型环氧树脂，芪型环氧树脂，三羟甲基丙烷型环氧树脂，蒽烯改性的环氧树脂，通过用过氧酸例如过乙酸氧化烯烃键而获得的直链脂族环氧树脂，脂环族环氧树脂，或含硫的环氧树脂。组分(I)可由一种或多种前述环氧树脂组成。最优选用作组分(I)的是具有联苯骨架的芳烷基型环氧树脂，联苯型环氧树脂，或含有联苯基的类似环氧树脂。

[0010]组分(I)通常是可获得的。例如，联苯型环氧树脂商业上由 Japan Epoxy Resin Co., Ltd. 以名称 YX-4000 生产；双酚F型环氧树脂商业上由 Nippon Steel Chemical Co., Ltd. 以名称 VSLV-80XY 生产；具有联苯骨架的芳烷基型环氧树脂由 Nippon Kayaku Co., Ltd. 以名称 NC-3000 和 CER-3000L (与苯基型环氧树脂的混合物) 生产；和萘酚-芳烷基型环氧树脂由 Nippon Steel Chemical Co., Ltd. 以名称 ESN-175 生产。

[0011]当本发明的组合物用作半导体器件用密封剂或粘合剂时，推荐组分(I)含有用量不大于 1000ppm，优选不大于 500ppm 的可水解氯。组分(I)中钠和钾的含量应当各自不超过 10ppm。若可水解氯的含量超过推荐上限，或者钠和钾的含量超过各自的推荐上限，则当具有使用本发明的组合物密封或粘结的部件的半导体器件在高温和高湿度条件下操作时，会损害这种器件的耐湿性能。

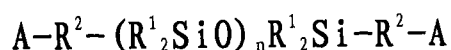
[0012]组分(II)是用于环氧树脂的固化剂，所述固化剂将与组分(I)中的环氧基反应并用于固化该组合物。推荐组分(II)是含有酚羟基的化合物，例如可溶可熔酚醛树脂、含有萘环的酚醛树脂，芳烷基型酚醛树脂，三酚烷烃型酚醛树脂，含联苯的酚醛树脂，脂环族酚醛树脂，杂环酚醛树脂，双酚A或双酚F。组分(II)可由两种或更多种具有酚羟基的前述化合物组成。优选的是，使用含联苯的芳烷基型酚醛

树脂或者类似的含联苯的酚醛树脂形式的组分(II)。

[0013]组分(II)可容易地获得。例如,芳烷基型酚醛树脂商业上由 Mitsui Chemical Co.,Ltd.以名称 Milex XLC-3L 和由 Meiwa Plastic Industries Co.Ltd.以名称 MEH-781 生产;含萘环的酚醛树脂由 Nippon Steel Chemical Co.,Ltd.以名称 SN-475 和 SN-170 生产;可溶可熔酚醛树脂由 Meiwa Plastic Industries Co.,Ltd.以名称 MEH-7500 生产;和含联苯的酚醛树脂由 Meiwa Plastic Industries Co.,Ltd.以名称 MEH 7851M 生产。

[0014]对组分(II)可使用的用量没有特别限制,条件是这一用量足以固化组分(I)。然而,推荐以每 1mol 在组分(I)中的环氧基计,组分(II)中的环氧基反应性官能团的范围为 0.5-2.5mol。例如,当组分(II)是含有酚羟基的化合物时,以每 1mol 在组分(I)中的环氧基计,组分(II)中的酚羟基的含量范围应当为 0.5-2.5mol。若包含用量小于推荐下限的组分(II),则难以提供组合物的完全固化,和另一方面,若组分(II)的含量超过推荐上限,则这会降低固化体的强度。

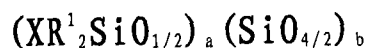
[0015]在组合物中使用组分(III)用以改进其可模塑性并降低组合物的固化体的弹性模量。组分(III)是下述通式的二有机基硅氧烷:



在上式中,用 R^1 表示的基团相同或不同且为不含不饱和脂族键的取代或未取代的单价烃基。这些基团的具体实例是下述:甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、辛基、癸基、十八烷基或类似烷基;环戊基、环己基、环庚基或类似环烷基;苯基、甲苯基、二甲苯基或类似芳基;苄基、苯乙基、苯丙基或类似芳烷基;和 3-氯丙基、3,3,3-三氟丙基或类似卤代烷基。最优选是烷基,特别是甲基。在上式中, R^2 表示二价有机基团。这些基团具体例举亚乙基、甲基亚乙基、亚丙基、亚丁基、亚戊基、亚己基或类似的亚烷基;亚乙基氧基亚乙基、亚乙基氧基亚丙基、亚乙基氧基亚丁基、亚丙基氧基亚丙基或类似的亚烷基氧基亚烷基。优选亚烷基,尤其是亚乙基。在该通式中, n 是等于或大于 1 的整数,且表示在分子主链内包含的二有机基硅氧烷的聚合

度。从组合物的固化体的改进的挠性的角度考虑, n 应当等于或大于 10。对 n 值的上限没有特别限制, 但推荐 n 值不超过 500。

[0016] 在上式中, A 是用下述平均单元式表示的硅氧烷残基:



在该式中, R^1 表示不含不饱和脂族键的相同或不同的取代或未取代的单价烃基。这些基团可例举与前面给出的相同的基团, 最优选是烷基, 和特别是甲基。 X 表示单键, 氢原子, 用 R^1 表示的基团, 含环氧基的单价有机基团, 或烷氧基甲硅烷基烷基。然而, 在一个分子中至少一个用 X 表示的基团是单键, 它用于键合到前述二有机基聚硅氧烷中的 R^2 上。而且, 至少两个用 X 表示的基团是含环氧基的烷基。

[0017] 用 R^1 表示的基团可例举与以上针对 R^1 提及的相同的基团。至少一个用 X 表示的基团应当是具有大于或等于 6 个碳原子的单价烃基。为了改进组合物的流动性, 组分(III)应当与组分(I)和(II)相容。单价烃基可例举己基、辛基、癸基、十八烷基或类似烷基; 环己基、环庚基或类似环烷基; 和苯基、甲苯基、二甲苯基或类似芳基; 苄基、苯乙基、苯丙基或类似芳烷基, 其中优选烷基。

[0018] 含环氧基的烷基可例举 2-环氧丙氧乙基、3-环氧丙氧丙基、4-环氧丙氧丁基或类似的环氧丙氧烷基; 2-(3,4-环氧基环己基)乙基、3-(3,4-环氧基氯代己基)丙基或类似的 3,4-环氧基环己基烷基; 和 4-环氧乙基丁基、8-环氧乙基辛基或类似的环氧乙基烷基。这些基团中最优选的是环氧丙氧烷基, 特别是 3-环氧丙氧丙基。

[0019] 烷氧基甲硅烷基烷基可例举三甲氧基甲硅烷基乙基、三甲氧基甲硅烷基丙基、二甲氧基甲基甲硅烷基丙基、甲氧基二甲基甲硅烷基丙基、三乙氧基甲硅烷基乙基或三丙氧基甲硅烷基丙基。然而, 一个分子中至少一个用 X 表示的基团应当是烷氧基甲硅烷基烷基, 和优选三甲氧基甲硅烷基乙基。

[0020] 在上式中, a 是正数, b 是正数, 和 a/b 是范围为 0.2 - 4 的数值。

[0021] 对组分(III)的重均分子量没有特别限制, 但可推荐其数值

在 500 - 1,000,000 范围内。此外,对组分(III)在 25℃下的形式没有特别限制,但优选液体形式。推荐组分(III)在 25℃下的粘度范围为 50 - 1,000,000mPa.s。在例如 Kokai H06-56999 中公开了制备组分(III)的方法。

[0022]在本发明的组合物中,以每 100 重量份组分(I)和(II)之和计,组分(III)的用量为 0.1 - 100 重量份,优选 0.1 - 50 重量份,和最优选 0.1 - 20 重量份。若组分(III)的用量小于推荐下限,则这会增加固化体的弹性模量。另一方面,若组分(III)的含量超过推荐上限,则这会降低固化体的强度。

[0023]组分(IV)是为增强组合物的固化体而添加的无机填料。当无机填料加入到可固化的环氧树脂组合物中时,它通常会改进由该组合物得到的固化体的强度,但与此同时,组合物的流动性显著受到损害,和组合物的可模塑性变差。而且,固化体的弹性模量显著增加。与之相反,联合使用前述组分(III)和(IV)保护组合物避免流动性和可模塑性的损失,且尽管弹性模量下降(应力低),但可获得高强度的固化体。

[0024]对构成组分(IV)的填料没有特别限制,和通常与常规的可固化的环氧树脂组合物混合使用的无机填料可用于本发明的目的。这种填料可例举玻璃纤维、石棉、氧化铝纤维、由氧化铝和二氧化硅组成的陶瓷纤维、硼纤维、氧化锆纤维、碳化硅纤维、金属纤维或类似的纤维填料;无定形二氧化硅、结晶二氧化硅、沉淀二氧化硅、热解法二氧化硅、烘烤二氧化硅、氧化锌、烘烤粘土、炭黑、玻璃珠、滑石、碳酸钙、粘土、氢氧化铝、氢氧化镁、硫酸钡、二氧化钛、氮化铝、氮化硼、碳化硅、氧化铝、氧化镁、氧化钛、氧化铍、高岭土、云母、氧化锆或类似的粉状填料。组分(IV)可由两种或更多种这些填料组成。对组分(IV)的填料颗粒的形状没有特别限制。粉末颗粒可以是球状、针状、片状、磨碎的(即不规则形状)等。从可模塑性的角度考虑,优选形状为球状。还优选组分(IV)包括球状无定形二氧化硅。对组分(IV)的颗粒的平均尺寸没有特别限制,但从改进的可模塑性的

角度考虑,颗粒应当在 0.1-50 微米范围内。可结合使用具有不同平均尺寸的两类或更多类无机填料。

[0025]为了改进对组分(I)的亲合性,可用硅烷偶联剂、钛酸酯偶联剂或另一类类似的偶联剂对组分(IV)进行表面处理。这种硅烷偶联剂可用下述为代表:3-环氧丙氧丙基三甲氧基硅烷、3-环氧丙氧丙基甲基二乙氧基硅烷、2-(3,4-环氧基环己基)乙基三甲氧基硅烷或类似的含环氧基的烷氧基硅烷;N-(2-氯乙基)-3-氯丙基三甲氧基硅烷、3-氯丙基三乙氧基硅烷、N-苯基-3-氯丙基三甲氧基硅烷或类似的含胺的烷氧基硅烷;3-巯丙基三甲氧基硅烷或类似的含巯基的烷氧基硅烷;以及3-异氰酸丙酯基三乙氧基硅烷或3-脲丙基三甲氧基硅烷。这种钛酸酯偶联剂可以三(异硬脂酸)异丙醇钛为代表。可结合两种或更多种使用这些偶联剂。对可使用的前述偶联剂的用量没有特别限制。对表面处理的方法也没有特别限制。

[0026]组分(IV)的使用量应当是组合物重量的至少 20wt%,优选至少 30wt%,更优选至少 50wt%,和最优选至少 80wt%。若组分(IV)的使用量小于推荐下限,则难以赋予组合物的固化体充足的强度。

[0027]在本发明的组合物中,组分(IV)可分散在组分(I)或组分(II)内。为了改进组分(IV)对组分(I)或(II)的亲合力,可将偶联剂例如硅烷偶联剂或钛酸酯偶联剂加入到混合物中。这些偶联剂可例举与以上提及的那些相同的化合物。

[0028]本发明的组合物可另外含有固化促进剂(V)。这一组分(V)可用下述为代表:三苯基膦、三丁基膦、三(对甲基苯基)膦、三(壬基苯基)膦、三苯基膦-硼酸三苯酯、四苯基膦-硼酸四苯酯,或类似的磷化合物;三乙胺、苄基二甲胺、 α -甲基苄基二甲胺、1,8-二氮杂双环[5.4.0]十一烯-7,或类似的叔胺化合物;2-甲基咪唑、2-苯基咪唑酮(imidazone)、2-苯基-4-甲基咪唑,或类似的咪唑化合物。

[0029]对组分(V)可加入到组合物内的用量没有特别限制,但一般地,可推荐以每 100 重量份组分(I)计,含有范围为 0.001-20 重量份的这一组分。若组分(V)的含量低于推荐下限,则难以加速组分(I)和

(II)之间的反应。另一方面,若组分(V)的含量超过推荐上限,则会损害固化体的强度。

[0030]视需要,可进一步结合该组合物与应力降低剂,例如热塑性树脂、热塑性弹性体、有机合成橡胶、硅氧烷等;蜡,例如巴西棕榈蜡、高级脂肪酸、合成蜡等;着色剂,例如炭黑;卤素捕获剂等。

[0031]对组合物的制备方法没有限制,和可通过仅仅均匀地混合组分(I)-(IV),并视需要添加任意组分来制备组合物。若组分(III)加入到通过预混组分(I)和(II)获得的组合物中并与之混合,则组分(III)的分散条件可得到改进。或者,组分(II)、(III)和任意组分可加入到组分(I)和(IV)的预混物中并与之均匀地混合。在这一情况下,方法可例举其中偶联剂加入到组分(I)和(IV)中的所谓一体共混方法,其中预混组分(I)和用偶联剂表面处理过的组分(IV)的方法。可借助单轴型或双轴型连续混炼机、双辊磨, Ross®混炼机,啮合混炼机、Henschel混炼机等进行混合。

[0032]由于本发明的组合物在固化之前拥有优良的可模塑性,因此它适合于用作用于电学或电子器件的密封剂、油漆、涂布剂、填料、粘合剂或类似试剂,且可通过形成低弹性模量和高强度的固化体用的传递模塑、铸塑、封装、流延、粉末涂布、浸渍涂布、点滴状施加等来加工。

实施例

[0033]参考实践例,更详细地进一步描述本发明的可固化的环氧树脂组合物。在实施例中所使用的所有粘度值对应于 25℃。

[0034]通过以下所述的方法测量可固化的环氧树脂组合物和该组合物的固化体的特征。通过在 175℃和 70kgf/cm²的压力下传递压制固化 2 分钟,预固化组合物然后在 180℃下后固化 5 分钟。

[可模塑性]

[0035]-螺旋流:通过 EMMI 标准所述的方法,在 175℃和 70kgf/cm²下测量。

-模具玷污:在连续模塑一排 5 个直径 50mm 和厚度 2mm 的盘子之

后，肉眼观察模具的镀铬表面的玷污情况，其中模具没有玷污的情况用[0]表示，其中模具表面上存在薄的玷污层的情况用[□]表示，和其中模具表面上存在玷污的情况用[X]表示。

[机械特征]

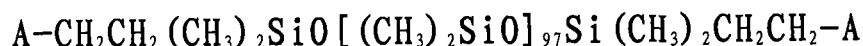
[0036]

- 挠曲弹性模量：根据 JIS K 6911 规定测量。

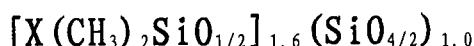
- 挠曲强度：根据 JIS K 6911 规定测量。

[实践例 1]

[0037]借助炽热的双辊磨，通过熔融并均匀地混合下述组分，制备可固化的环氧树脂组合物：51 重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co., Ltd. 以名称 NC-3000 生产；环氧当量=275；软化点=56℃)；39.0 重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co., Ltd. 以名称 MEH7851M 生产；酚羟基当量=207；软化点=80℃)；3.0 重量份下式的二甲基聚硅氧烷：



{其中 A 用下式表示：

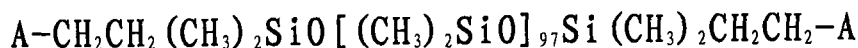


(其中 X 由单键和 3-环氧丙氧丙基组成；在一个分子内的至少一个 X 是单键，和其余部分的 X 由 3-环氧丙氧丙基组成)}；510 重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co., Ltd. 以名称 FB-48X 已知的产品)；1.0 重量份三苯基磷；和 1.0 重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

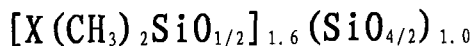
[实践例 2]

[0038]借助炽热的双辊磨，通过熔融并均匀地混合下述组分，制备可固化的环氧树脂组合物：51.1 重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co., Ltd. 以名称 NC-3000 生产；环氧当量=275；软化点=56℃)；38.9 重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co., Ltd. 以名称 MEH7851M 生产；酚羟基当量=207；软化

点=80℃); 3.0 重量份下式的二甲基聚硅氧烷:



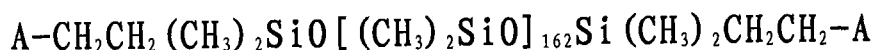
{其中 A 用下式表示:



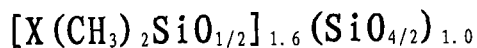
(其中 X 由单键、三甲氧基甲硅烷基丙基和 3-环氧丙氧丙基组成; 在一个分子内的至少一个 X 是单键, 和其余部分的 X 由以 1-4 的摩尔比使用的三甲氧基甲硅烷基丙基和 3-环氧丙氧丙基组成)); 510 重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co., Ltd. 以名称 FB-48X 已知的产品); 1.0 重量份三苯基膦; 和 1.0 重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

[实践例 3]

[0039] 借助炽热的双辊磨, 通过熔融并均匀地混合下述组分, 制备可固化的环氧树脂组合物: 51.2 重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co., Ltd. 以名称 NC-3000 生产; 环氧当量=275; 软化点=56℃); 38.8 重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co., Ltd. 以名称 MEH7851M 生产; 酚羟基当量=207; 软化点=80℃); 3.0 重量份下式的二甲基聚硅氧烷:



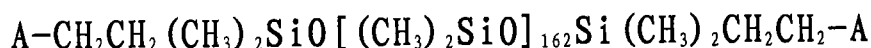
{其中 A 用下式表示:



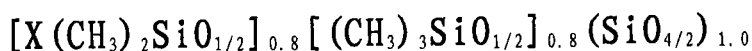
(其中 X 由单键、三甲氧基甲硅烷基丙基和 3-环氧丙氧丙基组成; 在一个分子内的至少一个 X 是单键, 和其余部分的 X 由以 1-4 的摩尔比使用的三甲氧基甲硅烷基丙基和 3-环氧丙氧丙基组成)); 510 重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co., Ltd. 以名称 FB-48X 已知的产品); 1.0 重量份三苯基膦; 和 1.0 重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

[实践例 4]

[0040]借助炽热的双辊磨,通过熔融并均匀地混合下述组分,制备可固化的环氧树脂组合物:50.3重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co.,Ltd.以名称 NC-3000 生产;环氧当量=275;软化点=56℃);39.7重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co.,Ltd.以名称 MEH7851M 生产;酚羟基当量=207;软化点=80℃);3.0重量份下式的二甲基聚硅氧烷:



{其中 A 用下式表示:



(其中 X 由单键、辛基和环氧丙氧丙基组成;在一个分子内的至少一个 X 是单键,和其余部分的 X 由以 1-4 的摩尔比使用的辛基和 3-环氧丙氧丙基组成)};510重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co.,Ltd.以名称 FB-48X 已知的产品);1.0重量份三苯基磷;和 1.0重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

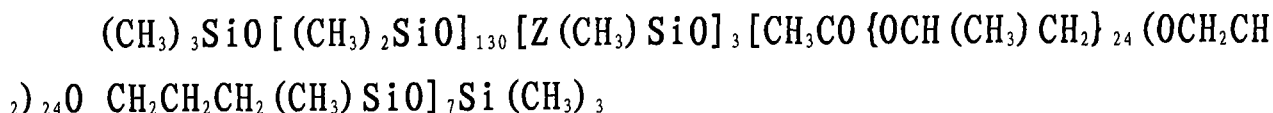
[对比例 1]

[0041]借助炽热的双辊磨,通过熔融并均匀地混合下述组分,制备可固化的环氧树脂组合物:51.5重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co.,Ltd.以名称 NC-3000 生产;环氧当量=275;软化点=56℃);38.5重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co.,Ltd.以名称 MEH7851M 生产;酚羟基当量=207;软化点=80℃);510重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co.,Ltd.以名称 FB-48X 已知的产品);1.0重量份三苯基磷;和 1.0重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

[对比例 2]

[0042]借助炽热的双辊磨,通过熔融并均匀地混合下述组分,制备可固化的环氧树脂组合物:41.5重量份联苯-芳烷基型环氧树脂(由 Nippon Kayaku Co.,Ltd.以名称 NC-3000 生产;环氧当量=275;软化

点=56℃); 38.5 重量份联苯-芳烷基型酚醛树脂(由 Meiwa Plastic Industries Co., Ltd. 以名称 MEH7851M 生产; 酚羟基当量=207; 软化点=80℃); 3.0 重量份下式的二有机基聚硅氧烷:



(其中 Z 是 3-环氧丙氧丙基); 510 重量份平均粒度为 14 微米的球状无定形二氧化硅(Denki Kagaku Kogyo Co., Ltd. 以名称 FB-48X 已知的产品); 1.0 重量份三苯基膦; 和 1.0 重量份巴西棕榈蜡。测量前述可固化的环氧树脂组合物和固化体的特征。表 1 中示出了测量结果。

[0043]

[表 1]

实施例 特征	实践例				对比例	
	1	2	3	4	1	2
螺旋流(英寸)	17	17	17	22	25	23
模具玷污	0	0	0	0	0	X
挠曲弹性模量 (kgf/mm ²)	2260	2160	2240	2180	2380	2320
挠曲强度(kgf/mm ²)	13.1	13.0	13.0	13.0	11.9	10.7

[0044] 由于可固化的环氧树脂组合物的特征在于, 固化之前具有优良的可模塑性, 和当固化时, 形成尽管弹性模量低(应力低)但强度高的固化体, 因此它适合于用作半导体器件的密封剂。