(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
2006 年5 月11 日 (11.05.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/049156 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 59/62 (2006.01) *H01L 23/29* (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01) *H01L 23/31* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/020088

(22) 国際出願日: 2005 年11 月1 日 (01.11.2005)

(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2004-318789 2004 年11 月2 日 (02.11.2004) JP
特願 2004-374503
2004 年12 月24 日 (24.12.2004) JP
特願2005-099391 2005 年3 月30 日 (30.03.2005) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友ベークライト株式会社 (SUMITOMO BAKELITE COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東品川２丁目５番８号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 室谷 和良 (MUROTANI, Kazuyoshi) [JP/JP]; 〒3213231 栃木県宇都宮市清原工業団地２０－７ 住友ベークライト株式会社宇都宮工場内 Tochigi (JP). 鵜川 健 (UKAWA, Ken) [JP/JP]; 〒3213231 栃木県宇都宮市清原工業団地２０－７ 住友ベークライト株式会社宇都宮工場内 Tochigi (JP).

(74) 代理人: 岸本 達人, 外(KISHIMOTO, Tatsuhito et al.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目１６番１０号 オークビル京橋４階 東京セントラル特許事務所内 Tokyo (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

２文字コード及び他の略語については、定期発行される各*PCT*ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) **Title:** EPOXY RESIN COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: エポキシ樹脂組成物及び半導体装置

(57) **Abstract:** Disclosed is an epoxy resin composition for semiconductor encapsulation which exhibits high flame retardance without using a flame retardance-imparting agent, while having excellent solder reflow resistance. Also disclosed is a semiconductor device obtained by sealing a semiconductor element using such an epoxy resin composition. The epoxy resin compositions for semiconductor encapsulation of first, second and third aspects are characterized by containing (A) a phenolaralkyl-type epoxy resin having a phenylene skeleton, (B) a phenolaralkyl-type phenol resin having a biphenylene skeleton, and (D) an inorganic filler as the common essential components. The epoxy resin compositions are further characterized in that the inorganic filler (D) is contained in an amount of 84-92% by weight of the total epoxy resin composition.

(57) 要約: 難燃性付与剤を使用することなく高い難燃性を有し、かつ耐半田リフロー性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる半導体装置を提供することを目的とする。第１、第２及び第３アスペクトの各半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、（Ａ）フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型のエポキシ樹脂、（Ｂ）ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型のフェノール樹脂、及び（Ｄ）無機充填剤を共通の必須成分として含有し、（Ｄ）無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に８４重量％以上、９２重量％以下含むことを特徴とする。

WO 2006/049156 A1

明 細 書

エポキシ樹脂組成物及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いた半導体装置に関するものである。

背景技術

[0002] 従来からダイオード、トランジスタ、IC(集積回路)等の電子部品は、主にエポキシ樹脂組成物を用いて封止されている。特に集積回路では、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、及び溶融シリカ、結晶シリカ等の無機充填材を配合した耐熱性、耐湿性に優れたエポキシ樹脂組成物が用いられている。ところが近年、電子機器の小型化、軽量化、高性能化の市場動向において、半導体素子の高集積化が年々進み、また半導体装置の表面実装化が促進されるなかで、半導体素子の封止に用いられているエポキシ樹脂組成物への要求は益々厳しいものとなってきている。特に半導体装置の表面実装化が一般的になってきている現状では、吸湿した半導体装置が半田リフロー処理時に高温にさらされる。更に、環境負荷物質の撤廃の一環として、鉛を含まない半田への代替が進められており、そのような鉛フリー半田は、従来の半田に比べ融点が高いため表面実装時のリフロー温度は、従来よりも20℃程度高く、260℃での処理が必要とされる。その為、半導体装置が従来以上に高い温度にさらされることになり、半導体素子やリードフレームとエポキシ樹脂組成物の硬化物との界面に剥離が発生したり、半導体装置にクラックを生じたりする等、半導体装置の信頼性を大きく損なうほどの不良が生じ易くなっている。

[0003] また、リードフレームについても脱鉛の観点から、外装半田メッキの代わりに予めNiやNi－Pd、Ni－Pd－Au等でメッキを施したプレプレーティングフレームを用いた半導体装置が増加している。これらのメッキはエポキシ樹脂組成物の硬化物との密着性が著しく悪いという欠点があり、表面実装時に界面において剥離が発生する等の問題が生じており、これらの不良の防止、即ち耐半田リフロー性の向上が求められている。

[0004] 一方、近年環境への配慮から、従来半導体封止材に難燃剤として使用されてきた臭素含有有機化合物等のハロゲン系難燃剤、及び三酸化二アンチモン、四酸化二アンチモン等のアンチモン化合物の使用を制限する動きがあり、それらに代わる難燃化手法が求められている。半導体封止材の代替難燃化手法として、環境への害が少ない水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物を使用する手法が提案されているが、これらは多量に配合しないと期待通りの難燃効果が発現せず、しかも充分な難燃性が得られる程度に配合量を増やすとエポキシ樹脂組成物の成形時の流動性、硬化性及び硬化物の機械強度が低下し、前記の鉛フリー半田実装温度域における耐半田リフロー性を低下させるという問題があった。

[0005] 実装温度の上昇に伴う耐半田リフロー性の低下については、低吸水性のエポキシ樹脂や硬化剤を適用することにより(例えば、特許文献1、2、3参照。)対応がとられてきた。しかし、これらのエポキシ樹脂組成物では耐燃性が不足しているため難燃剤を添加しなければならず、また、前記のようなプレプレーティングフレームに対しての密着性も低く、これらのフレームを使用したパッケージでは特に信頼性が劣るという問題がある。

更に、これらのエポキシ樹脂組成物は架橋密度が低く硬化直後の成形物が軟らかい為、連続成形では金型への樹脂とられ等の成形性での不具合が生じ、生産性を低下させる問題があった。

[0006] 生産性向上への取り組みとしては酸化ポリエチレンを添加する方法(例えば、特許文献4、5参照。)が提案されているが、酸化ポリエチレンのみで十分な離型性を得る為には配合量を多くする必要があり、その場合、密着性の低下を引き起こす。また、酸化ポリエチレンの分散を向上させる目的でジメチルシロキサン構造を主鎖とするエポキシポリエーテルシリコーンを併用する方法が提案されている(例えば、特許文献6参照。)が、ポリエーテル鎖を有するシリコーンオイルは生産面では非常に良好であるが、ポリエーテル鎖により吸湿性が高くなり耐半田リフロー性を低下させる問題があった。

[0007] さらに、低吸水性に加えて、可撓性、難燃性を有するレジンを用いる耐半田リフロー性を向上させる方法が提案されている(例えば、特許文献1、2又は3参照。)が、鉛フ

リー半田を用いた場合にも対応できるようにするために、無機充填剤をより高充填化しようとすると、流動性が不足するという問題が発生するため、実現が困難であった。

以上のような状況から、難燃性付与剤を使用することなく高い耐燃性を有し、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用樹脂組成物の開発が望まれていた。

[0008] 特許文献1:特開平1－275618号公報(第1～5頁)

特許文献2:特開平5－097965号公報(第2～6頁)

特許文献3:特開平5－097967号公報(第2～7頁)

特許文献4:特開平8－258077号公報(第2～9頁)

特許文献5:特開平11－152393号公報(第2～5頁)

特許文献6:特開平5－315472号公報(第2～7頁)

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、上記のような問題点に着目してなされたものであり、その第一の目的は、難燃性付与剤を使用することなく高い耐燃性を有し、かつ耐半田リフロー性に優れ、鉛フリー半田にも対応可能な半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる半導体装置を提供するものである。

[0010] また、本発明の第2の目的は、上記第1の目的を達成することに加えて、さらに、生産性にも優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる半導体装置を提供するものである。

[0011] また、本発明の第3の目的は、上記第1の目的を達成することに加えて、さらに、流動性にも優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる信頼性の高い半導体装置を提供することにある。

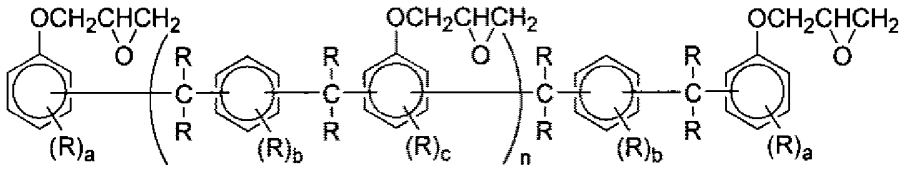
課題を解決するための手段

[0012] 本発明においては、上記第1の目的を達成するために、以下に述べる第1、第2及び第3のアスペクトを提供する。これらのアスペクトのなかで、第2アスペクトは、第1の目的に加えて、第2の目的をも達成し得る。また、第3アスペクトは、第1の目的に加えて、第3の目的をも達成し得る。

[0013] 本発明に係る第1アスペクトの発明は、次のような半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置を提供する。

[0014] [1] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(C)硬化促進剤、(D)無機充填剤、及び(E)トリアゾール系化合物を必須成分とし、(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

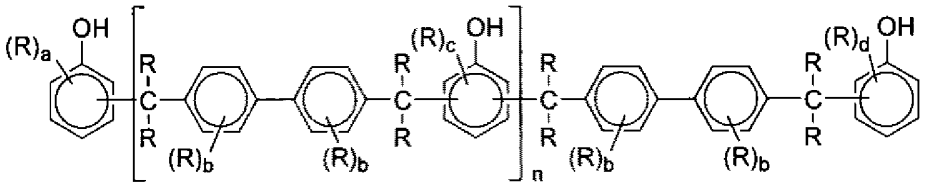
[0015] [化1]



(1)

[0016] (ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0017] [化2]



(2)

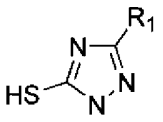
[0018] (ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0019] [2] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である上記第1アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0020] [3] 前記(E)トリアゾール系化合物が1, 2, 4－トリアゾール環を有する化合物である上記第1アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0021] [4] 前記(E)トリアゾール系化合物が一般式(3)で示される化合物である上記第1アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂。

[0022] [化3]



(3)

[0023] (ただし、上記一般式(3)において、R_1は水素原子、又はメルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基、もしくはそれらのいずれかの官能基が付加された炭素数1～5の炭化水素鎖を示す。)

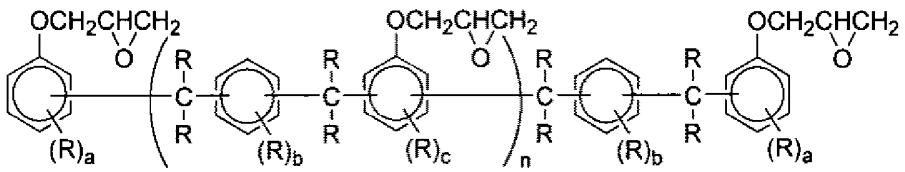
[0024] [5] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂と前記(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂とを予め溶融混合して得られる樹脂を用いる上記第1アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0025] [6] 上記第1アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

[0026] 本発明に係る第2アスペクトの発明は、次のような半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置を提供する。

[0027] [7] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサン、(G)酸化ポリエチレン、及び(D)無機充填剤を必須成分とし、前記(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

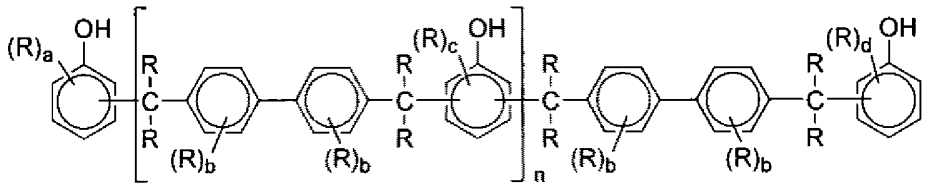
[0028] [化4]



(1)

[0029] (ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0030] [化5]



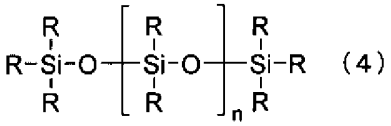
(2)

[0031] (ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0032] [8] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0033] [9] 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンが一般式(4)で示されるオルガノポリシロキサンである上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0034] [化6]



(4)

[0035] (ただし、上記一般式(4)において、Rは少なくとも1つ以上がカルボキシル基を有する炭素数1～40の有機基であり、残余の基は水素、フェニル基、又はメチル基から選ばれる基であり、互いに同一であっても異なっていてもよい。nは平均値で、1～50の正数である。)

[0036] [10] 前記(G)酸化ポリエチレンが高密度ポリエチレンを酸化することで得られるものである上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0037] [11] 前記(G)酸化ポリエチレンの最大粒子径が150μm以下であり、かつ平均粒子径が0.1μm以上、100μm以下である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0038] [12] 前記(G)酸化ポリエチレンの滴点が100℃以上、130℃以下である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0039] [13] 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンとして、あらかじめ

エポキシ樹脂と硬化促進剤によって反応させたカルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンを含む上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

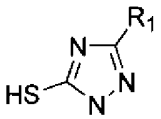
[0040] ［14］ 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンと前記(G)酸化ポリエチレンとの重量比(F)／(G)が5／1～1／5である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0041] ［15］ (E)トリアゾール系化合物を含む上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0042] ［16］ 前記(E)トリアゾール系化合物が1、2、4－トリアゾール環を有する化合物である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0043] ［17］ 前記(E)トリアゾール系化合物が一般式(3)で示される化合物である上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0044] [化7]



(3)

[0045] (ただし、上記一般式(3)において、R_1は水素原子、又はメルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基、もしくはそれらのいずれかの官能基が付加された炭素数1～5の炭化水素鎖を示す。)

[0046] ［18］ 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂と前記(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂とを予め溶融混合して得られる樹脂を用いる上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

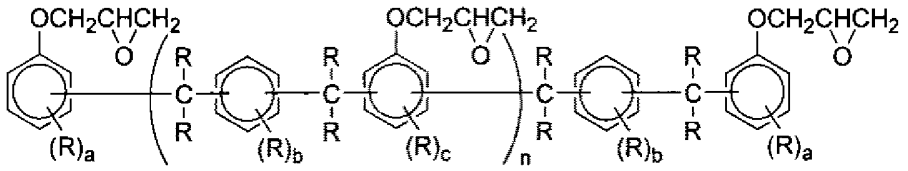
[0047] ［19］ 上記第2アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

[0048] 本発明に係る第3アスペクトの発明は、次のような半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置を提供する。

[0049] ［20］ (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(H)一般式(5)で示される硬化促進剤、(I)シランカップリング剤、及び(D)無機充填剤を必須成分として含むエポキシ樹脂組成物であって、該エポキシ樹脂組

成物中に、前記(H)一般式(5)で示される硬化促進剤が0．05重量%以上、0．5重量%以下、前記(D)無機充填剤が84重量%以上、92重量%以下の割合で含まれることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

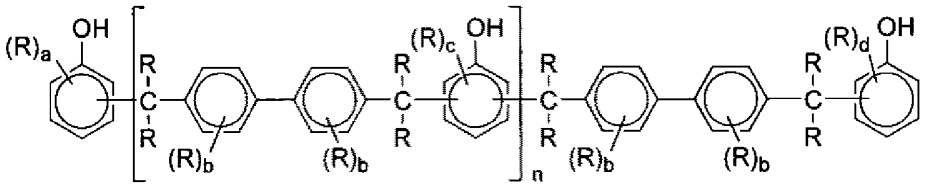
[0050] [化8]



(1)

[0051] (ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一であっても異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

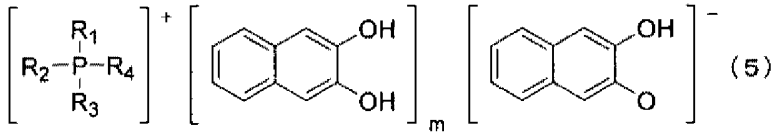
[0052] [化9]



(2)

[0053] (ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一であっても異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0054] [化10]



(5)

[0055] (ただし、上記一般式(5)において、Pはリン原子、R_1～R_4は芳香環を含む炭素数6～20の有機基又は炭素数1～20の脂肪族炭化水素基を表し、互いに同一であっても異なっていても良い。mは0≦m≦2の数を示す。)

[0056] [21] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である上記第3アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[0057] [22] 上記第3アスペクトの半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素

子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

発明の効果

[0058] 本発明の第1アスペクトによれば、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつ半導体素子、リードフレーム等の各種基材との密着性、特にNi、Ni－Pd、Ni－Pd－Au等のプレプレーティングフレームとの密着性に優れた特性を有し、吸湿後の半田処理においても半導体装置にクラックや基材との剥離が発生しない耐半田リフロー性に優れる特性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる半導体装置を得ることができる。

[0059] 本発明の第2アスペクトによれば、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつ半導体素子、リードフレーム等の各種基材との密着性、特にトリアゾール系化合物をエポキシ樹脂組成物に添加することによりNi、Ni－Pd、Ni－Pd－Au等のプレプレーティングフレームとの密着性に優れた特性を有し、吸湿後の半田処理においても半導体装置にクラックや基材との剥離が発生せず耐半田リフロー性に優れ、さらに、離型性、連続成形性、成形品外観、金型汚れ等の課題を解決することができる半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる半導体装置を得ることができる。

[0060] 本発明の第3アスペクトによれば、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL－94のV－0となり、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる信頼性の高い半導体装置を高い生産性で得ることができる。

このため、本発明の第1、第2及び第3アスペクトにより提供される半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、工業的な樹脂封止型半導体装置、特に鉛フリー半田を使用する表面実装用の樹脂封止型半導体装置の製造に好適に用いることができる。

発明を実施するための最良の形態

[0061] 本発明の第1、第2及び第3アスペクトを以下において順次、説明する。

＜第1アスペクト＞

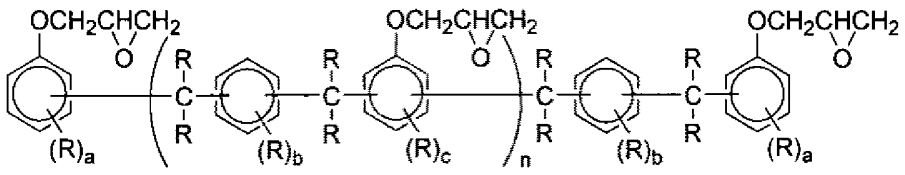
本発明の第1アスペクトは、(A)一般式(1)で示されるフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型のエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型のフェノール樹脂、(C)硬化促進剤、(D)無機充填剤、及び(E)トリアゾール系化合物を必須成分とし、(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことにより、ハロゲン系難燃剤、アンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用せず、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつ耐半田リフロー性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供する。

以下、各成分について詳細に説明する。

[0062] 本発明に用いられる一般式(1)で示されるエポキシ樹脂は、樹脂骨格が疎水性を示すので硬化物が低吸湿性を示すと共に、硬化物の架橋点間距離が長くなるため半田リフロー温度での弾性率が低い特長を有し、このため発生する応力が低く密着性にも優れるため、耐半田リフロー性が良好であり好ましい。更に、樹脂骨格に占める芳香族環含有率が高いために、樹脂そのものの難燃性も高い。

一般式(1)のRは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数、nは平均値で0又は10以下の正数であるが、これらの内では硬化性の点から式(1a)の樹脂等が好ましい。nが上記上限値を越えると樹脂の粘度が増大し、成形時の樹脂組成物の流動性が劣るため、より一層の低吸湿化のための無機充填材の高充填化が不可能となるので好ましくない。

[0063] [化11]

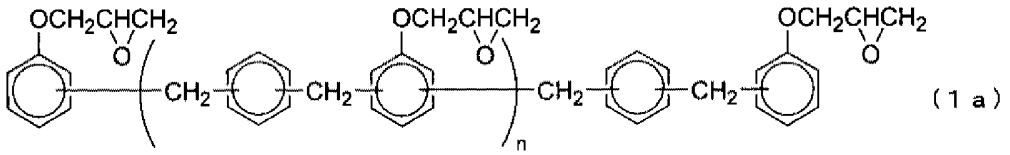


(1)

[0064] (ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0

～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。）

[0065] [化12]



（1a）

[0066] （ただし、上記式（1a）において、nは平均値で、0又は10以下の正数。）

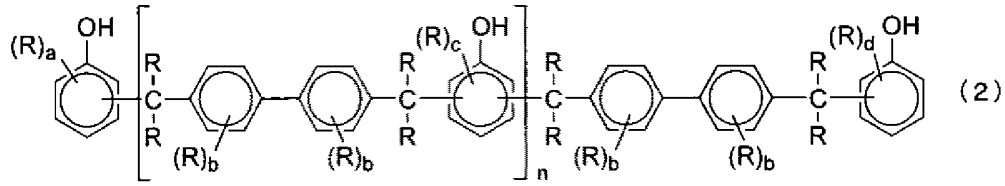
[0067] また本発明では、一般式（1）で示されるエポキシ樹脂を用いることによる特徴を損なわない範囲で、他のエポキシ樹脂と併用することができる。併用するエポキシ樹脂としては1分子内にエポキシ基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を言い、その分子量、分子構造を特に限定するものではないが、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂（フェニレン骨格、ビフェニル骨格等を有する）、ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、アルキル変性トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリアジン核含有エポキシ樹脂等が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。

他のエポキシ樹脂を併用する場合の配合量としては、全エポキシ樹脂に対して、一般式（1）で示されるエポキシ樹脂が、70～100重量%であることが好ましい。一般式（1）で示されるエポキシ樹脂の含有量が下限値を下回ると、吸湿率の増大、耐半田リフロー性の低下が起こる可能性がある。

[0068] 本発明に用いられる一般式（2）で示されるフェノール樹脂は、フェノール性水酸基間に疎水性で剛直なビフェニレン骨格を有しており、これを用いたエポキシ樹脂組成物の硬化物は低吸湿性を示すと共に、硬化物の架橋点間距離が長くなるためTgを超えた高温域での弾性率が低いという特長を有し、このため発生する応力が低く密着性にも優れるため、耐半田リフロー性が良好であり好ましい。またこれらのフェノール樹脂は樹脂骨格に占める芳香族環含有率が高いために、樹脂そのものの難燃性も高く、架橋密度が低い割には耐熱性が高いという特徴を有している。

一般式(2)のRは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数、nは平均値で0又は10以下の正数であるが、これらの内では硬化性の点から式(2a)の樹脂等が好ましい。nが上記上限値を越えると樹脂の粘度が増大し、成形時の樹脂組成物の流動性が劣り、より一層の低吸湿化のための無機充填材の高充填化が不可能となるので好ましくない。

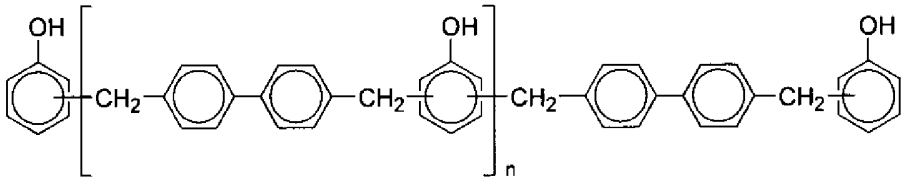
[0069] [化13]



(2)

[0070] (ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0071] [化14]



(2a)

[0072] (ただし、上記式(2a)において、nは平均値で0又は10以下の正数。)

[0073] 本発明では、一般式(2)のフェノール樹脂を配合することによる特徴を損なわない範囲で、他のフェノール樹脂を併用することができる。併用するフェノール樹脂は1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を言い、その分子量、分子構造を特に限定するものではないが、例えばフェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、トリフェノールメタン樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂等が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。

他のフェノール樹脂を併用する場合の配合量としては、全フェノール樹脂に対して

、一般式(2)で示されるフェノール樹脂が70～100重量%であることが好ましい。一般式(2)で示されるフェノール樹脂の含有量が下限値を下回ると、吸湿率の増大、耐半田リフロー性の低下、耐燃性の低下が起こる可能性がある。

[0074] 本発明に用いられる全フェノール樹脂のフェノール性水酸基数(b)に対する全エポキシ樹脂のエポキシ基数(a)の当量比(a／b)としては、好ましくは0．5～2であり、特に0．7～1．5がより好ましい。上記範囲を外れると、耐湿性、硬化性などが低下する恐れがあるので好ましくない。

[0075] 本発明に用いられる一般式(1)で示されるエポキシ樹脂(A)と一般式(2)で示されるフェノール樹脂Bとは、予め溶融混合して用いることにより分散性を向上させることができる。また、特に一般式(1)で示されるエポキシ樹脂(A)として軟化点が45℃以下のものを使用する場合には、上記のように一般式(2)で示されるフェノール樹脂(B)と予め溶融混合することにより、溶融混合物の軟化点を元の一般式(1)で示されるエポキシ樹脂(A)の軟化点より高くすることができ、原料の取り扱い性を向上させることができる。

[0076] 本発明に用いられる硬化促進剤は、エポキシ基とフェノール性水酸基との架橋反応を促進させるものであればよく、一般に封止材料に使用するものを用いることができる。例えば、1、8－ジアザビシクロ(5，4，0)ウンデセン－7等のジアザビシクロアルケン及びその誘導体、トリフェニルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン等の有機ホスフィン類、2－メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレート等のテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート等が挙げられ、これらは単独でも混合して用いても差し支えない。

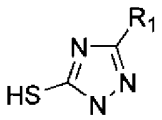
[0077] 本発明に用いられる無機充填材の種類については特に制限はなく、一般に封止材料に用いられているものを使用することができる。例えば溶融シリカ、結晶シリカ、2次凝集シリカ、アルミナ、チタンホワイト、水酸化アルミニウム、タルク、クレー、ガラス繊維等が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。特に溶融シリカが好ましい。溶融シリカは、破砕状、球状のいずれでも使用可能であるが、含有量を高め、且つエポキシ樹脂組成物の溶融粘度の上昇を抑えるためには、球状シリカを主に用いる方がより好ましい。更に球状シリカの含有量を高めるために

は、球状シリカの粒度分布をより広くとるよう調整することが望ましい。全無機充填材の含有量は、成形性、信頼性のバランスから全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下であることが必須であり、好ましくは87重量%以上、92重量%以下である。上記の下限値未満だと、低吸湿性、低熱膨張性が得られず耐半田リフロー性が不十分となる恐れがあるので好ましくない。また、上記の上限値を超えると流動性が低下し、成型時に充填不良等が生じたり、高粘度化による半導体装置内の金線変形等の不都合が生じたりする恐れがあるので好ましくない。

[0078] 本発明に用いるトリアゾール系化合物は、窒素原子を含んだ五員環構造を有する化合物である。トリアゾール系化合物は樹脂組成物とプレプレーティングフレーム表面との親和性を改善し、界面の剥離を抑える効果があるため、樹脂組成物の硬化物で半導体素子を封止してなる半導体装置の耐湿信頼性、耐半田リフロー性を改善させる役割を果たす。従って、半導体装置の信頼性が向上する。

本発明で用いられるトリアゾール系化合物としては、一般式(3)で示される化合物であることが好ましい。トリアゾール系化合物がメルカプト基をまったく含んでいないと金属との反応性がないため、半導体装置の信頼性が向上しない可能性がある。

[0079] [化15]



(3)

[0080] (ただし、上記一般式(3)において、R_1は水素原子、又は、メルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基、もしくはそれらのいずれかの官能基が付加された炭素数1～5の炭化水素鎖を示す。)

[0081] 一般式(3)のR_1が炭素数1～5の炭化水素鎖であるとき、該R_1はメルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基を有していても良い。

本発明においてトリアゾール系化合物の添加量は、特に限定するものではないが、樹脂組成物全体に対して、0.01～2重量%であることが好ましい。上記の下限値を下回ると、フレームとの密着性を向上させる効果が低下する可能性がある。また、上記の上限値を超えると、組成物の流動性が低下し、耐半田リフロー性が低下する可

能性がある。

[0082] 本発明のエポキシ樹脂組成物は、前記(A)～(E)成分の他、必要に応じて、酸化ビスマス水和物等の無機イオン交換体、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のカップリング剤、カーボンブラック、ベンガラ等の着色剤、シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力成分、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸及びその金属塩類もしくはパラフィン等の離型剤、酸化防止剤等の各種添加剤を適宜配合してもよい。

更に、必要に応じて無機充填材をカップリング剤やエポキシ樹脂あるいはフェノール樹脂で予め処理して用いてもよく、処理の方法としては、無機充填材と樹脂を、溶媒を用いて混合した後に溶媒を除去する方法や、樹脂を直接無機充填材に添加し、混合機を用いて処理する方法等がある。

[0083] 本発明の第1アスペクトに係るエポキシ樹脂組成物は、(A)～(E)成分、その他の添加剤等を、ミキサーを用いて常温混合した後、ロール、押出機等の混練機で溶融混練し、冷却後粉砕して得られる。

第1アスペクトに係るエポキシ樹脂組成物を用いて、半導体素子等の電子部品を封止し、半導体装置を製造するには、トランスファーモールド、コンプレッションモールド、インジェクションモールド等の従来からの成形方法で硬化成形すればよい。

[0084] 以上に述べた第1アスペクトにより得られる半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつこれを用いて得られた半導体装置は、樹脂組成物の硬化物とリードフレーム、特にメッキを施された銅リードフレーム(銀メッキリードフレーム、ニッケルメッキリードフレーム、ニッケル／パラジウム合金に金メッキが施されたプレプリーティングフレーム等)との密着性に優れており、半導体実装時において優れた耐半田リフロー性を示す。従って、このエポキシ樹脂組成物は、樹脂封止型半導体装置、特に表面実装用の樹脂封止型半導体装置の工業的な製造に好適に用いることができる。

[0085] ＜第2アスペクト＞

本発明の第2アスペクトは、(A)一般式(1)で示されるフェニレン骨格を有するフェ

ノールアラルキル型のエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型のフェノール樹脂、(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサン、(G)酸化ポリエチレン、及び(D)無機充填剤を必須成分とし、前記(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことによりハロゲン系難燃剤、アンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用せず、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつ耐半田リフロー性、生産性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供する。

また、第2アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、(E)トリアゾール系化合物を含有することが好ましい。

以下、各成分について詳細に説明する。

[0086] 第2アスペクトに用いられる一般式(1)で示されるエポキシ樹脂(A)、一般式(2)で示されるフェノール樹脂(B)、無機充填材(D)、及び、トリアゾール系化合物(E)としては、前述した第1アスペクトで用いられるものと同じものが、同じように用いられるので、説明を省略する。

[0087] 第2アスペクトにおいてカルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンは、1分子中に1個以上のカルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンであり、酸化ポリエチレンと併用する必要がある。カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンを単独で使用した場合、離型性が不十分となり、連続成形性が低下する。酸化ポリエチレンを単独使用した場合は離型性が不十分で、十分な離型性を得る為には配合量を多くする必要性があり、その場合、密着性の低下により半田耐熱性が低下し、かつ成形品の外観も悪い。

ここで、半田耐熱性とは、半田処理時に求められる封止樹脂の耐熱性を意味するものであり、該半田処理には半田リフローだけでなく半田浸漬も含まれる。

カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンと酸化ポリエチレンと併用することにより、酸化ポリエチレンを相溶化させることができ、酸化ポリエチレンの配合量が少なくても離型性が向上し、外観と離型性を両立でき、連続成形が良好で半田耐熱性の低下も引き起こさない。併用すべき上記2成分の配合割合は、重量比で5／1～1／5が望ましく、この範囲が最も効果が高い。

[0088] カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンとしては、一般式(4)で示されるオルガノポリシロキサンが望ましい。一般式(4)の式中のRのうち、少なくとも1個以上がカルボキシル基を有する炭素数1～40の有機基であり、残余のRは、水素、フェニル基、又はメチル基から選ばれる基であり、互いに同一であっても異なっていてもよい。

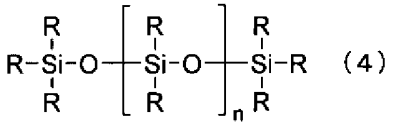
カルボキシル基を有する有機基の炭素数が上記の上限を超えるとレジンとの相溶性が悪化し、成形品の外観が悪化する恐れがある。また、一般式(4)中のnは平均値で、1～50の正数である。nの値が上限値を超えるとオルガノポリシロキサンそれ自体の粘度が高くなり流動性が悪化する恐れがある。

一般式(4)で示されるオルガノポリシロキサンを使用すると、流動性の低下を引き起こさず、成形品の外観が特に良好になる。更に、このオルガノポリシロキサンをエポキシ樹脂と硬化促進剤により予め溶融・反応させることで連続成形後の型汚れが発生し難く、連続成形性が極めて良好になる。ここで言う硬化促進剤とは、樹脂組成物中でのカルボキシル基とエポキシ基の硬化反応を促進させるものであればよく、後述するエポキシ樹脂のエポキシ基とフェノール樹脂のフェノール性水酸基との硬化反応を促進させる硬化促進剤と同じものを用いることができる。

ここで有機基とは、典型的な例は炭化水素基であるが、その構造の大部分が主に炭化水素構造により占められているが、炭素又は水素以外の異種原子を含んでいても良い基である。異種原子は、例えば、カルボキシル基や水酸基、メルカプト基、アミノ基などのように有機基の末端又は途中にぶら下がった官能基や、エーテル結合、エステル結合、アミド結合などの炭化水素鎖の途中に介在する官能基として存在していても良い。

尚、一般式(4)で示されるオルガノポリシロキサンのカルボキシル基を有する有機基の炭素数とは、有機基中の炭化水素基とカルボキシル基の炭素数を合計したものを指す。

[0089] [化16]



[0090] (ただし、上記一般式(4)において、Rは少なくとも1つ以上がカルボキシル基を有する炭素数1～40の有機基であり、残余の基は水素、フェニル基、又はメチル基から選ばれる基であり、互いに同一であっても異なっていてもよい。nは平均値で、1～50の正数である。)

[0091] カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンの配合量は、全エポキシ樹脂組成物中0．01重量%以上、3重量%以下が好ましい。上記の下限を下回ると効果が不十分で離型剤による成形品外観汚れを抑えることができない恐れがあり、上記の上限を超えるとオルガノポリシロキサン自体により、成形品の外観が汚れる恐れがある。

また、カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンを添加する効果を損なわない範囲であれば、他のオルガノポリシロキサンを併用することができる。

[0092] 第2アスペクトで用いられる酸化ポリエチレンは、カルボン酸等からなる極性基と長い炭素鎖からなる非極性基を有しているものである。第2アスペクト用の酸化ポリエチレンの製法については、特に限定するものではないが、例えば、高密度ポリエチレンを酸化することで得られるものなどが好ましい。酸化ポリエチレンワックスの滴点は60℃以上、140℃以下が好ましく、より好ましくは100℃以上、130℃以下である。滴点が上記の下限値未満だと熱安定性が十分でないため、連続成形時に金型内で酸化ポリエチレンワックスの焼き付きが発生し、離型性が悪化し、連続成形性を損なう恐れがある。上記の上限値を越えるとエポキシ樹脂組成物の硬化の際、酸化ポリエチレンワックスが十分に溶融しないことにより、酸化ポリエチレンワックスの分散性が低下し、酸化ポリエチレンワックスの硬化物表面への偏析による金型汚れや樹脂硬化物外観の悪化を引き起こす恐れがある。

[0093] 酸化ポリエチレンの最大粒径は150μm以下であることが好ましく、150μmより大きいと成形時の溶融性が悪く材料が不均一となり、離型性の悪化や成形品外観不良を起こす恐れがある。

酸化ポリエチレンの平均粒径は0．1μm以上、100μm以下が好ましい。上記の下限値未満だと酸化ポリエチレンワックスとエポキシ樹脂マトリックスとの相溶性が良すぎるため、硬化物表面に染み出すことが出来ず、十分な離型付与効果が得られない恐れがある。上記の上限値を越えると酸化ポリエチレンワックスが偏析し、金型汚

れや樹脂硬化物外観の悪化を引き起こす恐れがある。

これらの最大粒径及び平均粒径は、レーザー回折式の粒度分布測定装置で測定するのが好ましく、例えば、(株)島津製作所製のレーザー回折式粒度分布測定装置SALD－7000(レーザー波長:405μm)等を用いて測定することができる。ここで、平均粒径の測定モードは個数平均粒径を表わす。

酸化ポリエチレンワックスの含有量は、上記の全エポキシ樹脂組成物中に0．01重量%以上、1重量%以下であることが好ましい。上記の下限値未満だと離型性不足となる恐れがある。上記の上限値を越えるとリードフレーム部材との密着性が損なわれ、半田処理時に部材との剥離が発生する恐れがある。また、金型汚れや樹脂硬化物外観の悪化を引き起こす恐れがある。

[0094] 第2アスペクトに用いられる酸化ポリエチレンを添加する効果を損なわない範囲であれば、それ以外にも他の離型剤を併用することもできる。例えば、カルナバワックス等の天然ワックス、ステアリン酸亜鉛等の高級脂肪酸の金属塩類、脂肪酸エステル類等が挙げられる。

[0095] 第2アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、(A)、(B)、(D)、(F)及び(G)成分から構成され、好ましくは更に(E)成分を含有するが、必要に応じてエポキシ基とフェノール性水酸基との硬化反応を促進させる硬化促進剤を添加することができる。硬化促進剤としては、例えば、1，8－ジアザビシクロ(5，4，0)ウンデセン－7等のジアザビシクロアルケン及びその誘導体、トリフェニルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン等の有機ホスフィン類、2－メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレート等のテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート等が挙げられ、これらを単独でも混合して添加しても差し支えない。

また、エポキシ樹脂組成物には、上記成分以外にも、酸化ビスマス水和物等の無機イオン交換体、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のカップリング剤、カーボンブラック、ベンガラ等の着色剤、シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力成分、酸化防止剤等の各種添加剤を適宜配合してもよい。更に、必要に応じて無機充填剤をカップリング剤やエポキシ樹脂あるいはフェノール樹脂等の処理剤で予め処理して用いてもよい。処理の方法としては、無機充填剤と処理剤とを溶媒を用いて混

合した後に溶媒を除去する方法や、処理剤を直接無機充填剤に添加し、混合機を用いて処理する方法等がある。

[0096] 第2アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、上記各成分、及び、その他の添加剤等をミキサーを用いて常温混合した後、ロール、押出機等の混練機で溶融混練し、冷却後粉砕して得られる。

第2アスペクトのエポキシ樹脂組成物を用いて、半導体素子等の電子部品を封止し、半導体装置を製造するには、トランスファーモールド、コンプレッションモールド、インジェクションモールド等の従来からの成形方法で硬化成形すればよい。

[0097] 以上に述べた第2アスペクトにより得られる半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL－94のV－0であり、かつこれを用いて得られた半導体装置は、樹脂組成物の硬化物とリードフレーム、特にトリアゾール系化合物を添加することによりメッキを施された銅リードフレーム(銀メッキリードフレーム、ニッケルメッキリードフレーム、ニッケル／パラジウム合金に金メッキが施されたプレプリーティングフレーム等)との密着性に優れており、半導体実装時において優れた耐半田リフロー性を示し、更に生産性にも優れる。従って、第2アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、樹脂封止型半導体装置、特に表面実装用の樹脂封止型半導体装置の工業的な製造に好適に用いることができる。

[0098] ＜第3アスペクト＞

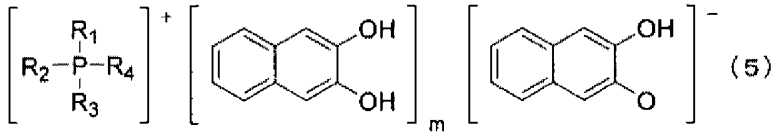
本発明の第3アスペクトは、(A)前記一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)前記一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(H)前記一般式(5)で示される硬化促進剤、(I)シランカップリング剤、及び(D)無機充填剤を必須成分として含むエポキシ樹脂組成物であって、該エポキシ樹脂組成物中に、前記(H)成分が0．05重量%以上、0．5重量%以下、(D)成分が84重量%以上、92重量%以下の割合で含まれることにより、ハロゲン系難燃剤、アンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく難燃グレードがUL－94のV－0となり、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供する。

以下、各成分について詳細に説明する。

[0099] 第3アスペクトにおいて、一般式(1)で示されるエポキシ樹脂(A)、一般式(2)で示されるフェノール樹脂(B)、及び、無機充填材(D)としては、前述した第1アスペクトで用いられるものと同じものが、同じように用いられるので、説明を省略する。

[0100] 一般式(5)で示される硬化促進剤(H)は、テトラ置換ホスホニウムとジヒドロキシナフタレンとの分子化合物であり、エポキシ樹脂組成物の貯蔵時の保管安定性と封止成形時の速硬化性とを両立させることができるものである。一般式(5)で示される硬化促進剤(H)は、全エポキシ樹脂組成物に対し、0.05重量%以上、0.5重量%以下の割合で含まれることが必須であるが、0.1重量%以上、0.4重量%以下の割合で含まれることがより好ましい。上記の範囲内であると、エポキシ樹脂組成物の硬化性の低下を抑えることができ、また封止成形時における流動性の低下や、充填不良、金線変形といった問題の発生を抑えることができる。

[0101] [化17]



(5)

[0102] (ただし、上記一般式(5)において、Pはリン原子、R_1～R_4は芳香環を含む炭素数6～20の有機基又は炭素数1～20の脂肪族炭化水素基を表し、互いに同一であっても異なっていても良い。mは0≦m≦2の数を示す。)

[0103] また、第3アスペクトにおいては、一般式(5)で示される硬化促進剤(C)とともに、必要に応じて一般に封止材料に使用されているエポキシ基とフェノール性水酸基との硬化反応を促進させる硬化促進剤を併用しても構わない。併用することができる硬化促進剤としては、例えば、1,8－ジアザビシクロ(5,4,0)ウンデセン－7等のジアザビシクロアルケン及びその誘導体、トリブチルアミン、ベンジルジメチルアミン等のアミン系化合物、テトラフェニルホスホニウム・テトラナフトイックアシッドボレート、トリフェニルホスフィン等の有機リン系化合物等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの併用可能な硬化促進剤は単独で用いても2種類以上を併用してもよい。これらの内では、特に1,8－ジアザビシクロ(5,4,0)ウンデセン－7が、各種基

材に対する密着性の向上のために有効であり、またテトラフェニルホスホニウム・テトラナフトイックアシッドボレートは、エポキシ樹脂組成物の常温での保管特性(保管安定性)を大幅に向上させる効果がある。

[0104] シランカップリング剤(I)は、エポキシシラン、アミノシラン、ウレイドシラン、メルカプトシラン等に特に限定されず、エポキシ樹脂組成物と無機充填剤との間で反応し、エポキシ樹脂組成物と無機充填剤の界面強度を向上させるものであれば、いかなるシランカップリング剤でもよい。

また、シランカップリング剤(I)は、一般式(5)で示される硬化促進剤(H)のような芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物と比較的安定な中間体を形成するため、一般式(5)で示される硬化促進剤(H)の硬化遅延効果を発現し、エポキシ樹脂組成物の貯蔵時の保管安定性、及び封止成形時の粘度特性と流動特性を著しく改善させることができる。このため、シランカップリング剤(I)は一般式(5)で示される硬化促進剤(H)の効果を充分に得るためには必須である。これらのシランカップリング剤(I)は単独で用いても、2種類以上を併用してもよい。シランカップリング剤(I)の配合量は、全エポキシ樹脂組成物中0.01重量%以上、1重量%以下が好ましく、より好ましくは0.05重量%以上、0.8以下、特に好ましくは0.1重量%以上、0.6重量%以下である。シランカップリング剤(I)の配合量が上記の範囲内であると、一般式(5)で示される硬化促進剤(H)の効果を充分に発揮することができ、またエポキシ樹脂組成物の硬化物と各種基材との密着性低下による半導体装置(以下、「半導体パッケージ」又は単に「パッケージ」ともいう。)における耐半田クラック性の低下を抑えることができる。或いは、エポキシ樹脂組成物の吸水性の上昇による半導体パッケージの耐半田クラック性の低下も抑えることができる。

[0105] 第3アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、上記の各成分から構成されるが、必要に応じてカーボンブラック、ベンガラ等の着色剤、シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力成分、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸及びその金属塩類もしくはパラフィン等の離型剤、酸化ビスマス等水和物等の無機イオン交換体、酸化防止剤等の各種添加剤を適宜配合してもよい。更に、必要に応じて無機充填剤をカップリング剤やエポキシ樹脂あるいはフェノール樹脂等の処理剤で予め処理して用いてもよい。

処理の方法としては、無機充填剤と処理剤とを溶媒を用いて混合した後に溶媒を除去する方法や、処理剤を直接無機充填剤に添加し、混合機を用いて処理する方法等がある。

[0106] 第3アスペクトのエポキシ樹脂組成物は、上記の各成分、その他の添加剤等を、ミキサーを用いて常温混合した後、ロール、押出機等の混練機で溶融混練し、冷却後粉砕して得ることができる。

第3アスペクトのエポキシ樹脂組成物を用いて、半導体素子等の電子部品を封止し、半導体装置を製造するには、トランスファーモールド、コンプレッションモールド、インジェクションモールド等の従来からの成形方法で硬化成形すればよい。

実施例

[0107] 以下に本発明の実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。配合割合は重量部による表示とする。

以下において、実施例シリーズ(1)は第1アスペクトに関し、実施例シリーズ(2)は第2アスペクトに関し、実施例シリーズ(3)は第3アスペクトに関するものである。

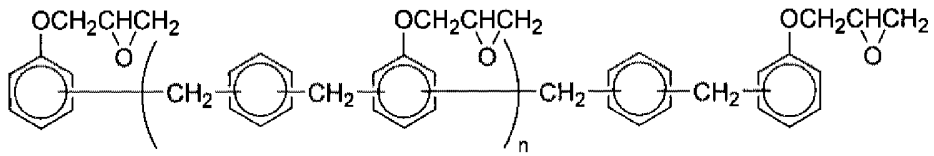
[0108] 実施例シリーズ(1)

＜実施例(1)－1＞

以下に示す各成分を、ミキサーを用いて混合した後、表面温度が95℃と25℃の2本ロールを用いて混練し、冷却後粉砕してエポキシ樹脂組成物を得た。得られたエポキシ樹脂組成物の特性を以下の方法で評価した。結果を表1に示す。

[0109] エポキシ樹脂1:式(1a)で示されるエポキシ樹脂(軟化点44℃、エポキシ当量234、以下E－1という) 6．21重量部

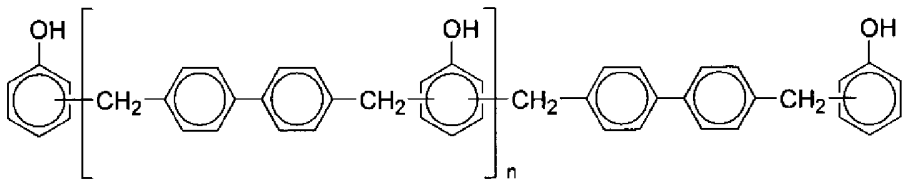
[0110] [化18]



(1a)

[0111] フェノール樹脂1:式(2a)で示されるフェノール樹脂(軟化点107℃、水酸基当量203、以下H－1という) 4．89重量部

[0112] [化19]



（２ａ）

[0113] 1，8－ジアザビシクロ(5，4，0)ウンデセン－7(以下、DBUという)

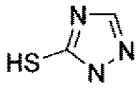
0．20重量部

溶融球状シリカ(平均粒径25μm) 88．00重量部

式(3a)で示される1，2，4－トリアゾール－5－チオール(試薬)

0．10重量部

[0114] [化20]



（３ａ）

[0115] カルナバワックス 0．20重量部

カーボンブラック 0．40重量部

[0116] ＜評価方法＞

スパイラルフロー:EMMI－1－66に準じたスパイラルフロー測定用の金型を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．3MPa、硬化時間120秒の条件でスパイラルフローを測定した。測定単位は「cm」であった。この測定値が80cm以下であるとパッケージ未充填(充填不良)などの成形不良が生じる可能性がある。

[0117] 密着強度:トランスファー成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．8MPa、硬化時間120秒の条件で、リードフレーム上に寸法が2mm×2mm×2mmの密着強度試験片を1水準当たり10個成形した。ここで、「1水準」とは、エポキシ樹脂組成物1種類と、フレーム1種類の組み合わせのことを意味する。リードフレームには銅フレームに銀メッキしたもの(フレーム1)とNiPd合金フレームに金メッキしたもの(フレーム2)の2種類を用いた。その後、自動せん断強度測定装置PC2400(DAGE社製)を用いて、エポキシ樹脂組成物の硬化物とリードフレームとの間のせん断強度を測定した。試験片10個のせん断強度の平均値を表示した。測定単位は、N／mm^2であった。

[0118] 難燃性:トランスファー成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．8Mpa、硬化時間120秒で、寸法が127mm×12．7mm×1．6mmの試験片を成形し、アフターベークとして175℃、8時間処理した後、UL－94垂直法に準じてΣF、Fmaxを測定し、難燃性を判定した。

[0119] 耐半田リフロー性:トランスファー成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．6MPa、硬化時間90秒で80pQFP(80pinプリプレーティングフレーム、NiPd合金にAuメッキしたもの、パッケージ外寸:14mm×20mm×2mm厚、パッドサイズ:8mm×8mm、チップサイズ:7mm×7mm)を成形し、175℃で8時間の後硬化をした。得られたパッケージを85℃、相対湿度60％の環境下で168時間加湿処理した。その後このパッケージを260℃の半田槽に10秒間浸漬した。半田に浸漬させたパッケージ10個を、超音波探傷装置を用いて観察し、半導体素子とエポキシ樹脂組成物の硬化物との界面に剥離が発生した割合、すなわち剥離発生率[(剥離発生パッケージ数)／(全パッケージ数)×100]を％で表示した。

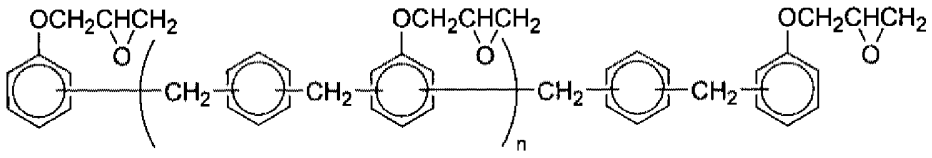
[0120] ＜実施例(1)－2～(1)－12、比較例(1)－1～(1)－6＞

表1、2、3の配合に従い、実施例(1)－1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を得て、実施例(1)－1と同様にして評価した。結果を表1、2、3に示す。

実施例(1)－1以外で用いた原材料を以下に示す。

エポキシ樹脂2:式(1a)で示されるエポキシ樹脂(軟化点55℃、エポキシ当量236、以下E－2という)

[0121] [化21]



(1a)

[0122] エポキシ樹脂3:オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂EOCN－1020 62(日本化薬(株)製、エポキシ当量200、軟化点62℃、以下E－3という)

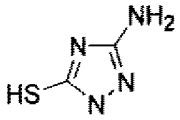
フェノール樹脂2:パラキシレン変性ノボラック型フェノール樹脂XLC－4L(三井化学(株)製、水酸基当量168、軟化点62℃、以下H－2という)

溶融混合物A:E－1(55．9重量部)とH－1(44．1重量部)を120℃で30分間、

溶融混合することにより得られた混合物。

[0123] 式(3b)で示される3－アミノ－1，2，4－トリアゾール－5－チオール(試薬)

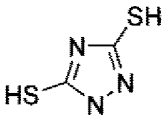
[0124] [化22]



(3b)

[0125] 式(3c)で示される3，5－ジメルカプト－1，2，4－トリアゾール(試薬)

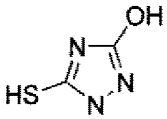
[0126] [化23]



(3c)

[0127] 式(3d)で示される3－ヒドロキシ－1，2，4－トリアゾール－5－チオール(試薬)

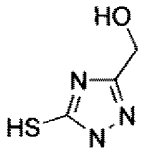
[0128] [化24]



(3d)

[0129] 式(3e)で示される5－メルカプト－1，2，4－トリアゾール－3－メタノール(試薬)

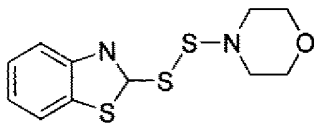
[0130] [化25]



(3e)

[0131] 式(6)で示される2－(4'－モルホリノジチオ)ベンゾチアゾール(川口化学)

[0132] [化26]



(6)

[0133] [表1]

表 1

		実施例					
		(1)-1	(1)-2	(1)-3	(1)-4	(1)-5	(1)-6
E－1		6.21		4.70	6.35	6.21	6.21
E－2			6.23				
E－3				1.40			
H－1		4.89	4.87	5.00	3.55	4.89	4.89
H－2					1.20		
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール（式(3a)）		0.10	0.10	0.10	0.10		
3-アミノ-1,2,4-トリアゾール-5-チオール（式(3b)）						0.10	
3,5-ジメルカプト-1,2,4-トリアゾール（式(3c)）							0.10
カルナバワックス		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー（cm）		95	90	85	90	85	90
密着強度（N／mm^2）	フレーム1	12.5	12.0	11.5	11.5	13.5	11.0
	フレーム2	12.0	11.5	10.5	11.0	13.0	11.0
難燃性（UL－94）		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率(%)	0	0	0	0	0	0
	インナーリード部剥離発生率（%）	0	0	0	0	0	0

[0134] [表2]

表 2

		実施例					
		(1)-7	(1)-8	(1)-9	(1)-10	(1)-11	(1)-12
E－1		6.21	6.21	5.43		7.88	4.53
H－1		4.89	4.89	4.27		6.22	3.57
溶融混合物A					11.10		
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	85.00	91.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール（式(3a)）				1.50	0.10	0.10	0.10
3-ヒドロキシ-1,2,4-トリアゾール-5-チオール（式(3d)）		0.10					
5-メルカプト-1,2,4-トリアゾール-3-メタノール（式(3e)）			0.10				
カルナバワックス		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー（cm）		95	95	85	90	110	80
密着強度（N／mm^2）	フレーム1	9.0	9.5	14.5	11.5	13.0	9.0
	フレーム2	9.0	9.0	14.0	11.5	13.0	9.0
難燃性（UL－94）		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率(%)	0	0	10	0	0	0
	インナーリード部剥離発生率（%）	0	0	0	0	10	0

[0135] [表3]

表 3

		比較例					
		(1)-1	(1)-2	(1)-3	(1)-4	(1)-5	(1)-6
E－1		6.26	6.21	9.56	2.29		6.72
E－3						5.77	
H－1		4.94	4.89	7.54	1.81	5.33	
H－2							4.38
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
溶融球状シリカ		88.00	88.00	82.00	95.00	88.00	88.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール （式(3a)）				0.10	0.10	0.10	0.10
2-(4'-モルホリノジチオ)ベンゾチアゾール (式(6))			0.10				
カルナバワックス		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー （cm）		95	80	125	30	80	85
密着強度 (N/mm^2)	フレーム1	3.0	5.5	13.5	8.5	10.0	10.5
	フレーム2	2.5	4.5	13.5	7.5	9.5	10.5
難燃性 （UL－94）		V-0	V-0	V-1	V-0	V-1	V-1
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率 (%)	40	30	50	充填不良	20	30
	インナーリード部剥離発生率 （%）	50	40	50	充填不良	40	40

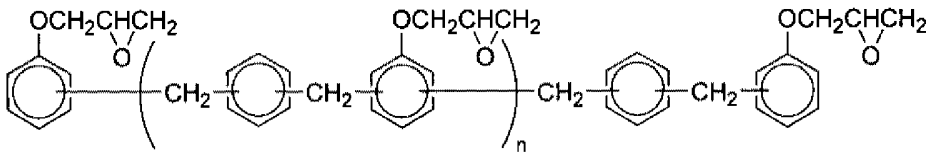
[0136] 実施例シリーズ(2)

＜実施例(2)－1＞

以下に示す各成分を、ミキサーを用いて混合した後、表面温度が95℃と25℃の2本ロールを用いて混練し、冷却後粉砕してエポキシ樹脂組成物を得た。得られたエポキシ樹脂組成物の特性を以下の方法で評価した。結果を表4に示す。

[0137] エポキシ樹脂1:式(1a)で示されるエポキシ樹脂(軟化点44℃、エポキシ当量234、以下E－1という) 6．09重量部

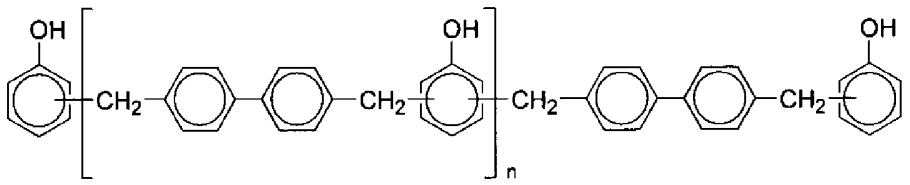
[0138] [化27]



(1a)

[0139] フェノール樹脂1:式(2a)で示されるフェノール樹脂(軟化点107℃、水酸基当量203、以下H－1という) 4．41重量部

[0140] [化28]

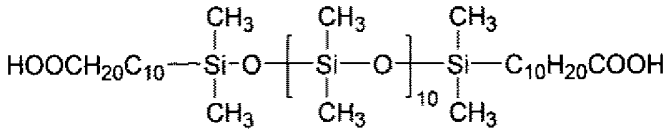


（2a）

[0141] 式(4a)で示されるオルガノポリシロキサン(以下オルガノポリシロキサン1という)

0．20重量部

[0142] [化29]



（4a）

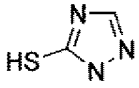
[0143] 酸化ポリエチレンワックス1(滴点120℃、最大粒径100μm、平均粒径50μmである酸化高密度ポリエチレン) 0．20重量部

溶融球状シリカ(平均粒径25μm) 88．00重量部

[0144] 式(3a)で示される1，2，4－トリアゾール5－チオール(試薬)

0．10重量部

[0145] [化30]



（3a）

[0146] 1、8－ジアザビシクロ(5，4，0)ウンデセン－7(以下、DBUという)

0．20重量部

カップリング剤(γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン) 0．40重量部

カーボンブラック 0．40重量部

[0147] ＜評価方法＞

スパイラルフロー:EMMI－1－66に準じたスパイラルフロー測定用の金型を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．3MPa、硬化時間120秒の条件でスパイラルフローを測定した。単位はcmであった。測定値が80cm以下であるとパッケージ未充填(充填不良)などの成形不良が生じる可能性がある。

[0148] 難燃性:トランスファー成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．8Mpa、硬

化時間120秒で、寸法が127mm×12．7mm×1．6mmの試験片を成形し、アフターベークとして175℃、8時間処理した後、UL－94垂直法に準じてΣF、Fmaxを測定し、難燃性を判定した。

[0149] 連続成形性：低圧トランスファー自動成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9．6MPa、硬化時間90秒で80pQFP（80pinプリプレーティングフレーム、NiPd合金にAuメッキしたもの、パッケージ外寸：14mm×20mm×2mm厚、パッドサイズ：8mm×8mm、チップサイズ：7mm×7mm）を連続で700ショットまで成形した。判定基準は未充填（充填不良）等全く問題なく700ショットまで連続成形できたものを◎、未充填（充填不良）等全く問題なく500ショットまで連続成形できたものを○、それ以外を×とした。

[0150] 成形品外観及び金型汚れ：上記連続成形において500及び700ショット経過後のパッケージ及び金型について、目視で汚れを評価した。パッケージ外観汚れ及び金型汚れの判断基準は、700ショットまで汚れていないものを◎で、500ショットまで汚れていないものを○、汚れているものを×で表す。

[0151] 耐半田リフロー性：上記連続成形により成形したパッケージを175℃で8時間の後硬化をした。得られたパッケージを85℃、相対湿度60％の環境下で168時間加湿処理した。その後このパッケージを260℃の半田槽に10秒間浸漬した。半田に浸漬させたパッケージ10個を、超音波探傷装置を用いて観察し、半導体素子とエポキシ樹脂組成物の硬化物との界面に剥離が発生した割合、すなわち剥離発生率[（剥離発生パッケージ数）／（全パッケージ数）×100]を％で表示した。

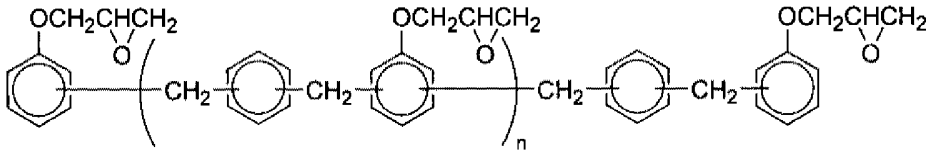
[0152] ＜実施例（2）－2～（2）－18、比較例（2）－1～（2）－9＞

表4、5、6の配合に従い、実施例（2）－1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を得て、実施例（2）－1と同様にして評価した。結果を表4、5、6に示す。

実施例（2）－1以外で用いた原材料を以下に示す。

エポキシ樹脂2：式（1a）で示されるエポキシ樹脂（軟化点55℃、エポキシ当量236、以下E－2という）

[0153] [化31]



（１ａ）

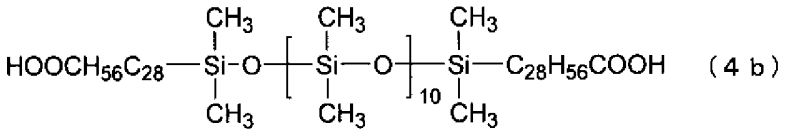
[0154] エポキシ樹脂3:オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂EOCN－1020 62(日本化薬(株)製、エポキシ当量200、軟化点62℃、以下E－3という)

フェノール樹脂2:パラキシレン変性ノボラック型フェノール樹脂XLC－4L(三井化学(株)製、水酸基当量168、軟化点62℃、以下H－2という)

溶融混合物A:E－1(55．9重量部)とH－1(44．1重量部)を120℃で30分間、溶融混合することにより得られた混合物。

式(4b)で示されるオルガノポリシロキサン(以下オルガノポリシロキサン2という)

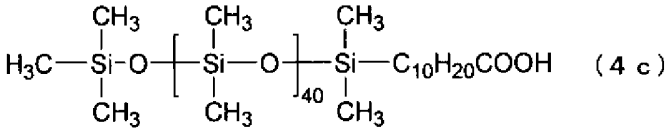
[0155] [化32]



（４ｂ）

[0156] 式(4c)で示されるオルガノポリシロキサン(以下オルガノポリシロキサン3という)

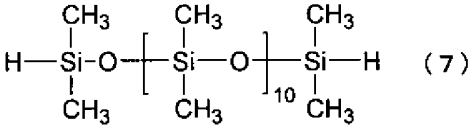
[0157] [化33]



（４ｃ）

[0158] 式(7)で示されるオルガノポリシロキサン(以下オルガノポリシロキサン4という)

[0159] [化34]



（７）

[0160] 溶融反応物A:ビスフェノールA型エポキシ樹脂YL－6810(ジャパンエポキシレジン製、エポキシ当量170g／eq、融点47℃)66．1重量部を140℃で加温溶融し、オルガノポリシロキサン3(式(4c)で示されるオルガノポリシロキサン)33．1重量部及びトリフェニルホスフィン0．8重量部を添加して、30分間溶融混合して溶融反応物Aを

得た。

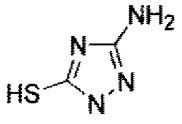
酸化ポリエチレンワックス2(滴点110℃、最大粒径100μm、平均粒径80μmである酸化高密度ポリエチレン)

酸化ポリエチレンワックス3(滴点125℃、最大粒径100μm、平均粒径5μmである酸化高密度ポリエチレン)

カルナバワックス

[0161] 式(3b)で示される3－アミノ－1, 2, 4－トリアゾール－5－チオール(試薬)

[0162] [化35]



(3b)

[0163] [表4]

表 4

		実施例								
		(2)-1	(2)-2	(2)-3	(2)-4	(2)-5	(2)-6	(2)-7	(2)-8	(2)-9
E－1		6.09		4.49	6.22	6.09	6.09	6.09	6.09	6.15
E－2			6.12							
E－3				1.50						
H－1		4.41	4.38	4.51	3.21	4.41	4.41	4.41	4.41	4.45
H－2					1.07					
オルガノポリシロキサン1		0.20	0.20	0.20	0.20			0.20	0.20	0.10
オルガノポリシロキサン2						0.20				
オルガノポリシロキサン3							0.20			
酸化ポリエチレンワックス1		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20			0.20
酸化ポリエチレンワックス2								0.20		
酸化ポリエチレンワックス3									0.20	
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール(式(3a))		0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カップリング剤		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー (cm)		105	100	95	100	95	85	105	100	100
難燃性 (UL－94)		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
連続成形性		◎	◎	◎	◎	○	◎	◎	○	◎
成形品外観及び金型汚れ		◎	◎	◎	◎	◎	○	◎	◎	○
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率(%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	インナーリード部剥離 発生率(%)	0	0	0	0	0	0	10	0	0

[0164] [表5]

表 5

		実施例								
		(2)-10	(2)-11	(2)-12	(2)-13	(2)-14	(2)-15	(2)-16	(2)-17	(2)-18
E－1		5.69	5.86	6.18	5.75	6.09	6.15		7.84	4.35
H－1		4.11	4.24	4.47	4.15	4.41	4.45		5.66	3.15
溶融混合物A								10.50		
オルガノポリシロキサン1		0.90		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
溶融反応物A			0.60							
酸化ポリエチレンワックス1		0.20	0.20	0.05	0.80	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	85.00	91.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール (式(3a))		0.10	0.10	0.10	0.10			0.10	0.10	0.10
3-アミノ-1,2,4-トリアゾール-5-チオール (式(3b))						0.10				
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カップリング剤		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー (cm)		110	115	105	100	95	105	100	120	85
難燃性 (UL－94)		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
連続成形性		◎	◎	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎
成形品外観及び金型汚れ		○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率 (%)	0	0	0	10	0	0	0	0	0
	インナーリード部剥離 発生率 (%)	10	0	0	0	0	10	0	10	0

[0165] [表6]

表 6

		比較例								
		(2)-1	(2)-2	(2)-3	(2)-4	(2)-5	(2)-6	(2)-7	(2)-8	(2)-9
E－1		6.21	6.21	6.09	6.09	6.33	9.58	2.03		6.57
E－3									5.69	
H－1		4.49	4.49	4.41	4.41	4.57	6.92	1.47	4.81	
H－2										3.93
オルガノポリシロキサン1		0.20			0.20		0.20	0.20	0.20	0.20
オルガノポリシロキサン4				0.20						
酸化ポリエチレンワックス1			0.20	0.20			0.20	0.20	0.20	0.20
カルナバワックス					0.20					
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	82.00	95.00	88.00	88.00
1,2,4-トリアゾール-5-チオール(式(3a))		0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
DBU		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カップリング剤		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー (cm)		105	100	90	100	110	140	60	85	90
難燃性 (UL－94)		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-1	V-0	V-1	V-1
連続成形性		×	○	○	×	×	○	◎	◎	◎
成形品外観及び金型汚れ		○	×	×	○	×	◎	◎	◎	◎
耐半田リフロー性	チップ剥離発生率 (%)	10	0	0	10	30	50	充填不良	20	30
	インナーリード部剥離発生率 (%)	0	10	0	10	20	50	充填不良	40	40

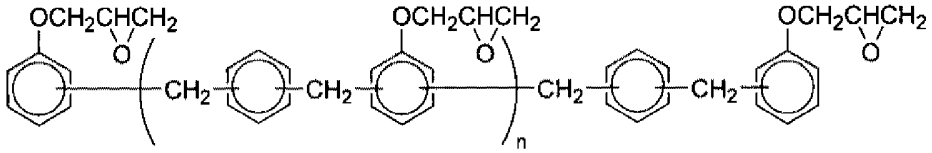
[0166] 実施例シリーズ(3)

＜実施例(3)－1＞

以下に示す各成分を、ミキサーを用いて混合した後、表面温度が95℃と25℃の2本ロールを用いて混練し、冷却後粉砕してエポキシ樹脂組成物を得た。得られたエポキシ樹脂組成物の特性を以下の方法で評価した。結果を表7に示す。

[0167] エポキシ樹脂1:式(1a)で示されるエポキシ樹脂(軟化点44℃、エポキシ当量234) 6．42重量部

[0168] [化36]

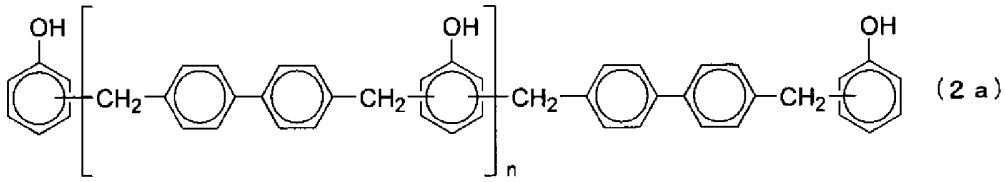


(1a)

[0169] フェノール樹脂1:式(2a)で示されるフェノール樹脂(軟化点107℃、水酸基当量1

98) 4．28重量部

[0170] [化37]

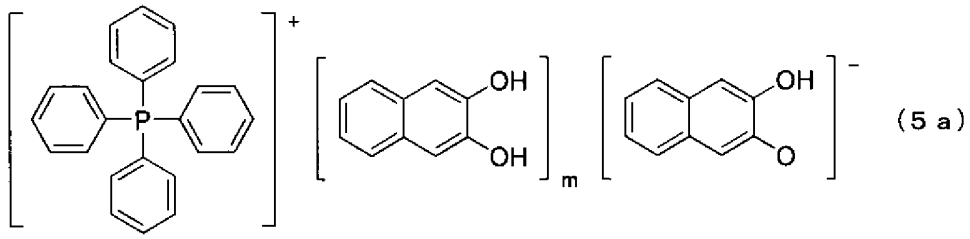


(2a)

[0171] 硬化促進剤1：式(5a)で示される硬化促進剤(式(5a)において、m＝1)

0．20重量部

[0172] [化38]



(5a)

[0173] シランカップリング剤1：γ－メルカプトトリプロピルメトキシシラン

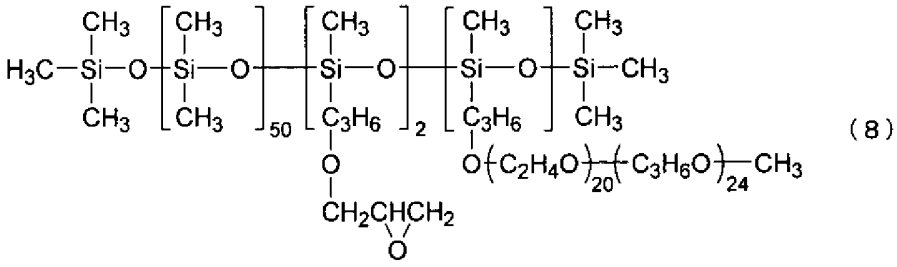
0．20重量部

溶融球状シリカ(平均粒径25μm) 88．00重量部

カーボンブラック 0．40重量部

[0174] シリコーンオイル：式(8)で示されるポリオルガノシロキサン 0．20重量部

[0175] [化39]



(8)

[0176] カルナバワックス 0．30重量部

[0177] ＜評価方法＞

スパイラルフロー：低圧トランスファー成形機を用いて、EMMI－1－66に準じたスパイラルフロー測定用の金型に、金型温度175℃、注入圧力9．8MPa、硬化時間1

20秒の条件でエポキシ樹脂組成物を注入し、流動長を測定した。単位はcm。測定値が80cm以下であると金線変形やパッケージ未充填(充填不良)などの成形不良が生じる可能性がある。

[0178] 硬化性(ゲルタイム):175℃の熱盤上にエポキシ樹脂組成物粉末を30gのせ、これを金属ヘラで練り、ゲル化するまでの時間を測定した。一般的なトランスファー成形は50秒以上、120秒以下程度で成形されるため、ゲルタイムが45秒以上の場合は、成形不良が生じる可能性がある。

[0179] 難燃性:トランスファー成形機を用いて、金型温度175℃、注入圧力9.8Mpa、硬化時間120秒で、127mm×12.7mm×1.6mmの試験片を成形し、アフターベークとして175℃、8時間処理した後、UL－94垂直法に準じてΣF、Fmaxを測定し、難燃性を判定した。

[0180] 耐半田リフロー性:80pQFP(銅フレーム:14mm×20mm×2mm厚、パッドサイズ:8mm×8mm、チップサイズ:7mm×7mm)を低圧トランスファー自動成形機を用いて、実施例、比較例記載の封止樹脂で、金型温度175℃、注入圧力9.6MPa、硬化時間90秒で封止成形した後、175℃、4時間後硬化した。このようにして作製した16個のサンプルを2つのグループに分け、一方のグループと他方のグループを、別々に85℃、相対湿度60%の環境下で168時間と、85℃、相対湿度85%の環境下で168時間、加湿処理し、その後、IRリフロー(260℃)で10秒間処理した。得られたパッケージを、超音波探傷装置を用いて観察し、内部クラック及び各種界面剥離の有無を調べた。内部クラック又は各種界面の剥離が1つでも見つかったものは不良とし、不良パッケージの個数がn個であるとき、n／16と表示した。

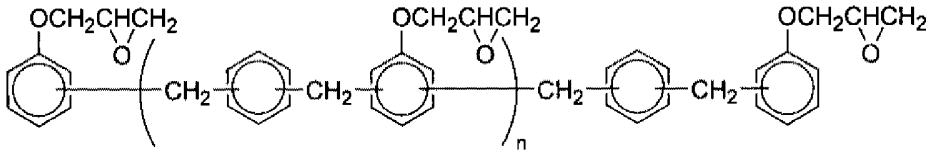
[0181] ＜実施例(3)－2～(3)－10、比較例(3)－1～(3)－8＞

表7、8の配合に従い、実施例(3)－1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を得て、実施例(3)－1と同様にして評価した。結果を表7、8に示す。

実施例(3)－1以外で用いた原材料を以下に示す。

[0182] ・エポキシ樹脂2:式(1a)で示されるエポキシ樹脂(軟化点55℃、エポキシ当量236)

[0183] [化40]



（１ａ）

[0184] エポキシ樹脂3:ビフェニル型エポキシ樹脂YX－4000K（油化シェルエポキシ（株）製、エポキシ当量185、融点105℃）

エポキシ樹脂4:ビスフェノールA型エポキシ樹脂YL－6810（ジャパンエポキシレジン製、エポキシ当量170g／eq、融点47℃）

フェノール樹脂2:パラキシレン変性ノボラック型フェノール樹脂（三井化学（株）製、XLC－4L、水酸基当量168、軟化点62℃）

硬化促進剤2:トリフェニルホスフィン

シランカップリング剤2:N－フェニル－γ－アミノプロピルトリメトキシシラン

シランカップリング剤3:γ－グリシジルプロピルトリメトキシシラン

[0185] [表7]

表 7

		実施例									
		(3)-1	(3)-2	(3)-3	(3)-4	(3)-5	(3)-6	(3)-7	(3)-8	(3)-9	(3)-10
エポキシ樹脂1		6.42		4.20	4.12	6.58	6.38	6.42	6.42	8.15	5.26
エポキシ樹脂2			6.44								
エポキシ樹脂3				2.00							
エポキシ樹脂4					2.00						
フェノール樹脂1		4.28	4.26	4.50	4.58	2.62	4.32	4.28	4.28	5.34	3.52
フェノール樹脂2						1.50					
硬化促進剤1		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.15	0.20	0.20	0.35	0.16
硬化促進剤2							0.05				
シランカップリング剤1		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20			0.26	0.16
シランカップリング剤2								0.20			
シランカップリング剤3									0.20		
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	85.00	90.00
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
シリコーンオイル		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カルナバワックス		0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
スパイラルフロー[cm]		115	95	120	120	110	85	115	115	140	83
ゲルタイム[秒]		35	37	38	35	33	32	36	35	38	36
難燃性(3.2mm厚)		V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐半田リフロー性	クラック	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	チップ上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット裏剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	インナーリード剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	2/16	4/16	4/16	0/16

[0186] [表8]

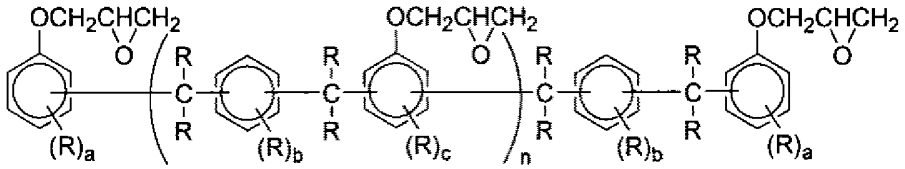
表 8

		比較例							
		(3)-1	(3)-2	(3)-3	(3)-4	(3)-5	(3)-6	(3)-7	(3)-8
エポキシ樹脂1				6.83	6.30	6.35	6.54	10.52	3.47
エポキシ樹脂3		5.78							
エポキシ樹脂4			5.58						
フェノール樹脂1		4.92	5.12		4.45	4.47	4.36	7.08	2.33
フェノール樹脂2				3.87					
硬化促進剤1		0.20	0.20	0.20			0.20	0.30	0.10
硬化促進剤2					0.15	0.08			
シランカップリング剤1		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20		0.20	0.20
溶融球状シリカ		88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	81.00	93.00
カーボンブラック		0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
シリコーンオイル		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
カルナバワックス		0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
スパイラルフロー[cm]		169	164	92	75	120	77	135	35
ゲルタイム[秒]		60	55	30	27	49	36	40	36
難燃性(3.2mm厚)		V-1	V-1	V-1	V-0	V-0	V-0	全焼	V-0
耐半田リフロー性	クラック	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	16/16	成形不可
	チップ上剥離	0/16	0/16	16/16	0/16	0/16	0/16	16/16	成形不可
	パット上剥離	0/16	16/16	16/16	12/16	12/16	16/16	16/16	成形不可
	パット裏剥離	0/16	16/16	16/16	16/16	16/16	16/16	16/16	成形不可
	インナーリード剥離	0/16	0/16	16/16	16/16	5/16	16/16	16/16	成形不可

請求の範囲

[1] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(C)硬化促進剤、(D)無機充填剤、及び(E)トリアゾール系化合物を必須成分とし、前記(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

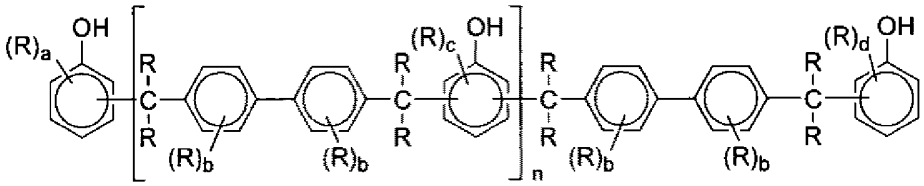
[化1]



(1)

(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[化2]



(2)

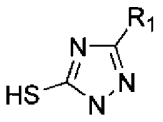
(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[2] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である請求項1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[3] 前記(E)トリアゾール系化合物が1，2，4－トリアゾール環を有する化合物である請求項1又は2に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[4] 前記(E)トリアゾール系化合物が一般式(3)で示される化合物である請求項1又は2に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[化3]



(3)

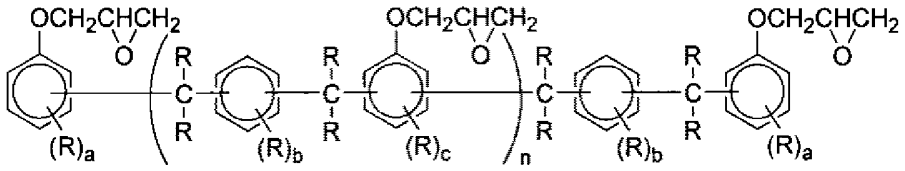
(ただし、上記一般式(3)において、R_1は水素原子、又はメルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基、もしくはそれらのいずれかの官能基が付加された炭素数1～5の炭化水素鎖を示す。)

[5] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂と前記(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂とを予め溶融混合して得られる樹脂を用いる請求項1ないし4のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[6] 請求項1ないし5のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

[7] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサン、(G)酸化ポリエチレン、及び(D)無機充填剤を必須成分とし、前記(D)無機充填剤を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

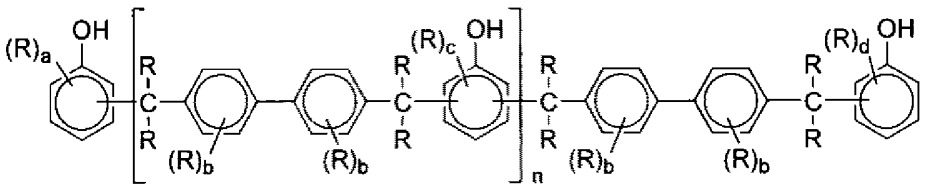
[化4]



(1)

(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[化5]



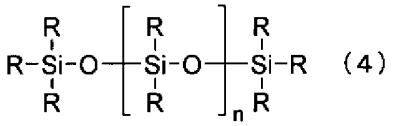
(2)

(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[8] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である請求項7に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[9] 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンが一般式(4)で示されるオルガノポリシロキサンである請求項7又は8に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[化6]



(4)

(ただし、上記一般式(4)において、Rは少なくとも1つ以上がカルボキシル基を有する炭素数1～40の有機基であり、残余の基は水素、フェニル基、又はメチル基から選ばれる基であり、互いに同一であっても異なっていてもよい。nは平均値で、1～50の正数である。)

[10] 前記(G)酸化ポリエチレンが高密度ポリエチレンを酸化することで得られるものである請求項7ないし9のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[11] 前記(G)酸化ポリエチレンの最大粒子径が150μm以下であり、かつ平均粒子径が0.1μm以上、100μm以下である請求項7ないし10のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[12] 前記(G)酸化ポリエチレンの滴点が100℃以上、130℃以下である請求項7ないし11のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[13] 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンとして、予めエポキシ樹脂と硬化促進剤によって反応させたカルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンを含む請求項7ないし12のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[14] 前記(F)カルボキシル基を有するオルガノポリシロキサンと前記(G)酸化ポリエチレンとの重量比(F)／(G)が5／1～1／5である請求項7ないし13のいずれかに記載

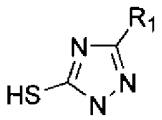
の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[15] 更に(E)トリアゾール系化合物を含む請求項7ないし14のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[16] 前記(E)トリアゾール系化合物が1，2，4－トリアゾール環を有する化合物である請求項15に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[17] 前記(E)トリアゾール系化合物が一般式(3)で示される化合物である請求項15又は16に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[化7]



(3)

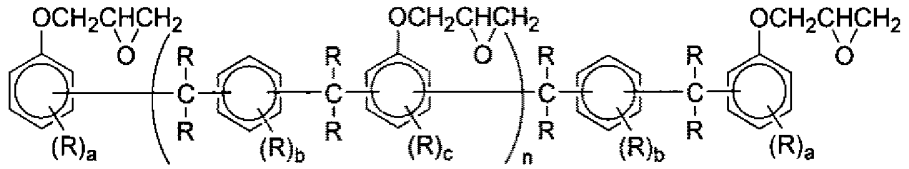
(ただし、上記一般式(3)において、R_1は水素原子、又はメルカプト基、アミノ基、水酸基よりなる群から選ばれる官能基、もしくはそれらのいずれかの官能基が付加された炭素数1～5の炭化水素鎖を示す。)

[18] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂と前記(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂とを予め溶融混合して得られる樹脂を用いる請求項7ないし17のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[19] 請求項7ないし18のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

[20] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(H)一般式(5)で示される硬化促進剤、(I)シランカップリング剤、及び(D)無機充填剤を必須成分として含むエポキシ樹脂組成物であって、該エポキシ樹脂組成物中に、前記(H)一般式(5)で示される硬化促進剤が0．05重量%以上、0．5重量%以下、前記(D)無機充填剤が84重量%以上、92重量%以下の割合で含まれることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

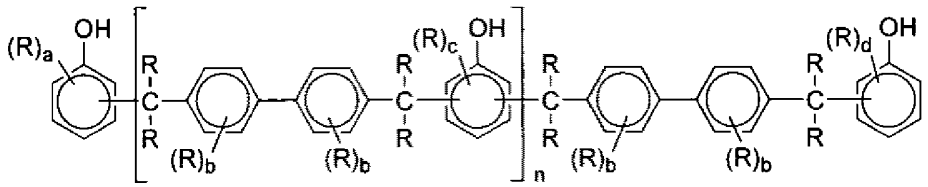
[化8]



(1)

(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一であっても異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

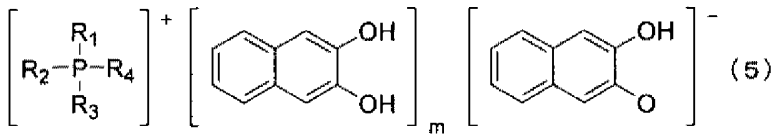
[化9]



(2)

(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一であっても異なっていても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[化10]



(5)

(ただし、上記一般式(5)において、Pはリン原子、R_1～R_4は芳香環を含む炭素数6～20の有機基又は炭素数1～20の脂肪族炭化水素基を表し、互いに同一であっても異なっていても良い。mは0≦m≦2の数を示す。)

[21] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である請求項20に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

[22] 請求項20又は21に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2005/020088

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G59/62(2006.01), ***C08L63/00***(2006.01), ***H01L23/29***(2006.01), ***H01L23/31***(2006.01)

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)
C08G59/00-59/72, C08L63/00-63/10, C08K3/00-13/08

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 1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2006 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2006

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.
Y	JP 2004-67717 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 04 March, 2004 (04.03.04), Claims; Par. Nos. [0001], [0030] (Family: none)	1-22
Y	JP 11-29695 A (Otsuka Chemical Co., Ltd.), 02 February, 1999 (02.02.99), Claims; Par. No. [0013] (Family: none)	1-6,15-19
Y	JP 8-120054 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), Claims (Family: none)	7-19

☒ 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	Date of mailing of the international search report
11 January, 2006 (11.01.06)	24 January, 2006 (24.01.06)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2005/020088

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2000-7761 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 11 January, 2000 (11.01.00), Claims (Family: none)	20-22
A	JP 2002-356538 A (Toray Industries, Inc.), 13 December, 2002 (13.12.02), Claims (Family: none)	1-22
A	JP 2001-89551 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 03.April, 2001 (03.04.01), Claims (Family: none)	1-22

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００５／０２００８８

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　*C08G59/62* (2006.01), *C08L63/00* (2006.01), *H01L23/29* (2006.01), *H01L23/31* (2006.01)

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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G 59/00-59/72, C08L 63/00-63/10, C08K 3/00-13/08

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２００６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００６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	関連する請求の範囲の番号
Y	JP 2004-67717 A（住友ベークライト株式会社）2004.03.04, 特許請求の範囲、０００１、００３０段落　（ファミリーなし）	1-22
Y	JP 11-29695 A（大塚化学株式会社）1999.02.02, 特許請求の範囲、００１３段落　（ファミリーなし）	1-6, 15-19
Y	JP 8-120054 A（松下電工株式会社）1996.05.14, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	7-19

☑ 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 １１．０１．２００６	国際調査報告の発送日 ２４．０１．２００６
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 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）　４Ｊ　３３４７ 吉宗　亜弓 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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	関連する請求の範囲の番号
Y	JP 2000-7761 A（住友ベークライト株式会社）2000.01.11，特許請求の範囲　（ファミリーなし）	20-22
A	JP 2002-356538 A（東レ株式会社）2002.12.13，特許請求の範囲　（ファミリーなし）	1-22
A	JP 2001-89551 A（住友ベークライト株式会社）2001.04.03，特許請求の範囲　（ファミリーなし）	1-22