

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5306592号
(P5306592)

(45) 発行日 平成25年10月2日(2013.10.2)

(24) 登録日 平成25年7月5日(2013.7.5)

(51) Int.Cl.

F 1

C08L 63/00	(2006.01)	C08L 63/00	C
C08K 3/00	(2006.01)	C08K 3/00	
C08L 83/04	(2006.01)	C08L 83/04	
H01L 23/29	(2006.01)	H01L 23/30	R
H01L 23/31	(2006.01)		

請求項の数 9 (全 11 頁)

(21) 出願番号

特願2006-327219 (P2006-327219)

(22) 出願日

平成18年12月4日 (2006.12.4)

(65) 公開番号

特開2008-138121 (P2008-138121A)

(43) 公開日

平成20年6月19日 (2008.6.19)

審査請求日

平成21年11月30日 (2009.11.30)

(73) 特許権者 000110077

東レ・ダウコーニング株式会社

東京都千代田区大手町一丁目5番1号

(72) 発明者 森田 好次

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
コーニング株式会社内

(72) 発明者 植木 浩

千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
コーニング株式会社内

審査官 久保 道弘

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】硬化性エポキシ樹脂組成物、硬化物、およびその用途

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(I) エポキシ樹脂、

(II) エポキシ樹脂用硬化剤、

(III) 一般式：

 $A - R^2 - (R^1_2 SiO)_n R^1_2 Si - R^2 - A$ { 式中、 R^1 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、 R^2 は二価有機基であり、A は、平均単位式： $(X R^1_2 SiO_{1/2})_a (SiO_{4/2})_b$ (式中、 R^1 は前記と同様の基であり、X は単結合、水素原子、前記 R^1 で表される基、エポキシ基含有アルキル基、またはアルコキシシリルアルキル基であり、但し、一分子中、少なくとも 1 個の X は単結合であり、少なくとも 2 個の X はエポキシ基含有アルキル基であり、a は正数であり、b は正数であり、a / b は 0.2 ~ 4 の数である。) 10

で表されるシロキサン残基であり、n は 1 以上の整数である。}

で表されるジオルガノシロキサン { (I) 成分と (II) 成分の合計 100 重量部に対して 0.1 ~ 100 重量部 }、および

(IV) 無機充填材 (本組成物中、少なくとも 20 重量 %)

から少なくともなり、前記 (I) 成分がビフェニル骨格含有アラルキル型エポキシ樹脂であり、前記 (II) 成分がビフェニル基含有アラルキル型フェノール樹脂である硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】

(II) 成分の含有量が、(I) 成分中のエポキシ基 1 モルに対して、(II) 成分中のフェノール性水酸基が 0.5 ~ 2.5 モルとなる量である、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】

(III) 成分中の X の少なくとも 1 個は炭素数 6 以上の一価炭化水素基である、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

(III) 成分中の X の少なくとも 1 個はアルコキシリルアルキル基である、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。 10

【請求項 5】

(IV) 成分が球状の無機充填材である、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 6】

(IV) 成分が球状非晶性シリカである、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 7】

さらに、(V) エポキシ樹脂用硬化促進剤を含む、請求項 1 記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 8】

半導体用封止剤である請求項 1 乃至7 のいずれか 1 項記載の硬化性エポキシ樹脂組成物。

【請求項 9】

請求項 1 乃至7 のいずれか 1 項記載の硬化性エポキシ樹脂組成物を硬化してなる硬化物。 20

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、硬化性エポキシ樹脂組成物、その硬化物、およびその用途に関する。

【背景技術】**【0002】**

硬化性エポキシ樹脂組成物は電気・電子部品の封止剤、接着剤等に使用されているが、その硬化物は弾性率が高く、剛直であるため、熱膨張や硬化収縮により電気・電子部品に応力が加わりやすいという問題がある。硬化物の弾性率を低下させるため、硬化性エポキシ樹脂組成物にエポキシ基を有するジオルガノポリシロキサンを配合することが知られている。このジオルガノポリシロキサンとして、特許文献 1 には、分子鎖両末端にエポキシ基含有シロキサン残基を有するジオルガノポリシロキサンが開示されている。特許文献 1 には、硬化性エポキシ樹脂組成物の組成は具体的に開示されていないが、このジオルガノポリシロキサンを硬化性エポキシ樹脂組成物に配合すると、硬化物の弾性率が低下するものの、その強度も低下してしまうという懸念がある。 30

【0003】

一方、特許文献 2 には、硬化性エポキシ樹脂組成物の代わりに、分子鎖両末端にエポキシ基含有シロキサン残基を有するジオルガノポリシロキサン、エポキシ樹脂用硬化剤からなる硬化性シリコーン組成物を使用することが提案されている。しかし、このような硬化性シリコーン組成物は、硬化物の可撓性および接着性が優れるものの、十分な強度が得られず、その用途が限定されるという懸念がある。 40

【特許文献 1】特開平 6 - 56999 号公報**【特許文献 2】特開 2006 - 257115 号公報****【発明の開示】****【発明が解決しようとする課題】****【0004】**

本発明の目的は、成型性が優れ、硬化して、低弾性率（低応力）であるにもかかわらず、高強度の硬化物を形成する硬化性エポキシ樹脂組成物を提供することにあり、さらには、半導体用封止剤として好適な硬化性エポキシ樹脂組成物を提供することにある。 50

また、本発明の他の目的は、低弾性率（低応力）で高強度の硬化物を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

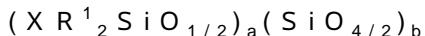
【0005】

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、

- (I) エポキシ樹脂、
- (II) エポキシ樹脂用硬化剤、
- (III) 一般式：



{ 式中、 R^1 は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、 R^2 は二価有機基であり、 A は、平均単位式：



(式中、 R^1 は前記と同様の基であり、 X は単結合、水素原子、前記 R^1 で表される基、エポキシ基含有アルキル基、またはアルコキシシリルアルキル基であり、但し、一分子中、少なくとも 1 個の X は単結合であり、少なくとも 2 個の X はエポキシ基含有アルキル基であり、 a は正数であり、 b は正数であり、 a / b は 0.2 ~ 4 の数である。)

で表されるシロキサン残基であり、 n は 1 以上の整数である。 }

で表されるジオルガノシロキサン { (I) 成分と (II) 成分の合計 100 重量部に対して 0.1 ~ 100 重量部 } 、および

(IV) 無機充填材（本組成物中、少なくとも 20 重量 % ）

から少なくともなることを特徴とする。

さらに、本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、半導体用封止・接着剤であることを特徴とする。

また、本発明の硬化物は、上記組成物を硬化してなることを特徴とする。

【発明の効果】

【0006】

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、成型性が優れ、硬化して、低弾性率（低応力）であるにもかかわらず、高強度の硬化物を形成することができる。

また、本発明の硬化物は、低弾性率（低応力）で高強度である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0007】

(I) 成分のエポキシ樹脂は本組成物の主剤であり、グリシジル基や脂環式エポキシ基等のエポキシ基を有するものであれば特に限定されない。（I）成分として、ノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、トリフェノールアルカン型エポキシ樹脂、アラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル骨格含有アラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、複素環型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有エポキシ樹脂、ビスフェノール A 型エポキシ化合物、ビスフェノール F 型エポキシ化合物、スチルベン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、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が例示される。（I）成分として、これらのエポキシ樹脂を 2 種以上組み合わせてもよい。特に、(I) 成分はビフェニル骨格含有アラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂等のビフェニル基を含むエポキシ樹脂であることが好ましい。

【0008】

(I) 成分は一般に入手可能であり、ビフェニル型エポキシ樹脂としては、ジャパンエポキシレジン社製の YX - 4000 が例示され、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂としては、新日鐵化学社製の VSLV - 80XY が例示され、ビフェニル骨格含有アラルキル型エポキシ樹脂としては、日本化薬社製の NC - 3000 、 CER - 3000L (ビフェニル型エポキシ樹脂との混合物) が例示され、ナフトール・アラルキル型エポキシ樹脂として、新日鐵化学社製の ESN - 175 が例示される。

10

20

30

40

50

【0009】

本組成物を半導体用封止・接着剤として使用する場合、(I)成分中の加水分解性塩素の含有量が1000 ppm以下であることが好ましく、特に、500 ppm以下であることが好ましい。また、(I)成分中のナトリウムおよびカリウムの含有量はそれぞれ10 ppm以下であることが好ましい。これは、加水分解性塩素の含有量が上記範囲の上限を超えた場合、ナトリウムまたはカリウムの含有量が上記範囲の上限を超える場合には、封止もしくは接着された半導体の高温高湿下での耐湿性が低下する恐れがあるからである。

【0010】

(II)成分は、(I)成分中のエポキシ基と反応して本組成物を硬化するためのエポキシ樹脂用硬化剤である。(II)成分はフェノール性水酸基含有化合物であることが好ましく、フェノールノボラック樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、トリフェノールアルカン型フェノール樹脂、ビフェニル基含有フェノール樹脂、脂環式フェノール樹脂、複素環型フェノール樹脂、ビスフェノールA、ビスフェノールFが例示される。(II)成分として、これらのフェノール性水酸基含有化合物を2種以上組み合わせてもよい。特に、(II)成分はビフェニル基含有アラルキル型フェノール樹脂等のビフェニル基含有フェノール樹脂であることが好ましい。

10

【0011】

(II)成分は一般入手可能であり、アラルキル型フェノール樹脂としては、三井化学株式会社製のミレックスXLC-3L、明和化成社製のM EH-781が例示され、ナフタレン環含有フェノール樹脂としては、新日鐵化学社製のSN-475、SN-170が例示され、フェノールノボラック樹脂としては、明和化成社製のM EH-7500が例示され、ビフェニル基含有フェノール樹脂としては、明和化成社製のM EH7851Mが例示される。

20

【0012】

本組成物において、(II)成分の含有量は(I)成分を硬化する量であれば特に限定されないが、(I)成分中のエポキシ基1モルに対して、(II)成分中のエポキシ反応性の官能基が0.5~2.5モルの範囲内となる量であることが好ましい。例えば、(II)成分がフェノール性水酸基含有化合物である場合、(I)成分中のエポキシ基1モルに対して、(II)成分中のフェノール性水酸基が0.5~2.5モルの範囲内となる量であることが好ましい。これは、(II)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、組成物の硬化が不十分となる傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えると、硬化物の強度が低下する傾向があるからである。

30

【0013】

(III)成分は、本組成物の成型性を向上させ、硬化物の弾性率を低下させるための成分であり、一般式：



で表されるジオルガノシロキサンである。式中、R¹は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、具体的には、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、オクチル基、デシル基、オクタデシル基等のアルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基；3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が例示され、好ましくはアルキル基であり、特に好ましくはメチル基である。また、式中、R²は二価有機基であり、具体的には、エチレン基、メチルエチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基等のアルキレン基；エチレンオキシエチレン基、エチレンオキシプロピレン基、エチレンオキシブチレン基、プロピレンオキシプロピレン基等のアルキレンオキシアルキレン基が例示され、好ましくはアルキレン基であり、特に好ましくはエチレン基である。また、式中、nは主鎖であるジオルガノシロキサンの重合度を表す1以上の整数であり、硬化物に良好な可撓性を付与することから、nは10以上の整数であることが好ましく、そ

40

50

の上限は限定されないが、500以下の整数であることが好ましい。

【0014】

また、式中、Aは、平均単位式：



で表されるシロキサン残基である。式中、R¹は同種または異種の脂肪族不飽和結合を有さない置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、前記と同様の基が例示され、好ましくはアルキル基であり、特に好ましくはメチル基である。また、式中、Xは単結合、水素原子、前記R¹で表される基、エポキシ基含有アルキル基、またはアルコキシリルアルキル基である。但し、一分子中、少なくとも1個のXは単結合であり、この単結合を介して上記ジオルガノポリシロキサン中のR²に結合している。また、一分子中、少なくとも2個のXはエポキシ基含有アルキル基である。

10

【0015】

R¹で表される基としては、前記と同様の基が例示される。なお、一分子中、少なくとも1個のXは炭素数6以上の一価炭化水素基であることが好ましい。これは、(III)成分が(I)成分や(II)成分と親和性が良好となり、組成物の流動性が向上するからである。この一価炭化水素基としては、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、オクタデシル基等のアルキル基；シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基が例示され、好ましくはアルキル基である。

20

【0016】

また、エポキシ基含有アルキル基としては、2-グリシドキシエチル基、3-グリシドキシプロピル基、4-グリシドキシブチル基等のグリシドキシリル基；2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル基、3-(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピル基等の3,4-エポキシシクロヘキシルアルキル基；4-オキシラニルブチル基、8-オキシラニルオクチル基等のオキシラニルアルキル基が例示され、好ましくはグリシドキシリル基であり、特に好ましくは3-グリシドキシプロピル基である。

【0017】

また、アルコキシリルアルキル基としては、トリメトキシシリルエチル基、トリメトキシシリルプロピル基、ジメトキシメチルシリルプロピル基、メトキシジメチルシリルブロピル基、トリエトキシシリルエチル基、トリプロポキシシリルプロピル基が例示される。なお、一分子中、少なくとも1個のXはアルコキシリルアルキル基であることが好ましく、特に、トリメトキシシリルエチル基であることが好ましい。

30

【0018】

また、aは正数であり、bは正数であり、a/bは0.2~4の数である。

【0019】

(III)成分の重量平均分子量は限定されず、500~1000000の範囲内であることが好ましい。また、(III)成分の性状は限定されず、25において液状であることが好ましい。(III)成分の25における粘度は50~1000000 mPa·sの範囲内であることが好ましい。(III)成分は、例えば、特開平6-56999号公報に記載の方法により製造することができる。

40

【0020】

本組成物において、(III)成分の含有量は、(I)成分と(II)成分の合計100重量部に対して0.1~100重量部の範囲内であり、好ましくは0.1~50重量部の範囲内であり、特に好ましくは0.1~20重量部の範囲内である。これは、(III)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、硬化物の弾性率が高くなる傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えると、硬化物の強度が著しく低下する傾向があるからである。

【0021】

(IV)成分の無機充填材は、硬化物に強度を付与するための成分である。一般に、硬化性エポキシ樹脂組成物に無機充填材を配合した場合、硬化物の強度を高めることができるが、組成物の流動性が著しく低下して成型性が悪化し、また、硬化物の弾性率が著しく高

50

くなる。これに対して、本組成物は、前記(Ⅲ)成分と(Ⅳ)成分を併用しているので、流動性や成型性を損なうことなく、硬化して、低弾性率(低応力)であるにもかかわらず、高強度の硬化物を形成することができる。

【0022】

(Ⅳ)成分は、通常、硬化性エポキシ樹脂組成物に配合し得る無機充填材であれば特に限定されず、ガラス纖維、石綿、アルミナ纖維、アルミナシリカを成分とするセラミック纖維、ボロン纖維、ジルコニア纖維、炭化ケイ素纖維、金属纖維等の纖維状充填材；非晶性シリカ、結晶性シリカ、沈澱シリカ、ヒュームドシリカ、焼成シリカ、酸化亜鉛、焼成クレイ、カーボンブラック、ガラスビーズ、タルク、炭酸カルシウム、クレイ、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硫酸バリウム、二酸化チタン、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、炭化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、酸化ベリリウム、カオリン、雲母、ジルコニア等の粉粒状充填材が例示される。(Ⅳ)成分として、これらの無機充填材を2種以上組み合わせてもよい。また、(Ⅳ)成分の形状は限定されず、球状、針状、扁平形状、破碎状(不定形状)等が挙げられ、成型性が良好であることから、球状であることが好ましい。特に、(Ⅳ)成分は球状非晶性シリカであることから、0.1~50μmの範囲内であることが好ましい。また、(Ⅳ)成分として、平均粒子径の異なる2種類以上の無機充填材を組み合わせてもよい。

10

【0023】

また、(Ⅰ)成分との親和性を向上させるために(Ⅳ)成分の表面を予めシランカップリング剤、チタネートカップリング剤等のカップリング剤で処理してもよい。このシランカップリング剤としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、2-(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等のエポキシ基含有アルコキシシラン；N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノ基含有アルコキシシラン；3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等のメルカプト基含有アルコキシシラン；その他、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、3-ウレайдプロピルトリエトキシシランが例示される。また、このチタネートカップリング剤としては、i-プロポキシチタントリ(イソステアレート)が例示される。これらのカップリング剤を2種以上組み合わせてもよい。なお、表面処理に用いるカップリング剤の配合量、および表面処理方法は制限されない。

20

【0024】

本組成物において、(Ⅳ)成分の含有量は、本組成物中の少なくとも20重量%であり、好ましくは、少なくとも30重量%であり、さらに好ましくは、少なくとも50重量%であり、特に好ましくは、少なくとも80重量%である。これは、上記範囲の下限未満であると、得られる硬化物の強度が不十分となる傾向があるからである。

30

【0025】

本組成物において、(Ⅰ)成分や(Ⅱ)成分中に(Ⅳ)成分を良好に分散させ、また(Ⅰ)成分や(Ⅱ)成分と(Ⅳ)成分との親和性を向上させるためにシランカップリング剤、チタネートカップリング剤等のカップリング剤を含有してもよい。このカップリング剤としては、前記と同様のものが例示される。

40

【0026】

本組成物には、その他の成分として、(V)エポキシ樹脂用硬化促進剤を含有してもよい。(V)成分として、具体的には、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリ(p-メチルフェニル)ホスフィン、トリ(ノニルフェニル)ホスフィン、トリフェニルホスフィン・トリフェニルボレート、テトラフェニルホスフィン・テトラフェニルボレート等のリン系化合物；トリエチルアミン、ベンジルジメチルアミン、-メチルベンジルジメチルアミン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7等の第3級アミン化合物；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

50

イミダゾール等のイミダゾール化合物が例示される。

【0027】

本組成物において、(V)成分の含有量は限定されないが、(I)成分100重量部に対して0.001~20重量部に範囲内であることが好ましい。これは、(V)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、(I)成分と(II)成分の反応を促進しにくくなる傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる硬化物の強度が低下する傾向があるからである。

【0028】

本組成物には、必要に応じて、熱可塑性樹脂、熱可塑性エラストマー、有機合成ゴム、シリコーン系等の低応力化剤；カルナバワックス、高級脂肪酸、合成ワックス等のワックス類；カーボンブラック等の着色剤；ハロゲントラップ剤等を含有してもよい。

10

【0029】

本組成物を調製する方法は限定されないが、(I)成分~(IV)成分、およびその他任意の成分を均一に混合することにより調製される。予め(I)成分と(II)成分を混合した組成物に(III)成分を混合すると、(III)成分の分散性を向上することができる。また、(I)成分に(IV)成分を混合した後、(II)成分、(III)成分、およびその他任意の成分を均一に混合する方法が例示され、その際、(I)成分と(IV)成分にカップリング剤を添加してインテグラルブレンドする方法、予め(IV)成分をカップリング剤で表面処理した後、(I)成分と混合する方法が例示される。また、本組成物を調製するための装置としては、一軸または二軸の連続混合機、二本ロール、ロスマキサー、ニーダミキサー、ヘンシェルミキサー等の混合攪拌機が例示される。

20

【0030】

本組成物は、硬化前には優れた成型性を有し、硬化して、弾性率が低く、強度が高い硬化物を形成するので、トランスファー・モールド、インジェクションモールド、ポッティング、キャスティング、粉体塗装、浸漬塗布、滴下等の方法によって、これを電気・電子部品の封止剤、塗料、充填剤、コーティング剤、接着剤等に使用することができる。特に、本組成物は半導体の封止剤や接着剤として好適である。

【実施例】

【0031】

本発明を実施例により詳細に説明する。実施例中の粘度は25における値である。硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性は次の方法により測定した。なお、硬化性エポキシ樹脂組成物は、175、2分間、70kgf/cm²の条件下でトランスファープレス成形した後、180、5時間の条件でポストキュアして硬化させた。

30

【0032】

[成型性]

- ・スパイラルフロー：175、70kgf/cm²の条件で、EMMI規格に準じた方法により測定した。

- ・金型汚れ評価：直径50mm、厚さ2mmの円盤を5ショット連続で成型した後、金型のクロムメッキ表面の曇りを観察し、金型汚れがない場合を「」、金型表面に薄く曇りがある場合を「」、金型表面に汚れがある場合を「×」、として評価した。

40

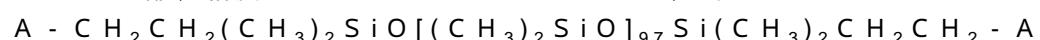
[機械的特性]

- ・曲げ弾性率：JIS K 6911に準拠した。
- ・曲げ強さ：JIS K 6911に準拠した。

【0033】

[実施例1]

ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂（日本化薬社製のNC3000；エポキシ当量=275、軟化点=56）51重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂（明和化成社製のMEH7851M；フェノール性水酸基当量=207、軟化点=80）39.0重量部、粘度が200000mPa·sである、式：



50

{式中、Aは、平均単位式：



(式中、Xは単結合および3-グリシドキシプロピル基からなり、一分子中、1個のXは単結合であり、残りのXは3-グリシドキシプロピル基である。)

で表されるシロキサン残基である。}

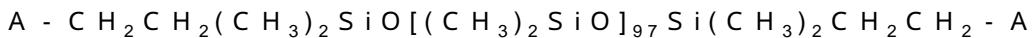
で表されるジメチルポリシロキサン3重量部、平均粒子径14μmの球状非晶性シリカ(電気化学工業株式会社製のFB-48X)510重量部、トリフェニルホスフィン1.0重量部、およびカルナバワックス1.0重量部を熱2本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表1に示した。

10

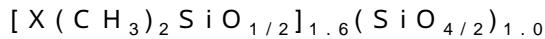
【0034】

[実施例2]

ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂(日本化薬社製のNC3000;エポキシ当量=275、軟化点=56)51.1重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂(明和化成社製のMEH7851M;フェノール性水酸基当量=207、軟化点=80)38.9重量部、粘度が9500mPa·sである、式：



{式中、Aは、平均単位式：



(式中、Xは単結合、トリメトキシシリルプロピル基、および3-グリシドキシプロピル基からなり、一分子中、1個のXは単結合であり、残りのXはトリメトキシリルプロピル基、および3-グリシドキシプロピル基からなり、そのモル比はほぼ1:4である。)

20

で表されるシロキサン残基である。}

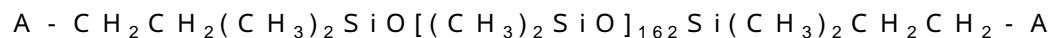
で表されるジメチルポリシロキサン3重量部、平均粒子径14μmの球状非晶性シリカ(電気化学工業株式会社製のFB-48X)510重量部、トリフェニルホスフィン1.0重量部、およびカルナバワックス1.0重量部を熱2本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表1に示した。

【0035】

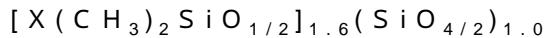
[実施例3]

30

ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂(日本化薬社製のNC3000;エポキシ当量=275、軟化点=56)51.2重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂(明和化成社製のMEH7851M;フェノール性水酸基当量=207、軟化点=80)38.8重量部、粘度が12000mPa·sである、式：



{式中、Aは、平均単位式：



(式中、Xは単結合、トリメトキシシリルプロピル基、および3-グリシドキシプロピル基からなり、一分子中、1個のXは単結合であり、残りのXはトリメトキシリルプロピル基、および3-グリシドキシプロピル基からなり、そのモル比はほぼ1:4である。)

40

で表されるシロキサン残基である。}

で表されるジメチルポリシロキサン3.0重量部、平均粒子径14μmの球状非晶性シリカ(電気化学工業株式会社製のFB-48X)510重量部、トリフェニルホスフィン1.0重量部、およびカルナバワックス1.0重量部を熱2本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表1に示した。

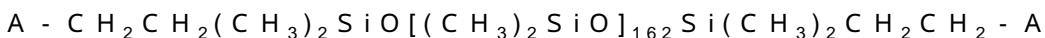
【0036】

[実施例4]

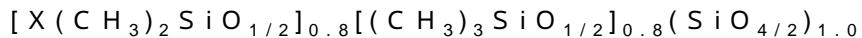
ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂(日本化薬社製のNC3000;エポキシ当量=275、軟化点=56)50.3重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂

50

(明和化成社製の M E H 7 8 5 1 M ; フェノール性水酸基当量 = 2 0 7 、軟化点 = 8 0) 3 9 . 7 重量部、粘度が 2 3 0 0 mPa · s である、式 :



{ 式中、 A は、平均単位式 :



(式中、 X は单結合、オクチル基、および 3 - グリシドキシプロピル基からなり、一分子中、 1 個の X は单結合であり、残りの X はオクチル基、および 3 - グリシドキシプロピル基からなり、そのモル比はほぼ 1 : 4 である。)

で表されるシロキサン残基である。 }

で表されるジメチルポリシロキサン 3 重量部、平均粒子径 1 4 μ m の球状非晶性シリカ (電気化学工業株式会社製の F B - 4 8 X) 5 1 0 重量部、トリフェニルホスフィン 1 . 0 重量部、およびカルナバワックス 1 . 0 重量部を熱 2 本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表 1 に示した。

【 0 0 3 7 】

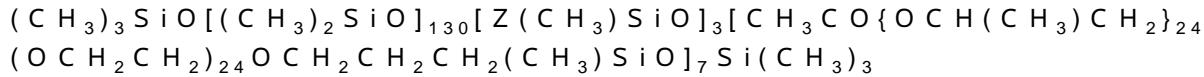
[比較例 1]

ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂 (日本化薬社製の N C 3 0 0 0 ; エポキシ当量 = 2 7 5 、軟化点 = 5 6) 5 1 . 5 重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂 (明和化成社製の M E H 7 8 5 1 M ; フェノール性水酸基当量 = 2 0 7 、軟化点 = 8 0) 3 8 . 5 重量部、平均粒子径 1 4 μ m の球状非晶性シリカ (電気化学工業株式会社製の F B - 4 8 X) 5 1 0 重量部、トリフェニルホスフィン 1 . 0 重量部、およびカルナバワックス 1 . 0 重量部を熱 2 本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表 1 に示した。

【 0 0 3 8 】

[比較例 2]

ビフェニル・アラルキル型エポキシ樹脂 (日本化薬社製の N C 3 0 0 0 ; エポキシ当量 = 2 7 5 、軟化点 = 5 6) 4 1 . 5 重量部、ビフェニル・アラルキル型フェノール樹脂 (明和化成社製の M E H 7 8 5 1 M ; フェノール性水酸基当量 = 2 0 7 、軟化点 = 8 0) 3 8 . 5 重量部、粘度が 3 0 0 0 mPa · s である、式 :



(式中、 Z は 3 - グリシドキシプロピル基 である。)

で表されるジオルガノポリシロキサン 3 重量部、平均粒子径 1 4 μ m の球状非晶性シリカ (電気化学工業株式会社製の F B - 4 8 X) 5 1 0 重量部、トリフェニルホスフィン 1 . 0 重量部、およびカルナバワックス 1 . 0 重量部を熱 2 本ロールにより均一に溶融混合して硬化性エポキシ樹脂組成物を調製した。この硬化性エポキシ樹脂組成物およびその硬化物の特性を測定して、それらの結果を表 1 に示した。

【 0 0 3 9 】

【表1】

区分 項目	本発明				比較例	
	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
スパイラルフロー (inch)	1 7	1 7	1 7	2 2	2 5	2 3
金型汚れ	○	○	○	○	○	×
曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	2 2 6 0	2 1 6 0	2 2 4 0	2 1 8 0	2 3 8 0	2 3 2 0
曲げ強さ (kgf/mm ²)	1 3 . 1	1 3 . 0	1 3 . 0	1 3 . 0	1 1 . 9	1 0 . 7

【産業上の利用可能性】

【0040】

本発明の硬化性エポキシ樹脂組成物は、硬化前は成型性が良好であり、硬化後には低弾性率（低応力）であるにもかかわらず、高強度の硬化物を形成し得るので、半導体用封止剤として好適である。

10

20

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2006-257115(JP,A)
特開2007-224146(JP,A)
特開2006-306853(JP,A)
特開2006-306954(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 1/00 - 101/14
C08K 3/00 - 3/40
C08G 59/00 - 59/72