

(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
2023年6月29日(29.06.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/120738 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 3/10 (2006.01) C08L 63/00 (2006.01)
C08G 59/40 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/048050
- (22) 国際出願日: 2022年12月26日(26.12.2022)
- (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 2021-210834 2021年12月24日(24.12.2021) JP
- (71) 出願人: 株式会社 レゾナック (RESONAC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 内山 千嘉 (UCHIYAMA, Chika); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 白神 真志 (SHIRAGAMI, Masashi); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 禊田 光昭 (FUSUMADA, Mitsuaki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 根来 周平 (NEGORO, Shuhei); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 田中 実佳 (TANAKA, Mika); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 助川 雄太 (SUKEGAWA, Yuta); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 姜 東哲 (KANG, Dongchul); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 大下 毅 (OSHITA, Tsuyoshi); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 弁理士法人太陽国際特許事務所 (TAIYO, NAKAJIMA & KATO); 〒1600022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 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, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, 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, ME, 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:
一 国際調査報告 (条約第21条(3))



WO 2023/120738 A1

(54) Title: SEALING MATERIAL COMPOSITION AND ELECTRONIC COMPONENT DEVICE

(54) 発明の名称: 封止材組成物及び電子部品装置

(57) Abstract: This sealing material composition comprises an epoxy resin, a curing agent, an inorganic filler material, and a silicone compound. In results of ^1H NMR measurement carried out in CDCl_3 , when the chemical shift integral value of the silicone compound at -0.3 - 0.3 ppm is set to 300, the chemical shift integral value of the silicone compound at 3.0 - 4.0 ppm is 350 or less.

(57) 要約: 封止材組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、無機充填材、及びシリコン化合物を含み、前記シリコン化合物は、 CDCl_3 中での ^1H NMRの測定結果において、 -0.3 ppm \sim 0.3 ppmに現れるケミカルシフトの積分値を300としたときに 3.0 ppm \sim 4.0 ppmに現れるケミカルシフトの積分値が350以下である。

明 細 書

発明の名称：封止材組成物及び電子部品装置

技術分野

[0001] 本発明は、封止材組成物及び電子部品装置に関する。

背景技術

[0002] 従来から、トランジスタ、IC (Integrated Circuit) 等の電子部品封止の分野ではエポキシ樹脂を含む封止材組成物が広く用いられている。この理由としては、エポキシ樹脂が電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性等のバランスがとれているためである。

[0003] 封止材組成物を用いて電子部品を封止する方法としては、トランスファ成形が一般的である。一方、トランスファ成形では、熔融した封止材組成物を加圧により金型内に流動させるため、その流動によりワイヤ流れが発生することがある。これに対して封止材組成物の高流動化の手法が検討されているが、ワイヤ流れの抑制には未だ課題がある。

[0004] トランスファ成形に代わる成形方法としては、圧縮成形（コンプレッション成形）が知られている。圧縮成形では、金型のキャビティ内に封止材組成物を入れて熔融させ、減圧しつつ金型を閉じて封止材組成物を加圧することにより素子を封止する（例えば、特許文献1参照）。圧縮成形によれば、素子の面方向での封止材組成物の流動が抑えられているため、ワイヤ流れの発生を抑制することができる。

[0005] また、近年、電子機器の小型化に伴い、半導体パッケージの小型化及び薄型化が実現可能な圧縮成形に対する需要が高まってきている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2000-021908号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 圧縮成形では、作業性の観点から粒状の封止材組成物を用いるため、封止材組成物が溶融する際に空気を巻き込みやすい。そのため、特許文献1に記載のように、封止する前から減圧することで巻き込んだ空気を脱気している。

しかしながら、巻き込んだ空気は封止材組成物中で独立気泡として存在し、独立気泡は外部に開口していないことから、減圧の際に封止材組成物中で気泡が膨らみ、それに付随して溶融した封止材組成物の全体が膨らみ、封止材組成物が金型外へ漏れ出る場合がある。金型外に封止材組成物が漏れ出した状態で封止を行うと、封止された電子部品には外観不良が発生する。

[0008] 上記事情に鑑み、本開示は、脱気における発泡を抑えて、金型からの樹脂漏れを抑えることが可能な封止材組成物を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0009] 前記課題を達成するための具体的手段は以下の通りである。

<1> エポキシ樹脂、硬化剤、無機充填材、及びシリコン化合物を含み、

前記シリコン化合物は、 CDCl_3 中での ^1H NMRの測定結果において、 $-0.3\text{ ppm} \sim 0.3\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトAの積分値を300としたときに $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBの積分値が350以下である、封止材組成物。

<2> 前記シリコン化合物がポリエーテル部位を有する、<1>に記載の封止材組成物。

<3> 前記シリコン化合物の含有量が、前記エポキシ樹脂100質量部に対して5質量部以下である<1>又は<2>に記載の封止材組成物。

<4> 前記ケミカルシフトAの積分値を300としたときの $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBの積分値が40以上である、<1>~<3>のいずれか1項に記載の封止材組成物。

<4> 圧縮成形に使用される<1>~<4>のいずれか1項に記載の封止材組成物。

<5> 素子と、

前記素子を封止する<1>~<5>のいずれか1項に記載の封止材組成物の硬化物と、

を備える電子部品装置。

発明の効果

[0010] 本開示の一形態によれば、脱気における発泡を抑えて、金型からの樹脂漏れを抑えることが可能な封止材組成物、及びこれにより封止された素子を備える電子部品装置を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。但し、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。以下の実施形態において、その構成要素（要素ステップ等も含む）は、特に明示した場合を除き、必須ではない。数値及びその範囲についても同様であり、本発明を制限するものではない。

本開示において「工程」との語には、他の工程から独立した工程に加え、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の目的が達成されれば、当該工程も含まれる。

本開示において「~」を用いて示された数値範囲には、「~」の前後に記載される数値がそれぞれ最小値及び最大値として含まれる。

本開示中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本開示中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

本開示において各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、各成分の含有率又は含有

量は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率又は含有量を意味する。

本開示において各成分に該当する粒子は複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する粒子が複数種存在する場合、各成分の粒子径は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の粒子の混合物についての値を意味する。

[0012] <封止材組成物>

本開示の封止材組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、無機充填材、及びシリコン化合物を含み、前記シリコン化合物は、 $CDCl_3$ 中での 1H NMRの測定結果において、 $-0.3\text{ ppm} \sim 0.3\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトAの積分値を300としたときに $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBの積分値が350以下である。

[0013] 上記構成とすることで、脱気における発泡が抑えられて、結果、金型からの封止材組成物の漏れが抑えられる理由は明らかではないが以下のように推測される。

$CDCl_3$ 中での 1H NMRにおいて、 $-0.3\text{ ppm} \sim 0.3\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトAは、シリコン化合物における疎水性有機部分に該当するケミカルシフトであり、 $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBは、シリコン化合物における親水性有機部分に該当するケミカルシフトである。ケミカルシフトAの積分値を30

0として相対化したときに、ケミカルシフトBの積分値が350以下という特定の範囲内にあることで、シリコン化合物における疎水性有機部分と親水性有機部分とのバランスが図られ、シリコン化合物が消泡機能を発揮するものと考えられる。

[0014] ここで、ケミカルシフトBの積分値が350を超える場合、シリコン化合物における親水性有機部分が多すぎ、封止材組成物における樹脂成分との相溶性が高くなり、シリコン化合物が樹脂成分に完全に溶解する。この場合、泡膜のような表面側に染み出すシリコン化合物の量が少なくなり、消

泡機能が発揮されにくくなるものと考えられる。

つまり、シリコン化合物が樹脂成分に対して適度な相溶性を有すると、泡膜に十分な量のシリコン化合物が入り込み、消泡機能が発揮されるものと推測される。

[0015] なお、本開示において「脱気における発泡を抑え」とは、脱気のための減圧を開始してから3秒後において発泡が治まっていることをいう。

以下、本開示の封止材組成物に含まれ得る成分について詳細に説明する。

[0016] [エポキシ樹脂]

本開示の封止材組成物は、エポキシ樹脂を含有する。エポキシ樹脂は1分子中に2個以上のエポキシ基を有するものであればその種類は特に制限されない。

具体的には、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール化合物及び α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等の脂肪族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものであるノボラック型エポキシ樹脂（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等）；上記フェノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂；上記フェノール化合物及びナフトール化合物と、アルデヒド化合物とを酸性触媒下で共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものである共重合型エポキシ樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールF等のジグリシジルエーテルであるジフェニルメタン型エポキシ樹脂；アルキル置換又は非置換のビフェノールのジグリシジルエーテルであるビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン系フェノール化合物のジグリシジルエ

ーテルであるスチルベン型エポキシ樹脂；ビスフェノールS等のジグリシジルエーテルである硫黄原子含有エポキシ樹脂；ブタンジオール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等のアルコール類のグリシジルエーテルであるエポキシ樹脂；フタル酸、イソフタル酸、テトラヒドロフタル酸等の多価カルボン酸化合物のグリシジルエステルであるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；アニリン、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等の窒素原子に結合した活性水素をグリシジル基で置換したものであるグリシジリアミン型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエンとフェノール化合物の共縮合樹脂をエポキシ化したものであるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂；分子内のオレフィン結合をエポキシ化したものであるビニルシクロヘキサジエポキシド、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カルボキシレート、2-(3, 4-エポキシ)シクロヘキシル-5, 5-スピロ(3, 4-エポキシ)シクロヘキサ-*m*-ジオキサン等の脂環型エポキシ樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるパラキシリレン変性エポキシ樹脂；メタキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるメタキシリレン変性エポキシ樹脂；テルペン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるテルペン変性エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるジシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；シクロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルである多環芳香環変性エポキシ樹脂；ナフタレン環含有フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるナフタレン型エポキシ樹脂；ハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂；ハイドロキノ型エポキシ樹脂；トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；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；フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるアラルキル型エポキシ樹脂；などが挙げられる。さらにはシ

リコーン樹脂のエポキシ化物、アクリル樹脂のエポキシ化物等もエポキシ樹脂として挙げられる。これらのエポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0017] 上記エポキシ樹脂の中でも、耐リフロー性と粘度のバランスの観点から、ビフェニル型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、ジフェニルメタン型エポキシ樹脂、硫黄原子含有型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、共重合型エポキシ樹脂及びアラルキル型エポキシ樹脂からなる群より選ばれるエポキシ樹脂（これらを「特定エポキシ樹脂」と称する）が好ましい。特定エポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

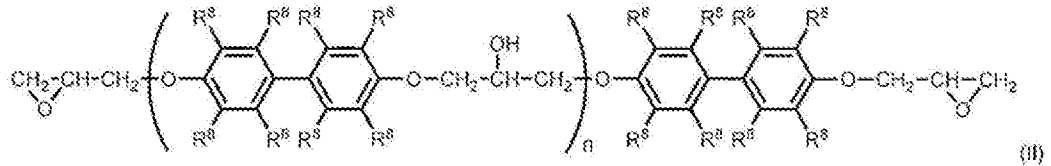
[0018] エポキシ樹脂が特定エポキシ樹脂を含む場合、特定エポキシ樹脂の性能を発揮する観点からは、その合計含有率がエポキシ樹脂全体の30質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましい。

[0019] 特定エポキシ樹脂の中でも、粘度の観点からは、ビフェニル型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、ジフェニルメタン型エポキシ樹脂又は硫黄原子含有型エポキシ樹脂がより好ましく、耐熱性の観点からは、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂又はアラルキル型エポキシ樹脂が好ましい。以下、好ましいエポキシ樹脂の具体例を示す。

[0020] ビフェニル型エポキシ樹脂は、ビフェニル骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば、下記一般式(11)で表されるエポキシ樹脂が好ましい。下記一般式(11)で表されるエポキシ樹脂の中でもR⁸のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位としたときの3, 3', 5, 5'位がメチル基であり、それ以外のR⁸が水素原子であるYX-4000H（三菱ケミカル株式会社、商品名）、全てのR⁸が水素原子である4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)ビフェニル、全てのR⁸が水素原子の場合及びR⁸のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位としたときの3

、3'、5、5'位がメチル基でそれ以外のR⁸が水素原子である場合の混合品であるYL-6121H（三菱ケミカル株式会社、商品名）等が市販品として入手可能である。

[0021] [化1]

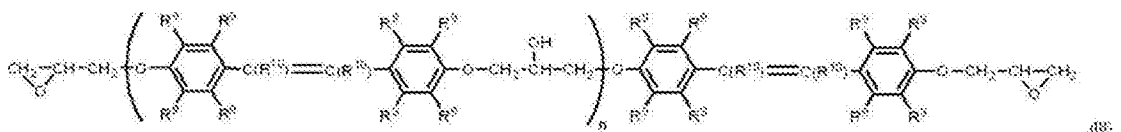


[0022] 式(11)中、R⁸は水素原子、炭素数1~12のアルキル基又は炭素数4~18の芳

香族基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。nは平均値であり、0~10の数を示す。

[0023] スチルベン型エポキシ樹脂は、スチルベン骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば、下記一般式(111)で表されるエポキシ樹脂が好ましい。下記一般式(111)で表されるエポキシ樹脂の中でも、R⁹のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位としたときの3、3'、5、5'位がメチル基であり、それ以外のR⁹が水素原子であり、R¹⁰の全てが水素原子である場合と、R⁹のうち3、3'、5、5'位のうちの3つがメチル基であり、1つがt-ブチル基であり、それ以外のR⁹が水素原子であり、R¹⁰の全てが水素原子である場合との混合品であるESLV-210（住友化学株式会社、商品名）等が市販品として入手可能である。

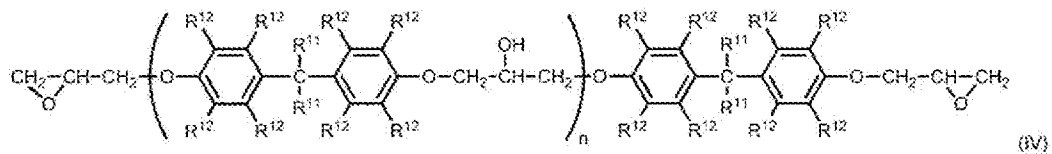
[0024] [化2]



[0025] 式(III)中、 R^9 及び R^{10} は水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 n は平均値であり、0～10の数を示す。

[0026] ジフェニルメタン型エポキシ樹脂は、ジフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば、下記一般式(IV)で表されるエポキシ樹脂が好ましい。下記一般式(IV)で表されるエポキシ樹脂の中でも、 R^{11} の全てが水素原子であり、 R^{12} のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位としたときの3, 3', 5, 5'位がメチル基であり、それ以外の R^{12} が水素原子であるYSLV-80XY(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

[0027] [化3]

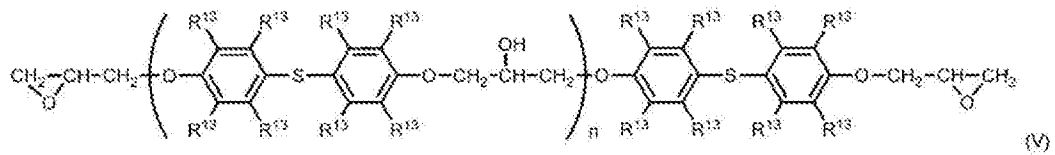


[0028] 式(IV)中、 R^{11} 及び R^{12} は水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 n は平均値であり、0～10の数を示す。

[0029] 硫黄原子含有型エポキシ樹脂は、硫黄原子を含有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば、下記一般式(V)で表されるエポキシ樹脂が挙げられる。下記一般式(V)で表されるエポキシ樹脂の中でも、 R^{13} のうち酸素原子が置換している位置を4及び4'位としたときの3, 3'位が t -ブチル基であり、6, 6'位がメチル基であり、それ以外の R^{13} が水素原子であるYSLV-120TE(日鉄ケミカル&マテリアル株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

[0030]

[化4]

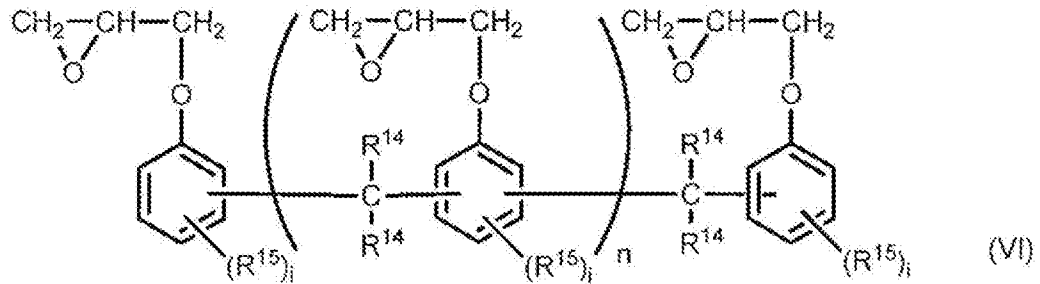


[0031] 式 (V) 中、 R^{13} は水素原子又は炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 n は平均値であり、0 ~ 10 の数を示す。

[0032] ノボラック型エポキシ樹脂は、ノボラック型フェノール樹脂をエポキシ化して得られるエポキシ樹脂であれば、特に限定されない。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、ナフトールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂をグリシジルエーテル化等の手法を用いてエポキシ化して得られるエポキシ樹脂が好ましく、下記一般式 (V I) で表されるエポキシ樹脂がより好ましい。下記一般式 (V I) で表されるエポキシ樹脂の中でも、 R^{14} の全てが水素原子であり、 R^{15} がメチル基であり、 $i = 1$ である ESCN-190、ESCN-195 (住友化学株式会社、商品名)、 R^{14} の全てが水素原子であり、 $i = 0$ である N-770、N-775 (DIC株式会社、商品名)、 R^{14} の全てが水素原子であり、 $i = 0$ である部分と $i = 1$ であり、 R^{15} が -C(H(CH₃))-Ph である部分を有するスチレン変性フェノールノボラック型エポキシ樹脂である YDAN-1000-10C (日鉄ケミカル&マテリアル株式会社、商品名)、 R^{14} の全てが水素原子であり、 $i = 1$ であり、 R^{15} がメチル基である部分と $i = 2$ であり、 R^{15} のうち一つがメチル基で一つがベンジル基である部分を有するベンジル基変性クレゾールノボラック型エポキシ樹脂である HP-5600 (DIC株式会社、商品名) 等が市販品として入手可能で

ある。

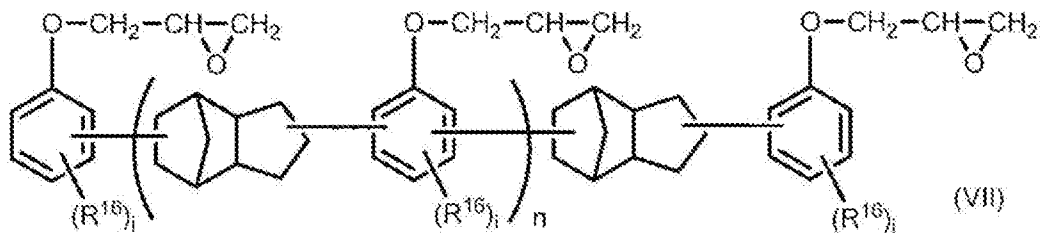
[0033] [化5]



[0034] 式(VI)中、 R^{14} は水素原子又は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 R^{15} は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 i は各々独立に0～3の整数を示す。 n は平均値であり、0～10の数を示す。

[0035] ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂は、ジシクロペンタジエン骨格を有する化合物を原料としてエポキシ化して得られるエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば、下記一般式(VII)で表されるエポキシ樹脂が好ましい。下記一般式(VII)で表されるエポキシ樹脂の中でも、 $i=0$ であるHP-7200(DIC株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

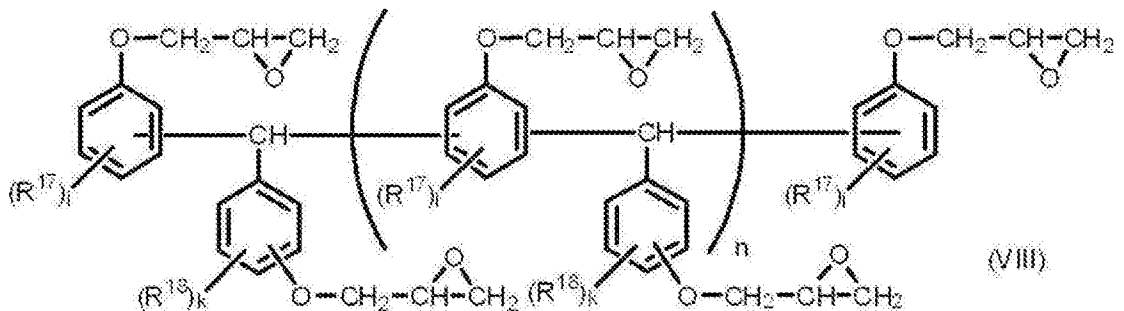
[0036] [化6]



[0037] 式(VII)中、 R^{16} は炭素数1~18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 i は各々独立に0~3の整数を示す。 n は平均値であり、0~10の数を示す。

[0038] トリフェニルメタン型エポキシ樹脂は、トリフェニルメタン骨格を持つ化合物を原料とするエポキシ樹脂であれば特に制限されない。例えば、トリフェニルメタン骨格を持つ化合物とフェノール性水酸基を有する化合物とのノボラック型フェノール樹脂等のトリフェニルメタン型フェノール樹脂をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂が好ましく、下記一般式(VII)で表されるエポキシ樹脂がより好ましい。下記一般式(VII)で表されるエポキシ樹脂の中でも、 i が0であり、 k が0である1032H60(三菱ケミカル株式会社、商品名)、EPPN-502H(日本化薬株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

[0039] [化7]

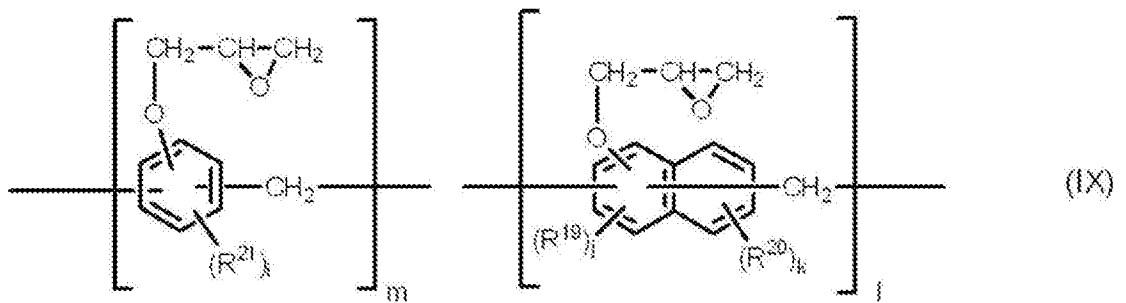


[0040] 式(VIII)中、 R^{17} 及び R^{18} は炭素数1~18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 i は各々独立に0~3の整数、 k は各々独立に0~4の整数を示す。 n は平均値であり、0~10の数を示す。

[0041] ナフトール化合物及びフェノール化合物と、アルデヒド化合物とから得られるノボラック樹脂をエポキシ化した共重合型エポキシ樹脂は、ナフトール骨格を有する化合物及びフェノール骨格を有する化合物を原料とするエポキ

シ樹脂であれば、特に限定されない。例えば、ナフトール骨格を有する化合物及びフェノール骨格を有する化合物を用いたノボラック型フェノール樹脂をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂が好ましく、下記一般式 (IX) で表されるエポキシ樹脂がより好ましい。下記一般式 (IX) で表されるエポキシ樹脂の中でも、 R^{21} がメチル基で i が1であり、 j が0であり、 k が0である NC-7300 (日本化薬株式会社、商品名) 等が市販品として入手可能である。

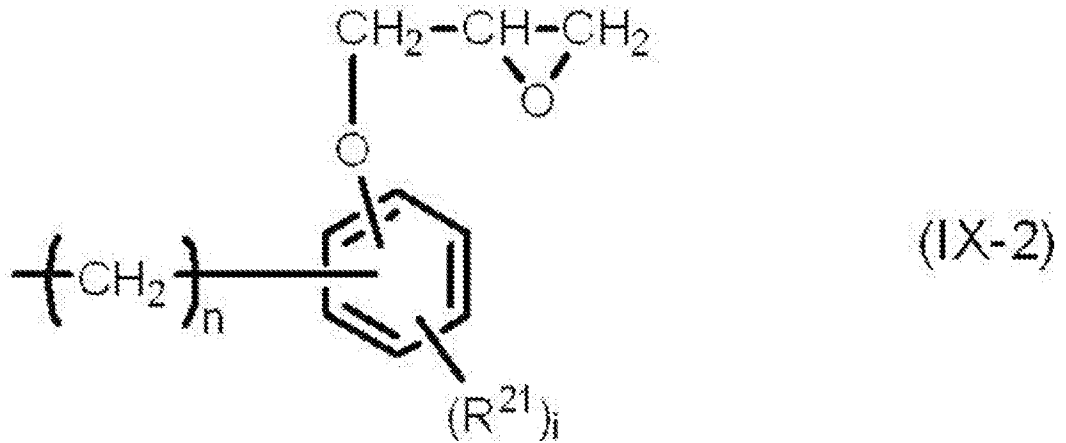
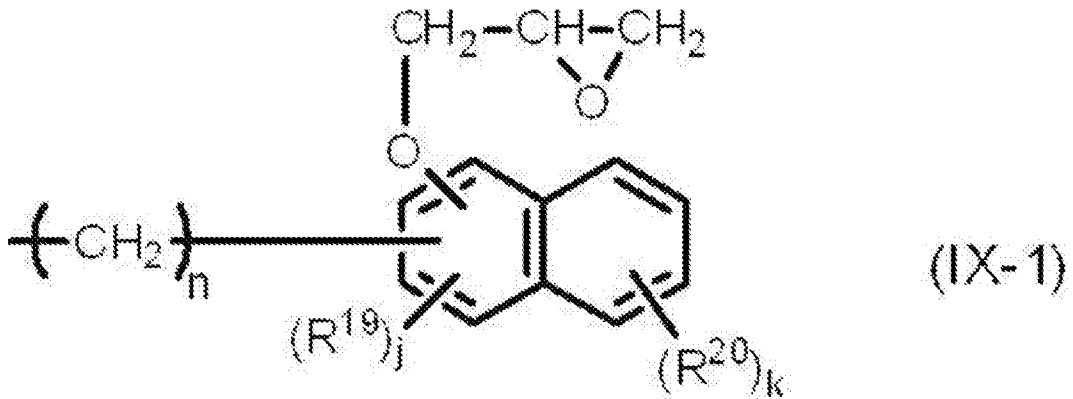
[0042] [化8]



[0043] 式 (IX) 中、 $R^{19} \sim R^{21}$ は炭素数1～18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 i は各々独立に0～3の整数、 j は各々独立に0～2の整数、 k は各々独立に0～4の整数を示す。 l 及び m はそれぞれ平均値であり、0～10の数であり、 $(l+m)$ は0～10の数を示す。式 (IX) で表されるエポキシ樹脂の末端は、下記式 (IX-1) 又は (IX-2) のいずれか一方である。式 (IX-1) 及び (IX-2) において、 $R^{19} \sim R^{21}$ は、 i 、 j 及び k の定義は式 (IX) における $R^{19} \sim R^{21}$ は、 i 、 j 及び k の定義と同じである。 n は1 (メチレン基を介して結合する場合) 又は0 (メチレン基を介して結合しない場合) である。

[0044]

[化9]

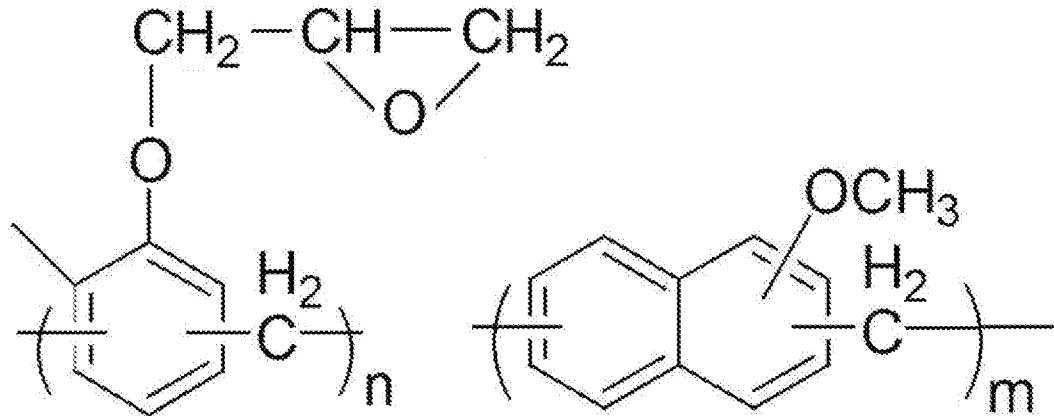


[0045] 上記一般式（IX）で表されるエポキシ樹脂としては、1個の構成単位及びm個の構成単位をランダムに含むランダム共重合体、交互に含む交互共重合体、規則的に含む共重合体、ブロック状に含むブロック共重合体等が挙げられる。これらのいずれか1種を単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0046] 共重合型エポキシ樹脂としては、下記2種の構造単位をランダム、交互又はブロックの順序で含むメトキシナフタレン・クレゾールホルムアルデヒド共縮合型エポキシ樹脂である下記の一般式で表されるエピクロンHP-5000（DIC株式会社、商品名）もまた好ましい。下記一般式では、n及びmはそれぞれ平均値であり、1～10の数であり、(n+m)は2～10の数を示し、好ましくはn及びmはそれぞれ平均値であり、1～9の数であり

、 (n + m) は 2 ~ 10 の数を示す。

[0047] [化10]

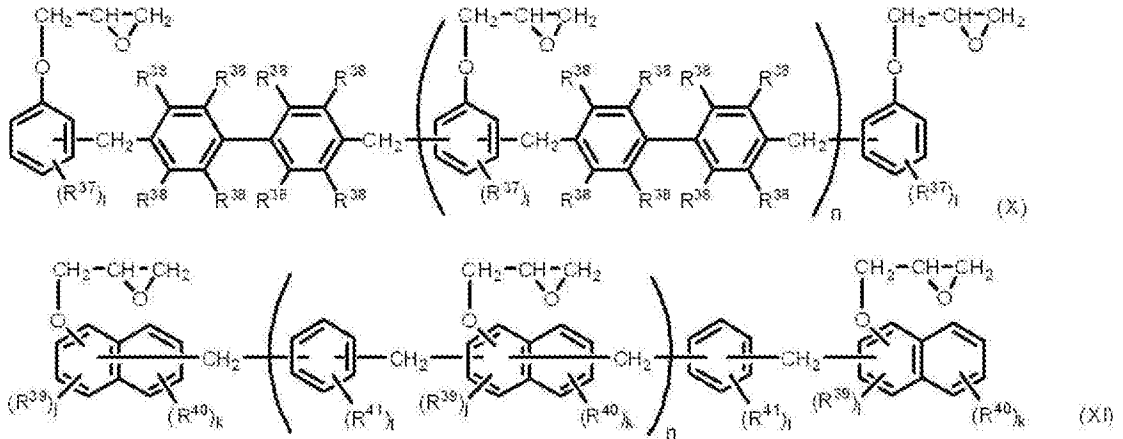


[0048] アラルキル型エポキシ樹脂は、フェノール、クレゾール等のフェノール化合物及びナフトール、ジメチルナフトール等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種と、ジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ピフェニル又はこれらの誘導体から合成されるフェノール樹脂と、を原料とするエポキシ樹脂であれば、特に限定されない。例えば、フェノール、クレゾール等のフェノール化合物及びナフトール、ジメチルナフトール等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種と、ジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ピフェニル又はこれらの誘導体とから合成されるフェノール樹脂をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂が好ましく、下記一般式(X)及び(X1)で表されるエポキシ樹脂がより好ましい。

[0049] 下記一般式(X)で表されるエポキシ樹脂の中でも、iが0であり、R³⁸が水素原子であるNC-3000S(日本化薬株式会社、商品名)、iが0であり、R³⁸が水素原子であるエポキシ樹脂と一般式(11)の全てのR⁸が水素原子であるエポキシ樹脂を質量比80:20で混合したCER-3000(日本化薬株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。また、

下記一般式 (X1) で表されるエポキシ樹脂の中でも、 i が 0 であり、 j が 0 であり、 k が 0 である ESN-175 (日鉄ケミカル&マテリアル株式会社、商品名) 等が市販品として入手可能である。

[0050] [化11]



[0051] 式 (X) 及び (X1) において、 R^{38} は水素原子又は炭素数 1~18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 R^{37} 、 R^{39} ~ R^{41} は炭素数 1~18 の 1 価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 i はそれぞれ独立に 0~3 の整数であり、 j はそれぞれ独立に 0~2 の整数であり、 k はそれぞれ独立に 0~4 の整数であり、 l はそれぞれ独立に 0~6 の整数を示す。 n は平均値であり、それぞれ独立に 0~10 の数である。

[0052] 上記一般式 (11) ~ (X1) 中の R^8 ~ R^{21} 及び R^{37} ~ R^{41} について、「それぞれ全てが同一でも異なってもよい」とは、例えば、式 (11) 中の 8~88 個の R^8 の全てが同一でも異なってもよいことを意味している。他の R^9 ~ R^{21} 及び R^{37} ~ R^{41} についても、式中に含まれるそれぞれの個数について全てが同一でも異なってもよいことを意味している。また、 R^8 ~ R^{21} 及び R^{37} ~ R^{41} はそれぞれが同一でも異なってもよい。例えば、 R^9 と R^{10} の全てについて同一でも異なってもよい。

また、一般式 (111) ~ (X1) における炭素数 1~18 の 1 価の有機基はアルキル基又はアリール基であることが好ましい。

[0053] 上記一般式 (I I) ~ (X I) 中の n は、平均値であり、それぞれ独立に 0 ~ 10 の範囲であることが好ましい。 n が 10 以下であると樹脂成分の溶融粘度が高くなりすぎず、封止材組成物の溶融成形時の粘度が低下し、充填不良、ボンディングワイヤ（素子とリードを接続する金線）の変形等の発生が抑制される傾向にある。 n は 0 ~ 4 の範囲に設定されることがより好ましい。

[0054] エポキシ樹脂のエポキシ当量は特に制限されない。成形性、耐リフロー性及び電氣的信頼等の各種特性バランスの観点からは、エポキシ樹脂の官能基当量は、 $100\text{ g/e q} \sim 1000\text{ g/e q}$ であることが好ましく、 $150\text{ g/e q} \sim 500\text{ g/e q}$ であることがより好ましい。エポキシ樹脂のエポキシ当量は、 J I S K 7236 : 2009 に準じた方法で測定される値とする。

[0055] エポキシ樹脂が固体である場合、その軟化点又は融点は特に制限されない。成形性と耐リフロー性の観点からは $40^\circ\text{C} \sim 180^\circ\text{C}$ であることが好ましく、封止材組成物の調製の際の取扱い性の観点からは $50^\circ\text{C} \sim 130^\circ\text{C}$ であることがより好ましい。エポキシ樹脂の融点は示差走査熱量測定 (D S C) で測定される値とし、エポキシ樹脂の軟化点は J I S

K 7234 : 1986 に準じた方法（環球法）で測定される値とする。

[0056] 封止材組成物中のエポキシ樹脂の含有率は、強度、粘度、耐熱性、成形性等の観点から 0.5 質量% ~ 50 質量% であることが好ましく、 2 質量% ~ 30 質量% であることがより好ましい。

[0057] [硬化剤]

硬化剤は、封止材組成物に一般に使用されているものであれば特に制限はない。具体的には、フェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノール A、ビスフェノール F、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール類及び / 又は α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類からなる群より選ばれる少なくとも 1 種とホルムアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド

基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック型フェノール樹脂；フェノール類及びナフトール類からなる群より選ばれる少なくとも1種とジメトキシパラキシレン又はビス（メトキシメチル）ビフェニルとから合成されるフェノール・アラルキル樹脂；ナフトール・アラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂；フェノール類及びナフトール類からなる群より選ばれる少なくとも1種とシクロペンタジエンとから共重合により合成されるジクロペンタジエン型フェノールノボラック樹脂；ナフトールノボラック樹脂等のジクロペンタジエン型フェノール樹脂；テルペン変性フェノール樹脂等が挙げられる。

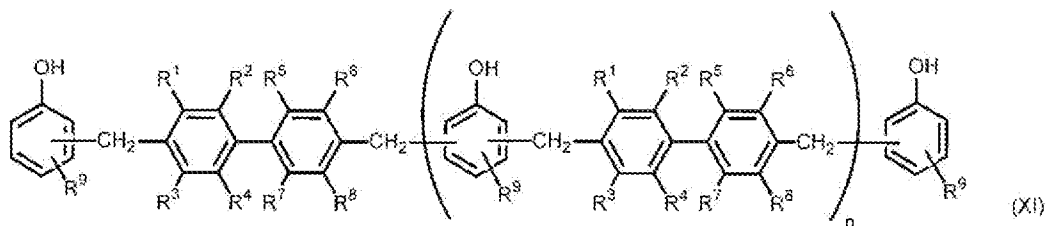
これらは1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0058] なかでも、難燃性の観点からはビフェニル型フェノール樹脂が好ましい。また耐リフロー性及び硬化性の観点からはアラルキル型フェノール樹脂が好ましい。また低吸湿性の観点からはジシクロペンタジエン型フェノール樹脂が好ましい。また耐熱性、低膨張率及び低そり性の観点からはトリフェニルメタン型フェノール樹脂が好ましい。また硬化性の観点からはノボラック型フェノール樹脂が好ましい。

前記硬化剤は、これらのフェノール樹脂から選ばれる少なくとも1種を含有していることがより好ましい。

[0059] ビフェニル型フェノール樹脂としては、たとえば下記一般式（X1）で示されるフェノール樹脂等が挙げられる。

[0060] [化12]



[0061] 上記式 (X I) 中の $R^1 \sim R^9$ はそれぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基及びイソブチル基等の炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基及びブトキシ基等の炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基、フェニル基、トリル基及びキシリル基等の炭素数 6 ~ 10 のアリール基、又は、ベンジル基及びフェネチル基等の炭素数 6 ~ 10 のアラルキル基を示す。なかでも水素原子及びメチル基が好ましい。n は 0 ~ 10 の整数を示す。

[0062] 上記一般式 (X I) で示されるビフェニル型フェノール樹脂としては、 $R^1 \sim R^9$ が全て水素原子である化合物等が挙げられ、なかでも熔融粘度の観点から、n が 1 以上の縮合体を 50 質量%以上含む縮合体の混合物が好ましい。このような化合物としては、MEH-7851 (明和化成株式会社製商品名) が市販品として入手可能である。

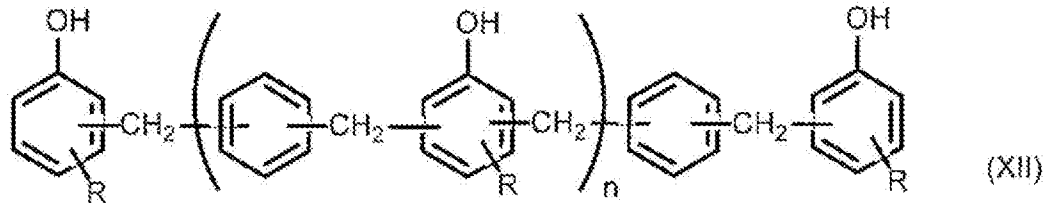
ビフェニル型フェノール樹脂を使用する場合、その含有率は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して 30 質量%以上とすることが好ましく、50 質量%以上がより好ましく、80 質量%以上がさらに好ましい。

[0063] アラルキル型フェノール樹脂としては、フェノール・アラルキル樹脂、ナフトール・アラルキル樹脂等が挙げられる。中でも下記一般式 (X II) で示されるフェノール・アラルキル樹脂が好ましく、一般式 (X II) 中の R が水素原子で、n の平均値が 0 ~ 8 であるフェノール・アラルキル樹脂がより好ましい。具体例としては、p-キシリレン型フェノール・アラルキル樹脂、m-キシリレン型フェノール・アラルキル樹脂等が挙げられる。

これらのアラルキル型フェノール樹脂を用いる場合、その含有率は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して 30 質量%以上とすることが好ましく、50 質量%以上がより好ましい。

[0064]

[化13]

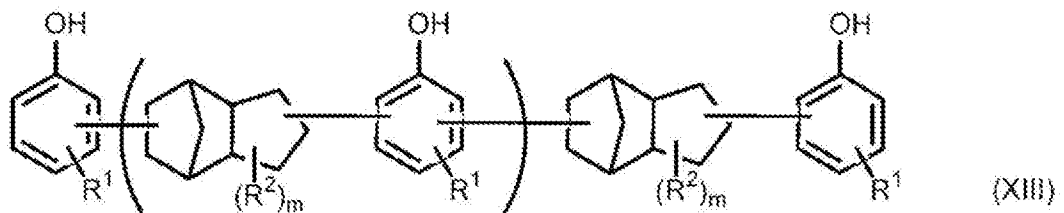


[0065] ここで、Rはそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基を示す。nは0～10の整数を示す。

Rにおける炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基としては、メチル基等が挙げられる。

[0066] ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂としては、下記一般式(XIII)で示されるフェノール樹脂等が挙げられる。

[0067] [化14]



[0068] ここで、R¹及びR²はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基を示す。R²はそれぞれ独立に、炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基を示す。nは0～10の整数を示し、mは0～6の整数を示す。

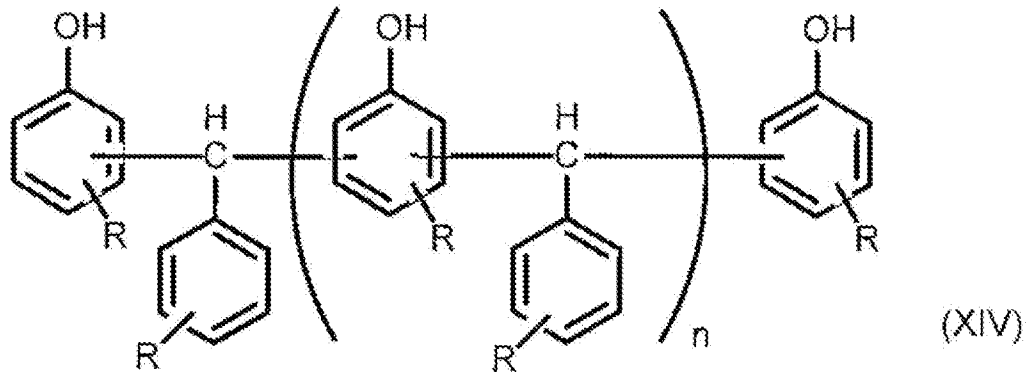
R¹及びR²における炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基としては、メチル基等が挙げられる。

[0069] ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂を用いる場合、その含有率は、そ

の性能を発揮するために硬化剤全量に対して30質量%以上とすることが好ましく、50質量%以上がより好ましい。

[0070] トリフェニルメタン型フェノール樹脂としては、下記一般式(XIV)で示されるフェノール樹脂等が挙げられる。

[0071] [化15]



[0072] ここで、Rはそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基を示す。nは0～10の整数を示す。

Rにおける炭素数1～10の置換若しくは非置換の1価の炭化水素基としては、メチル基等が挙げられる。

トリフェニルメタン型フェノール樹脂を用いる場合、その含有率は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して30質量%以上とすることが好ましく、50質量%以上がより好ましい。

[0073] ノボラック型フェノール樹脂としては、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトールノボラック樹脂等が挙げられ、なかでもフェノールノボラック樹脂が好ましい。ノボラック型フェノール樹脂を用いる場合、その含有率は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して30質量%以上とすることが好ましく、50質量%以上がより好ましい。

[0074] 上記のビフェニル型フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、トリフェニルメタン型フェノール樹脂

及びノボラック型フェノール樹脂は、いずれか1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。特にビフェニル型フェノール樹脂やアラルキル型フェノール樹脂を含むことで、接触角を小さくすることができ好ましい。また、それぞれのフェノール樹脂の含有率は硬化剤全量に対して合わせて60質量%以上とすることが好ましく、80質量%以上がより好ましい。

[0075] (A) エポキシ樹脂と (B) 硬化剤との当量比、すなわち、エポキシ樹脂中のエポキシ基数に対する硬化剤中の水酸基数の比（硬化剤中の水酸基数／エポキシ樹脂中のエポキシ基数）は特に制限はない。それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5～2の範囲に設定されることが好ましく、0.6～1.3がより好ましい。成形性及び耐リフロー性に優れる圧縮成形用固形封止樹脂組成物を得るためには0.8～1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

[0076] [無機充填材]

封止材組成物は、無機充填材を含む。特に、封止材組成物を半導体パッケージの封止材として用いる場合には、無機充填材を含むことが好ましい。

[0077] 無機充填材の種類は、特に制限されない。具体的には、溶融シリカ、結晶シリカ、ガラス、アルミナ、炭酸カルシウム、ケイ酸ジルコニウム、ケイ酸カルシウム、窒化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア、タルク、クレー、マイカ等の無機材料が挙げられる。難燃効果を有する無機充填材を用いてもよい。難燃効果を有する無機充填材としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、マグネシウムと亜鉛の複合水酸化物等の複合金属水酸化物、硼酸亜鉛などが挙げられる。中でも、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカが好ましく、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。無機充填材は1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。無機充填材の状態としては粉末、粉末を球形化したビーズ、繊維等が挙げられる。

[0078] なお、「無機充填材を2種類以上組み合わせ用いる」とは、例えば、同

じ成分で平均粒子径が異なる無機充填材を2種類以上用いる場合、平均粒子径が同じで成分の異なる無機充填材を2種類以上用いる場合並びに平均粒子径及び種類の異なる無機充填材を2種類以上用いる場合が挙げられる。

[0079] 封止材組成物が無機充填材を含む場合、その含有率は特に制限されない。粘度及び強度の観点からは、封止材組成物全体の30体積%~90体積%であることが好ましく、35体積%~88体積%であることがより好ましく、40体積%~85体積%であることがさらに好ましい。無機充填材の含有率が封止材組成物全体の30体積%以上であると、硬化物の熱膨張係数、熱伝導率、弾性率等の特性がより向上する傾向にある。無機充填材の含有率が封止材組成物全体の90体積%以下であると、封止材組成物の粘度の上昇が抑制され、粘度がより向上して成形性がより良好になる傾向にある。

[0080] また、封止材組成物が無機充填材を含む場合、無機充填材の含有率は、耐リフロー性及び粘度の観点から、封止材組成物全体の80質量%~95質量%であることが好ましく、85質量%~94質量%であることがより好ましく、88質量%~93質量%であることがさらに好ましい。無機充填材の含有率が封止材組成物全体の80質量%以上であると、耐リフロー性が向上する傾向がある。無機充填材の含有率が封止材組成物全体の95質量%以下であると、粘度に優れる傾向がある。

[0081] 無機充填材の平均粒子径は、特に制限されない。例えば、体積平均粒子径が0.2 μ m~80 μ mであることが好ましく、0.5 μ m~70 μ mであることがより好ましい。体積平均粒子径が0.2 μ m以上であると、封止材組成物の粘度の上昇がより抑制される傾向がある。体積平均粒子径が80 μ m以下であると、狭い隙間への充填性がより向上する傾向にある。無機充填材の体積平均粒子径は、レーザー回折散乱法粒度分布測定装置により、体積平均粒子径(D50)として測定することができる。

[0082] 封止材組成物又はその硬化物中の無機充填材の体積平均粒子径は、公知の方法によって測定することができる。例えば、有機溶剤、硝酸、王水等を用いて、封止材組成物又は硬化物から無機充填材を抽出し、超音波分散機など

で十分に分散して分散液を調製する。この分散液を用いて、レーザー回折散乱法粒度分布測定装置により測定される体積基準の粒度分布から、無機充填材の体積平均粒子径を測定することができる。あるいは、硬化物を透明なエポキシ樹脂等に埋め込み、研磨して得られる断面を走査型電子顕微鏡にて観察して得られる体積基準の粒度分布から、無機充填材の体積平均粒子径を測定することができる。さらには、FIB装置（集束イオンビームSEM）などを用いて、硬化物の二次元の断面観察を連続的に行い、三次元構造解析を行なうことで測定することもできる。

[0083] 無機充填材の最大粒子径（カットポイントともいう）は特に制限されない。狭い隙間への充填性の観点からは、無機充填材の最大粒子径は $150\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $75\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $55\ \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

[0084] 封止材組成物の混練性の観点からは、無機充填材の粒子形状は角形よりも球形が好ましく、また無機充填材の粒度分布は広範囲に分布したものが好ましい。

[0085] 高熱伝導性の硬化物を得る場合には、無機充填材はアルミナを含むことが好ましく、アルミナを主成分として含むことがより好ましい。無機充填材がアルミナを含む場合のアルミナの平均粒子径は特に制限されない。例えば、アルミナの体積平均粒子径は $0.2\ \mu\text{m}\sim 80\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.5\ \mu\text{m}\sim 70\ \mu\text{m}$ であることがより好ましい。体積平均粒子径が $0.2\ \mu\text{m}$ 以上であると、封止材組成物の粘度の上昇が抑制される傾向がある。体積平均粒子径が $80\ \mu\text{m}$ 以下であると、狭い隙間への充填性が向上する傾向にある。

[0086] アルミナの最大粒子径は特に制限されない。狭い隙間への充填性の観点からは、アルミナの最大粒子径は $150\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $75\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $55\ \mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。

[0087] 好ましい一実施形態において、平均粒子径が $0.1\ \mu\text{m}\sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、好

ましくは $0.2\ \mu\text{m}$ ～ $1.5\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.3\ \mu\text{m}$ ～ $1.0\ \mu\text{m}$ のアルミナと、平均粒子径が $2.0\ \mu\text{m}$ を超え $75\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $5.0\ \mu\text{m}$ ～ $55\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは $8.0\ \mu\text{m}$ ～ $20\ \mu\text{m}$ のアルミナと、を併用してもよい。平均粒子径の異なる2種類以上のアルミナを併用することによって、充填性を好適なものとすることができる傾向にある。

[0088] アルミナの形状は特に制限されない。封止材組成物の混練性の観点からは、アルミナの粒子形状は球形であることが好ましい。

[0089] 無機充填材がアルミナを含む場合、高熱伝導化の観点からは、無機充填材の全質量に対するアルミナの含有率は、90質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。また、低粘度化、混練の作業性等の観点からは、無機充填材の全質量に対するアルミナの含有率は、99.9質量%以下であることが好ましく、99.8質量%以下であることがより好ましく、99.7質量%以下であることがさらに好ましい。

[0090] 無機充填材がアルミナを含む場合、無機充填材はアルミナに加えてシリカを含むことが好ましい。無機充填材がシリカを含むと、粘度が低下し、混練性及び流動性を向上させることができる傾向にあり、特に微細なシリカを併用することで、硬化物としたときのバリの発生が抑制される傾向にある。特に、無機充填材は微粒シリカ、例えば平均粒子径が $0.01\ \mu\text{m}$ ～ $2.0\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.1\ \mu\text{m}$ ～ $1.5\ \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.2\ \mu\text{m}$ ～ $1.0\ \mu\text{m}$ のシリカを含むことが好ましい。弾性率の低減、線膨張係数の低減の観点から無機充填材は大粒子径シリカを含むことが好ましい。

大粒径シリカとしては、好ましくは $2.0\ \mu\text{m}$ を超え $75\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $5.0\ \mu\text{m}$ ～ $55\ \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $8.0\ \mu\text{m}$ ～ $20\ \mu\text{m}$ であるシリカが挙げられる

。

[0091] 耐リフロー性、粘度の上昇抑制等の観点からは、無機充填材はシリカを含むことが好ましく、シリカを主成分として含んでいてもよい。無機充填材が

シリカを含む場合のシリカの平均粒子径は特に制限されない。例えば、シリカの体積平均粒子径は $0.2\ \mu\text{m}\sim 80\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.5\ \mu\text{m}\sim 70\ \mu\text{m}$ であることがより好ましい。体積平均粒子径が $0.2\ \mu\text{m}$ 以上であると、封止材組成物の粘度の上昇が抑制される傾向がある。体積平均粒子径が $80\ \mu\text{m}$ 以下であると、狭い隙間への充填性が向上する傾向にある。ま

た、無機充填材は微粒シリカ、例えば平均粒子径が $0.01\ \mu\text{m}\sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.1\ \mu\text{m}\sim 1.5\ \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.2\ \mu\text{m}\sim 1.0\ \mu\text{m}$ のシリカを含むことが好ましい。無機充填材が微粒シリカを含むと、狭部への充填性が向上し、硬化物としたときのバリの発生が抑制される傾向にある。

[0092] シリカの最大粒子径は特に制限されない。狭い隙間への充填性の観点からは、シリカの最大粒子径は $150\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $75\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $55\ \mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。

[0093] シリカの形状は特に制限されない。封止材組成物の混練性の観点からは、シリカの粒子形状は球形であることが好ましい。

[0094] 無機充填材がシリカを含む場合、シリカの含有率は特に限定されず、無機充填材の全質量に対して $70\ \text{質量}\%\sim 100\ \text{質量}\%$ であってもよく、 $80\ \text{質量}\%\sim 100\ \text{質量}\%$ であってもよく、 $90\ \text{質量}\%\sim 100\ \text{質量}\%$ であってもよい。また、シリカをアルミナと併用する場合のシリカの含有率は、無機充填材の全質量に対して $0.1\ \text{質量}\%\sim 10\ \text{質量}\%$ であってもよく、 $0.2\ \text{質量}\%\sim 5\ \text{質量}\%$ であってもよく、 $0.3\ \text{質量}\%\sim 2\ \text{質量}\%$ であってもよい。

[0095] [シリコーン化合物]

封止材組成物は、シリコーン化合物を含む。シリコーン化合物は、 CDCI_3 中での ^1H NMRの測定結果において、 $-0.3\ \text{ppm}\sim 0.3\ \text{ppm}$ に現れるケミカルシフトの積分値を300としたときに $3.0\ \text{ppm}\sim 4.0\ \text{ppm}$ に現れるケミカルシフトの積分値が350以下である。

[0096] 上述の通り、 $-0.3\text{ ppm}\sim 0.3\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトAは、シリコン化合物における疎水性有機部分に該当するケミカルシフトであり、具体的には、ケイ素原子に結合する炭素原子上の水素原子に対応するケミカルシフトが含まれ、例えば、 $\equiv\text{Si}-\text{CH}_3$ のメチル基における水素原子等に対応するケミカルシフトである。

また、 $3.0\text{ ppm}\sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBは、シリコン化合物における親水性有機部分に該当するケミカルシフトであり、具体的には、エーテル性の酸素原子に結合する炭素原子上の水素原子に対応するケミカルシフトが含まれ、例えば、 $-\text{O}-\text{CH}_2-$ のメチレン基における水素原子等に対応するケミカルシフトである。

[0097] ケミカルシフトAの積分値を300として相対化したときに、ケミカルシフトBの積分値は350以下であり、320以下であることが好ましく、200以下であることがより好ましく、100以下であることがさらに好ましい。

封止材組成物の粘度を抑えてワイヤ流れを抑制する観点からは、ケミカルシフトAの積分値を300として相対化したときに、ケミカルシフトBの積分値は40以上であることが好ましく、45以上であることがより好ましく、減圧開始直後から発泡を抑える観点からは、75以上であることがさらに好ましい。

ケミカルシフトBの積分値が40以上の場合、シリコン化合物における疎水性有機部分が適度に抑えられ、封止材組成物における樹脂成分との相溶性が適度に高くなり、シリコン化合物どうしで凝集するのが抑えられる。したがって、泡膜のような表面側にシリコン化合物が均一に染み出すことができるため、消泡機能が発揮されにくくなるものと考えられる。

また、シリコン化合物が凝集するのが抑えられることから、封止材組成物の粘度上昇も抑えられる傾向にある。

[0098] CDCl_3 中でのシリコン化合物の ^1H NMRの測定方法は、以下のとおりである。

試料 10 mg を CDCl_3 (テトラメチルシラン (TMS) を含まない) 0.7 mL に溶解し、超電導フーリエ変換型核磁気共鳴装置 (例えば、Bruker 製「AVANCE 3 HD 400 Nanobay」) で共鳴周波数 400 MHz、温度 25°C、積算回数 16 回、緩和時間 1 秒で測定する。

[0099] 封止材組成物からシリコン化合物を取り出す方法は、以下のとおりである。

封止材組成物 20 g を 40 mL のアセトンに溶解し、遠心分離器により、上澄みの有機成分のみ抽出を行った。その後、抽出された有機分を GPC : LC ポンプ LC-20AR (株式会社島津製作所製)、デガッサー : DGU-20A3R (株式会社島津製作所製) でカラム : GL-R450、GL-R440、GL-R400、溶媒 : アセトン、カラム温度 : 室温 (25°C)、流量 : 4.0 mL/min、検出器 : 示差屈折率検出器 (RI) RID-20A (島津製作所製) により分取を行い、シリコン化合物を取り出す。

[0100] シリコン化合物は、ポリエーテル部位を有することが好ましい。ポリエーテル部位の構造としては、ポリエチレンオキシ基、ポリプロピレンオキシ基等が挙げられる。ポリエーテル部位の構造は、1 種単独であっても、2 種以上の組み合わせであってもよい。

[0101] シリコン化合物におけるポリエーテル部位の配置位置は、側鎖、主鎖、及び末端のいずれであってもよい。

[0102] ポリエーテル部位の配置位置が側鎖又は末端の場合、ポリエーテル部位の構造は、下記式 (1) で表される構造であってもよい。 $\text{C}_2\text{H}_4\text{O}$ と $\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$ とは、ランダム、交互又はブロックの順序で含まれていてもよい。

[0103]
$$-(R^1)_x (C_2H_4O)_y (C_3H_6O)_z R^2 \quad \text{式 (1)}$$

[0104] 式 (1) 中、 R^1 はアルキレン基を表し、 R^2 はアルキル基を表し、 x は 0 又は 1 を表し、 y 及び z はそれぞれ独立に 0~40 を示す。

R^1 で表されるアルキレン基の炭素数は 1~15 であってもよく、 R^2 で表されるアルキル基の炭素数は 1~15 であってもよい。

[0105] ポリエーテル部位の配置位置が主鎖の場合、ポリエーテル部位の構造は、下記式（２）で表される構造であってもよい。

[0106]
$$- (R^1)_x (C_2H_4O)_y (C_3H_6O)_z (R^1)_x$$
 式（２）

[0107] 式（２）における、 R^1 、 x 、 y 及び z は、式（１）における、 R^1 、 x 、 y 及び z とそれぞれ同義である。

[0108] シリコン化合物は、ジメチルシリコン、ジフェニルシリコン、メチルフェニルシリコン等、いずれであってもよい。また、シリコン化合物は、ポリエーテル部位に加えて他の官能基を有していてもよい。他の官能基としては、水酸基等が挙げられる。

[0109] シリコン化合物の含有量は、エポキシ樹脂１００質量部に対して５質量部以下であることが好ましく、３質量部以下であることがより好ましく、２質量部以下であることがさらに好ましい。

また、シリコン化合物の含有量は、エポキシ樹脂１００質量部に対して０．０１質量部以上であることが好ましく、０．０５質量部以上であることがより好ましく、０．１質量部以上であることがさらに好ましい。

[0110] [硬化促進剤]

封止材組成物は、硬化促進剤を含んでもよい。硬化促進剤の種類は特に制限されず、エポキシ樹脂の種類、封止材組成物の所望の特性等に応じて選択できる。

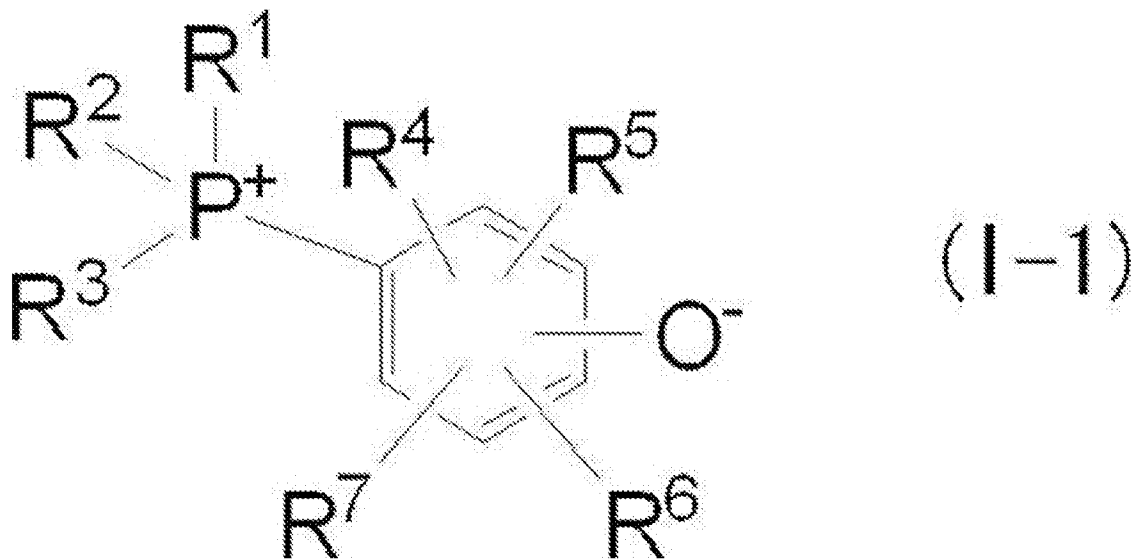
[0111] 硬化性及び粘度の観点からは、硬化促進剤はホスホニウム化合物を含むことが好ましい。ホスホニウム化合物として具体的には、トリフェニルホスフィン、ジフェニル（*p*-トリル）ホスフィン、トリス（アルキルフェニル）ホスフィン、トリス（アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（アルキル・アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルコキシフェニル）ホスフィン、トリアルキルホスフィン、ジアルキルアリーールホスフ

イン、アルキルジアリールホスフィン等の三級ホスフィンと、無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5-トルキノン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジメチルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノン、フェニル-1,4-ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニルメタンなどの、 π 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；前記三級ホスフィン又は前記ホスフィン化合物と4-ブロモフェノール、3-ブロモフェノール、2-ブロモフェノール、4-クロロフェノール、3-クロロフェノール、2-クロロフェノール、4-ヨウ化フェノール、3-ヨウ化フェノール、2-ヨウ化フェノール、4-ブロモ-2-メチルフェノール、4-ブロモ-3-メチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジメチルフェノール、4-ブロモ-3,5-ジメチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジ-tert-ブチルフェノール、4-クロロ-1-ナフトール、1-ブロモ-2-ナフトール、6-ブロモ-2-ナフトール、4-ブロモ-4'-ヒドロキシビフェニル等のハロゲン化フェノール化合物を反応させた後に、脱ハロゲン化水素の工程を経て得られる、分子内分極を有する化合物；テトラフェニルホスホニウム等のテトラ置換ホスホニウム、テトラ-p-トリルボレート等のホウ素原子に結合したフェニル基がないテトラ置換ホスホニウム及びテトラ置換ボレート；テトラ置換ホスホニウムとフェノール化合物からプロトンが脱離したアニオンとの塩、テトラ置換ホスホニウムとカルボン酸化合物からプロトンが脱離したアニオンとの塩、などが挙げられる。

[0112] 上記ホスホニウム化合物の中でも、下記一般式(1-1)で表される化合物(以下、特定硬化促進剤とも称する)が好ましい。

[0113]

[化16]



[0114] 式 (I-1) 中、 $R^1 \sim R^3$ は、それぞれ独立して、炭素数 1 ~ 18 の炭化水素基であり、 $R^1 \sim R^3$ のうち 2 以上が互いに結合して環状構造を形成してもよく、 $R^4 \sim R^7$ は、それぞれ独立して、水素原子、水酸基又は炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基であり、 $R^4 \sim R^7$ のうち 2 以上が互いに結合して環状構造を形成してもよい。

[0115] 一般式 (I-1) の $R^1 \sim R^3$ として記載した「炭素数 1 ~ 18 の炭化水素基」は、炭素数が 1 ~ 18 である脂肪族炭化水素基及び炭素数が 6 ~ 18 である芳香族炭化水素基を含む。

[0116] 粘度の観点からは、炭素数 1 ~ 18 の脂肪族炭化水素基は炭素数 1 ~ 8 であることが好ましく、2 ~ 6 であることがより好ましく、4 ~ 6 であることがさらに好ましい。

[0117] 炭素数 1 ~ 18 の脂肪族炭化水素基は、炭素数 1 ~ 18 の直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基であっても、炭素数 3 ~ 18 の脂環式炭化水素基であってもよい。製造しやすさの観点からは、直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基であることが好ましい。

[0118] 炭素数 1 ~ 18 の直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基として具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*

ーブチル基、*t*ーブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基等のアルキル基、アリル基、ビニル基などが挙げられる。直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。置換基としては、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基、*t*ーブトキシ基等のアルコキシ基、フェニル基、ナフチル基等のアリール基、水酸基、アミノ基、ハロゲン原子などが挙げられる。直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基は2以上の置換基を有してもよく、その場合の置換基は同じでも異なってもよい。直鎖又は分岐状の脂肪族炭化水素基が置換基を有する場合、脂肪族炭化水素基と置換基に含まれる炭素数の合計が1~18であることが好ましい。硬化性の観点からは無置換のアルキル基が好ましく、炭素数1~8の無置換のアルキル基がより好ましく、*n*-ーブチル基、イソブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基及び*n*-オクチル基がさらに好ましい。

[0119] 炭素数3~18の脂環式炭化水素として具体的には、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、シクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等のシクロアルケニル基などが挙げられる。脂環式炭化水素基は、置換基を有していても有していなくてもよい。置換基としては、メチル基、エチル基、ブチル基、*tert*-ーブチル基等のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基、*t*-ーブトキシ基等のアルコキシ基、フェニル基、ナフチル基等のアリール基、水酸基、アミノ基、ハロゲン原子などが挙げられる。脂環式炭化水素基は2以上の置換基を有してもよく、その場合の置換基は同じでも異なってもよい。脂環式炭化水素基が置換基を有する場合、脂環式炭化水素基と置換基に含まれる炭素数の合計が3~18であることが好ましい。脂環式炭化水素基が置換基を有する場合、置換基の位置は特に限定されない。硬化性の観点からは無置換のシクロアルキル基が好ましく、炭素数4~10の無置換のシクロアルキル基がより好ましく、シクロヘキシル基、シクロペンチル基及びシクロヘプチル基がさらに好ましい。

[0120] 炭素数が6~18である芳香族炭化水素基は炭素数6~14であることが

好ましく、6～10であることがより好ましい。芳香族炭化水素基は置換基を有していても、有していなくてもよい。置換基としては、メチル基、エチル基、ブチル基、*t*-ブチル基等のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基、*t*-ブトキシ基等のアルコキシ基、フェニル基、ナフチル基等のアリール基、水酸基、アミノ基、ハロゲン原子などが挙げられる。芳香族炭化水素基は2以上の置換基を有してもよく、その場合の置換基は同じでも異なってもよい。芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、芳香族炭化水素基と置換基に含まれる炭素数の合計が6～18であることが好ましい。芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、置換基の位置は特に限定されない。

[0121] 炭素数が6～18である芳香族炭化水素基として具体的には、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基、ブチルフェニル基、*t*-ブチルフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、ブトキシフェニル基、*t*-ブトキシフェニル基が挙げられる。これらの芳香族炭化水素基における置換基の位置はオルト位、メタ位及びパラ位のうちいずれでもよい。粘度の観点からは、無置換で炭素数が6～12又は置換基を含めた炭素数が6～12のアリール基が好ましく、無置換で炭素数が6～10又は置換基を含めた炭素数6～10のアリール基がより好ましく、フェニル基、*p*-トリル基及び*p*-メトキシフェニル基がさらに好ましい。

[0122] 一般式(1-1)の $R^1 \sim R^3$ として記載した用語「 $R^1 \sim R^3$ のうち2以上が互いに結合して環状構造を形成してもよい」とは、 $R^1 \sim R^3$ のうち2個又は3個が結合し、全体としてひとつの2価又は3価の炭化水素基となる場合を意味する。この場合の $R^1 \sim R^3$ の例としては、リン原子と結合して環状構造を形成し得るエチレン、プロピレン、ブチレン、ペンチレン、ヘキシレン等のアルキレン基、エチレニレン、プロピレニレン、ブチレニレン基等のアルケニレン基、メチレンフェニレン基等のアラルキレン基、フェニレン、ナフチレン、アントラセニレン等のアリーレン基等の、リン原子と結合して環

状構造を形成しうる置換基が挙げられる。これらの置換基はさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、水酸基、ハロゲン原子等で置換されていてもよい。

[0123] 上記一般式 (I-1) の $R^4 \sim R^7$ として記載した「炭素数 1 ~ 18 の 1 価の有機基」は、炭素数 1 ~ 18 であり、かつ置換されても置換されていなくてもよい脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、脂肪族炭化水素オキシ基、芳香族炭化水素オキシ基、アシル基、炭化水素オキシカルボニル基、及びアシルオキシ基を含むことを意味する。

[0124] 上記脂肪族炭化水素基及び芳香族炭化水素基の例としては、 $R^1 \sim R^3$ で表される脂肪族炭化水素基及び芳香族炭化水素基の例として上述したものが挙げられる。

[0125] 上記脂肪族炭化水素オキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、2-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、アリルオキシ基、ビニルオキシ基等の上述の脂肪族炭化水素基に酸素原子が結合した構造のオキシ基、これらの脂肪族炭化水素オキシ基がさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、水酸基、ハロゲン原子等で置換されたものなどが挙げられる。

[0126] 上記芳香族炭化水素オキシ基としては、フェノキシ基、メチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基、メトキシフェノキシ基、ブトキシフェノキシ基、フェノキシフェノキシ基等の上述の芳香族炭化水素基に酸素原子が結合した構造のオキシ基、これらの芳香族炭化水素オキシ基がさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等で置換されたものなどが挙げられる。

[0127] 上記アシル基としては、ホルミル基、アセチル基、エチルカルボニル基、ブチリル基、シクロヘキシルカルボニル基、アリルカルボニル等の脂肪族炭化水素カルボニル基、フェニルカルボニル基、メチルフェニルカルボニル基等の芳香族炭化水素カルボニル基等、これらの脂肪族炭化水素カルボニル基

又は芳香族炭化水素カルボニル基がさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等で置換されたものなどが挙げられる。

[0128] 上記炭化水素オキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、アリルオキシカルボニル基、シクロヘキシルオキシカルボニル基等の脂肪族炭化水素オキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基、メチルフェノキシカルボニル基等の芳香族炭化水素オキシカルボニル基、これらの脂肪族炭化水素カルボニルオキシ基又は芳香族炭化水素カルボニルオキシ基がさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等で置換されたものなどが挙げられる。

[0129] 上記アシルオキシ基としては、メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、アリルカルボニルオキシ基、シクロヘキシルカルボニルオキシ基等の脂肪族炭化水素カルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基、メチルフェニルカルボニルオキシ基等の芳香族炭化水素カルボニルオキシ基、これらの脂肪族炭化水素カルボニルオキシ基又は芳香族炭化水素カルボニルオキシ基がさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等で置換されたものなどが挙げられる。

[0130] 上記一般式(1-1)の $R^4 \sim R^7$ として記載した用語「2以上の $R^4 \sim R^7$ が互いに結合して環状構造を形成してもよい」とは、2個～4個の $R^4 \sim R^7$ が結合し、全体としてひとつの2価～4価の有機基を形成してもよいことを意味する。この場合の $R^4 \sim R^7$ としては、エチレン、プロピレン、ブチレン、ペンチレン、ヘキシレン等のアルキレン基、エチレニレン、プロピレニレン、ブチレニレン等のアルケニレン基、メチレンフェニレン等のアラルキレン基、フェニレン、ナフチレン、アントラセニレン等のアリーレン基などの環状構造を形成しうる置換基、これらのオキシ基又はジオキシ基などが挙げられる。これらの置換基はさらにアルキル基、アルコキシ基、アリール基、

アリールオキシ基、アミノ基、水酸基、ハロゲン原子等で置換されていてもよい。

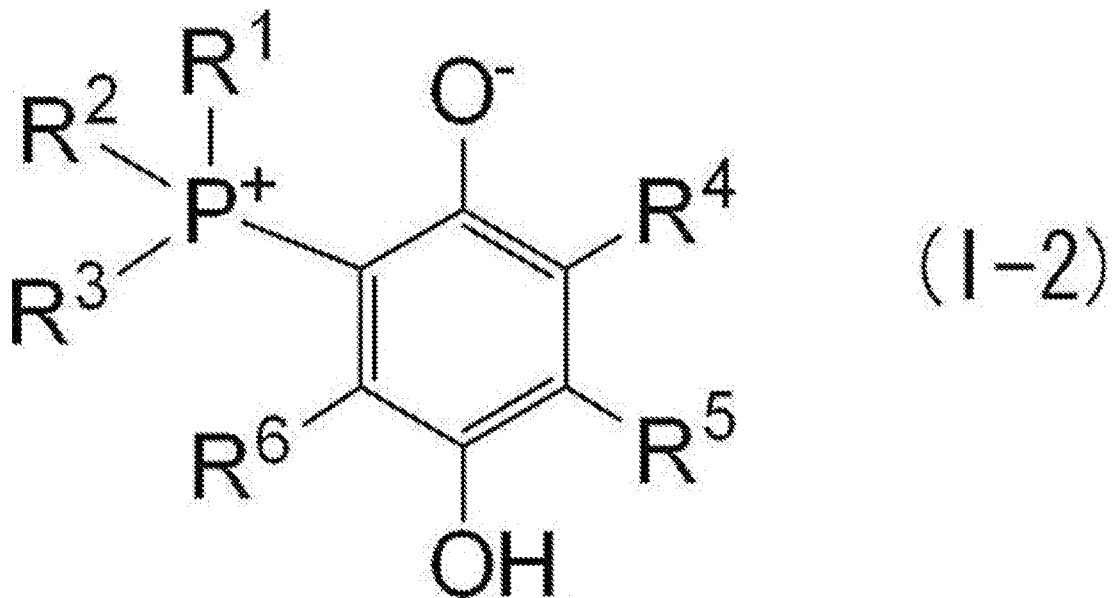
[0131] 上記一般式(1-1)の $R^4 \sim R^7$ としては、特に限定されるものではない。例えば、それぞれ独立に、水素原子、水酸基、置換又は非置換のアルキル基、置換又は非置換のアリール基、置換又は非置換のアルコキシ基、又は置換又は非置換のアリールオキシ基から選択されることが好ましい。中でも原料の入手しやすさの観点からは、水素原子、水酸基、非置換若しくはアルキル基及びアルコキシ基からなる群より選ばれる少なくとも1つで置換されたアリール基、又は鎖状若しくは環状のアルキル基が好ましい。非置換又はアルキル基及びアルコキシ基からなる群より選ばれる少なくとも1つで置換されたアリール基としては、フェニル基、*p*-トリル基、*m*-トリル基、*o*-トリル基、*p*-メトキシフェニル基等が挙げられる。鎖状又は環状のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、2-ブチル基、*t*-ブチル基、オクチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。硬化性の観点からは、 $R^4 \sim R^7$ はすべて水素原子である場合か、又は $R^4 \sim R^7$ の少なくとも一つが水酸基であり、残りがすべて水素原子である場合が好ましい。

[0132] 一般式(1-1)においてより好ましくは、 $R^1 \sim R^3$ のうち2個以上が炭素数1~18のアルキル基又は炭素数3~18のシクロアルキル基であり、 $R^4 \sim R^7$ がすべて水素原子であるか、少なくとも一つが水酸基であり残りがすべて水素原子である。さらに好ましくは、 $R^1 \sim R^3$ のすべてが炭素数1~18のアルキル基又は炭素数3~18のシクロアルキル基であり、 $R^4 \sim R^7$ がすべて水素原子であるか、少なくとも一つが水酸基であり残りがすべて水素原子である。

[0133] 速硬化性の観点からは、特定硬化促進剤は、下記一般式(1-2)で表される化合物であることが好ましい。

[0134]

[化17]



[0135] 式(1-2)中、 $R^1 \sim R^3$ は、それぞれ独立して、炭素数1~18の炭化水素基であり、 $R^1 \sim R^3$ のうち2以上が互いに結合して環状構造を形成してもよく、 $R^4 \sim R^6$ は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数1~18の1価の有機基であり、 $R^4 \sim R^6$ のうち2以上が互いに結合して環状構造を形成してもよい。

[0136] 一般式(1-2)における $R^1 \sim R^6$ の具体例はそれぞれ一般式(1-1)における $R^1 \sim R^6$ の具体例と同様であり、好ましい範囲も同様である。

[0137] 特定硬化促進剤の具体例としては、トリフェニルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、トリ-n-ブチルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、トリシクロヘキシルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、ジシクロヘキシルフェニルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、シクロヘキシルジフェニルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、トリイソブチルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物、トリシクロペンチルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物等が挙げられる。

[0138] 特定硬化促進剤は、例えば、第三ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物として得ることができる。

第三ホスフィン化合物として具体的には、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、ジブチルフェニルホスフィン、ブチルジフェニルホスフィン、エチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス（４－メチルフェニル）ホスフィン、トリス（４－エチルフェニル）ホスフィン、トリス（４－プロピルフェニル）ホスフィン、トリス（４－ブチルフェニル）ホスフィン、トリス（イソプロピルフェニル）ホスフィン、トリス（*t*-ブチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，４－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，６－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，４，６－トリメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，６－ジメチル－４－エトキシフェニル）ホスフィン、トリス（４－メトキシフェニル）ホスフィン、トリス（４－エトキシフェニル）ホスフィン等が挙げられる。成形性の観点からは、トリフェニルホスフィン及びトリブチルホスフィンが好ましい。

[0139] キノン化合物として具体的には、*o*-ベンゾキノ、*p*-ベンゾキノ、ジフェノキノ、１，４－ナフトキノ、アントラキノ等が挙げられる。耐湿性と保存安定性の観点からは、*p*-ベンゾキノが好ましい。

[0140] 封止材組成物は、ホスホニウム化合物以外の硬化促進剤を含んでもよい。

ホスホニウム化合物以外の硬化促進剤として具体的には、１，５－ジアザビシクロ〔４．３．０〕ノネン－５（DBN）、１，８－ジアザビシクロ〔５．４．０〕ウンデセン－７（DBU）等のジアザビシクロアルケン、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－メチルイミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール等の環状アミジン化合物；前記環状アミジン化合物の誘導体；前記環状アミジン化合物又はその誘導体のフェノールノボラック塩；これらの化合物に無水マレイン酸、１，４－ベンゾキノ、２，５－トルキノ、１，４－ナフトキノ、２，３－ジメチルベンゾキノ、２，６－ジメチルベンゾキノ、２，３－ジメトキシ－５

ーメチルー1, 4-ベンゾキノ、2, 3-ジメトキシー1, 4-ベンゾキノ、フェニルー1, 4-ベンゾキノ等のキノ化合物、ジアゾフェニルメタンなどの、 π 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；DBUのテトラフェニルボレート塩、DBNのテトラフェニルボレート塩、2-エチルー4-メチルイミダゾールのテトラフェニルボレート塩、N-メチルモルホリンのテトラフェニルボレート塩等の環状アミジニウム化合物；ピリジン、トリエチルアミン、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール等の三級アミン化合物；前記三級アミン化合物の誘導体；酢酸テトラ-*n*-ブチルアンモニウム、リン酸テトラ-*n*-ブチルアンモニウム、酢酸テトラエチルアンモニウム、安息香酸テトラ-*n*-ヘキシルアンモニウム、水酸化テトラプロピルアンモニウム等のアンモニウム塩化合物などが挙げられる。

[0141] 封止材組成物が硬化促進剤として特定硬化促進剤を含む場合、特定硬化促進剤の含有率は、硬化促進剤全体の30質量%以上であることが好ましく、50質量%以上であることがより好ましく、70質量%以上であることがさらに好ましい。

[0142] 封止材組成物が硬化促進剤を含む場合、その量は、樹脂成分100質量部に対して0.1質量部～30質量部であることが好ましく、1質量部～15質量部であることがより好ましい。硬化促進剤の量が樹脂成分100質量部に対して0.1質量部以上であると、短時間で良好に硬化する傾向にある。硬化促進剤の量が樹脂成分100質量部に対して30質量部以下であると、硬化速度が速すぎず良好な成形品が得られる傾向にある。

[0143] [消泡剤]

封止材組成物は、上記のシリコン化合物以外のその他の消泡剤を含んでもよい。消泡剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、エステル系消泡剤、ポリアルキレン系消泡剤などが挙げられる。消泡剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

封止材組成物がその他の消泡剤を含む場合、シリコン化合物を含めた消泡剤の総量はエポキシ樹脂100質量部に対して0.05質量部～5質量部が好ましく、0.1質量部～3質量部がより好ましい。

[0144] [各種添加剤]

封止材組成物は、上述の成分に加えて、以下に例示するカップリング剤、イオン交換体、離型剤、難燃剤、着色剤、応力緩和剤等の各種添加剤を含んでもよい。封止材組成物は、以下に例示する添加剤以外にも必要に応じて当該技術分野で周知の各種添加剤を含んでもよい。

[0145] (カップリング剤)

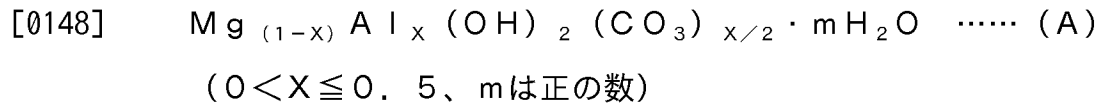
封止材組成物が無機充填材を含む場合は、樹脂成分と無機充填材との接着性を高めるために、カップリング剤を含んでもよい。カップリング剤としては、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン等のシラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート化合物、アルミニウム／ジルコニウム系化合物などの公知のカップリング剤が挙げられる。

[0146] 封止材組成物がカップリング剤を含む場合、カップリング剤の量は、無機充填材100質量部に対して0.05質量部～5質量部であることが好ましく、0.1質量部～2.5質量部であることがより好ましい。カップリング剤の量が無機充填材100質量部に対して0.05質量部以上であると、フレームとの接着性がより向上する傾向にある。カップリング剤の量が無機充填材100質量部に対して5質量部以下であると、パッケージの成形性がより向上する傾向にある。

[0147] (イオン交換体)

封止材組成物は、イオン交換体を含んでもよい。特に、封止材組成物を封止用成形材料として用いる場合には、封止される素子を備える電子部品装置の耐湿性及び高温放置特性を向上させる観点から、イオン交換体を含むことが好ましい。イオン交換体は特に制限されず、従来公知のものをを用いることができる。具体的には、ハイドロタルサイト化合物、並びにマグネシウム、

アルミニウム、チタン、ジルコニウム及びビスマスからなる群より選ばれる少なくとも1種の元素の含水酸化物等が挙げられる。イオン交換体は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。中でも、下記一般式(A)で表されるハイドロタルサイトが好ましい。



[0149] 封止材組成物がイオン交換体を含む場合、その含有量は、ハロゲンイオン等のイオンを捕捉するのに十分な量であれば特に制限はない。例えば、樹脂成分100質量部に対して0.1質量部～30質量部であることが好ましく、1質量部～15質量部であることがより好ましい。

[0150] (離型剤)

封止材組成物は、成形時における金型との良好な離型性を得る観点から、離型剤を含んでもよい。離型剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸等の高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、酸化ポリエチレン、非酸化ポリエチレン等のポリオレフィン系ワックスなどが挙げられる。離型剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0151] 封止材組成物が離型剤を含む場合、その量は樹脂成分100質量部に対して0.01質量部～15質量部が好ましく、0.1質量部～10質量部がより好ましい。離型剤の量が樹脂成分100質量部に対して0.01質量部以上であると、離型性が十分に得られる傾向にある。15質量部以下であると、より良好な接着性が得られる傾向にある。

[0152] 中でも、封止材組成物は、離型剤を含み、離型剤の含有率が封止材組成物の全質量に対して0質量%を超え2.0質量%以下であることが好ましく、0質量%を超え1.5質量%以下であることがより好ましく、0質量%を超え1.2質量%以下であることがさらに好ましい。離型剤を上記含有率で含有することにより、上記含有率よりも多く含有する場合

合と比べて、外観、接着力、及びレーザーマーキング性を顕著に低下させることを抑制できる傾向にある。また、本開示の封止材組成物によれば、離型剤の含有率が上記範囲であっても、良好な離型性を維持することができる傾向にある。

[0153] (難燃剤)

封止材組成物は、難燃剤を含んでもよい。難燃剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ハロゲン原子、アンチモン原子、窒素原子又はリン原子を含む有機又は無機の化合物、金属水酸化物等が挙げられる。難燃剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0154] 封止材組成物が難燃剤を含む場合、その量は、所望の難燃効果を得るのに十分な量であれば特に制限されない。例えば、樹脂成分100質量部に対して1質量部～300質量部であることが好ましく、2質量部～150質量部であることがより好ましい。

[0155] (着色剤)

封止材組成物は、着色剤をさらに含んでもよい。着色剤としてはカーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の公知の着色剤を挙げることができる。着色剤の含有量は目的等に応じて適宜選択できる。着色剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0156] (応力緩和剤)

封止材組成物は、シリコーンゴム粒子等の応力緩和剤を含んでもよい。応力緩和剤を含むことにより、パッケージの反り変形及びパッケージクラックの発生をより低減させることができる。応力緩和剤としては、一般に使用されている公知の応力緩和剤（可とう剤）が挙げられる。具体的には、シリコーン系、スチレン系、オレフィン系、ウレタン系、ポリエステル系、ポリエーテル系、ポリアミド系、ポリブタジエン系等の熱可塑性エラストマー、NR（天然ゴム）、NBR（アクリロニトリルブタジエンゴム）、アクリル

ゴム、ウレタンゴム、シリコンパウダー等のゴム粒子、メタクリル酸メチル-スチレン-ブタジエン共重合体（MBS）、メタクリル酸メチル-シリコン共重合体、メタクリル酸メチル-アクリル酸ブチル共重合体等のコア-シェル構造を有するゴム粒子などが挙げられる。応力緩和剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0157]（封止材組成物の調製方法）

封止材組成物の調製方法は、特に制限されない。一般的な手法としては、所定の配合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって熔融混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。より具体的には、例えば、上述した成分の所定量を均一に攪拌及び混合し、予め70℃～140℃に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。

[0158] 封止材組成物は、常温常圧下（例えば、25℃、大気圧下）において固体であることが好ましい。封止材組成物が固体である場合の形状は特に制限されず、粉状、粒状、タブレット状等が挙げられる。封止材組成物がタブレット状である場合の寸法及び質量は、パッケージの成形条件に合うような寸法及び質量となるようにすることが取り扱い性の観点から好ましい。

[0159] 封止材組成物の140℃での最低熔融粘度は、ワイヤ流れを抑える観点から、300 Pa・s以下であることが好ましく、250 Pa・s以下であることがより好ましく、160 Pa・s以下であることがさらに好ましい。

封止材組成物の140℃での最低熔融粘度は、実施例に記載の方法で測定する。

[0160] 封止材組成物は、熔融性の観点からは小さい方が好ましく、近年の半導体パッケージの小型化及び薄型化の要求を鑑みると小さくすることが望まれる。例えば、封止材組成物の粒径は、2 mm以下であってもよく、1.5 mm以下であってもよく、1 mm以下であってもよい。

また、熔融の際の空気の巻き込みをより効果的に抑える観点からは、封止材組成物はなるべく大きい方が好ましいが、上記の熔融性、半導体パッケー

ジの小型化及び薄型化等を踏まえると、例えば、封止材組成物の粒径は、 $10\mu\text{m}$ 以上であってもよく、 $50\mu\text{m}$ 以上であってもよく、 $100\mu\text{m}$ 以上であってもよい。

以上の観点から、封止材組成物の粒径は、目的に応じて適宜設計することが好ましい。

[0161] <電子部品装置>

本開示の一実施形態である電子部品装置は、素子と、前記素子を封止する上述の封止材組成物の硬化物と、を備える。

電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ、有機基板等の支持部材に、素子（半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子など）を搭載して得られた素子部を封止材組成物で封止したものが挙げられる。

より具体的には、リードフレーム上に素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部とリード部とをワイヤボンディング、バンプ等で接続した後、封止材組成物を用いて封止した構造を有するDIP (Dual In Line Package)、PLCC (Plastic Leaded Chip Carrier)、QFP (Quad Flat Package)、SOP (Small Outline Package)、SOJ (Small Outline J-lead package)、TSOP (Thin Small Outline Package)、TQFP (Thin Quad

Flat Package)等の一般的な樹脂封止型IC;テープキャリアにバンプで接続した素子を封止材組成物で封止した構造を有するTCP (Tape Carrier

Package);支持部材上に形成した配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンディング、はんだ等で接続した素子を、封止材組成物で封止した構造を有するCOB (Chip On Board)モジュール、

ハイブリッドIC、マルチチップモジュール等；裏面に配線板接続用の端子を形成した支持部材の表面に素子を搭載し、バンプ又はワイヤボンディングにより素子と支持部材に形成された配線とを接続した後、封止材組成物で素子を封止した構造を有するBGA (Ball Grid Array)、CSP (Chip Size Package)、MCP (Multi Chip Package) などが挙げられる。また、プリント配線板においても封止材組成物を好適に使用することができる。

実施例

[0162] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0163] [封止材組成物の調製]

エポキシ樹脂100質量部、硬化剤72.6質量部、硬化促進剤1.05質量部、カップリング剤3質量部、離型剤1質量部、着色剤2.44質量部、イオントラップ剤1質量部、無機充填材、及びシリコン化合物を混合し、混練温度100℃の条件で二軸混練機を用いて混練を行うことによって、実施例1～10及び比較例1～2の封止材組成物をそれぞれ調製した。

なお、無機充填材は、球状シリカ1と球状シリカ2とが体積比で9:1（球状シリカ1:球状シリカ2）、総量が封止材組成物中で75体積%となるように配合した。

シリコン化合物は、下記表1に示す量（質量部）で配合した。比較例1ではシリコン化合物を添加しなかった。

使用した原料は以下のとおりである。

[0164] エポキシ樹脂：エポキシ当量272 g/e qのビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂

硬化剤：水酸基当量203 g/e q、軟化点67℃のビフェニルアラルキル型フェノール樹脂

硬化促進剤：トリフェニルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加反応物

[0165] (無機充填材)

球状シリカ1：平均粒子径15 μm

球状シリカ2：平均粒子径0.6 μm

[0166] カップリング剤：N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン

着色剤：カーボンブラック

離型剤：エステルワックス（滴点79℃～83℃、酸価15mg KOH/g～20mg KOH/g、ケン化価140mg KOH/g～160mg KOH/g）

イオントラップ剤：ハイドロタルサイト類化合物、 $Mg_{4.3}Al_{1.2}(OH)_{12.6}CO_3 \cdot mH_2O$

[0167] (シリコーン化合物)

シリコーン化合物1：ポリエーテル変性ヒドロキシポリジメチルシロキサン

シリコーン化合物2：アルキルポリエーテル変性の分岐型ポリジメチルシロキサン

シリコーン化合物3：側鎖ポリエーテル変性の直鎖型ポリジメチルシロキサン

シリコーン化合物4：末端ポリエーテル変性の直鎖型ポリジメチルシロキサン

シリコーン化合物5：エマルション型シロキサン

シリコーン化合物6：両末端エポキシ変性ポリジメチルシロキサン

シリコーン化合物7：ジメチルシロキサン含有シリコーン

[0168] [CDCI₃中でのシリコーン化合物の¹H NMR測定]

上述の方法で、CDCI₃中でのシリコーン化合物の¹H NMR測定を行った。得られた-0.3 ppm～0.3 ppmに現れるケミカルシフトAの積分値を300としたときの3.0 ppm～4.0 ppmに現れるケミカルシフトBの積分値を表1に示す。

[0169] [140℃での最低溶融粘度の測定]

1 gの封止材組成物を準備し、パラレルプレート型回転粘度計（H A A K E社製、製品名レオストレス6000）にて140℃での最低熔融粘度を測定した。

[0170]〔封止材組成物の消泡性の評価〕

封止材組成物の顆粒（2mmメッシュパス、0.5mmメッシュオン）を用意し、175℃に熱した231mm×64mm×1.4mm（深さ）の金型内に、19g撒き入れ、その後、減圧を開始した。

減圧開始から成形完了までの間、観測中、金型の深さ方向の上端からのエポキシ樹脂組成物の最も上昇した長さHを、減圧開始時点（直後）、及び減圧開始から3秒後において測定した。評価基準は以下のとおりである。

[0171] - 評価基準 -

- 1：長さHが、4mm未満
- 2：長さHが、4mm以上8mm未満
- 3：長さHが、8mm以上

[0172]〔ニートレジンの消泡性の評価〕

60mm（内径）×15mm（深さ）のアルミカップに下記封止材組成物7.82gを撒き入れ、140℃のホットプレート上で5分間攪拌した。5分間冷却した後、デシケーター内に備え付けたホットプレート上で180℃に加熱しながら真空ポンプで脱気し、消泡性を観察した。

[0173]（封止材組成物）

エポキシ樹脂：4.5g（2：90質量部）

エポキシ樹脂3：0.5g（10質量部）

硬化剤2：2.76g（55.2質量部）

下記表1の実施例及び比較例に対応するシリコン化合物：0.05g（2質量部）

起泡剤：0.01g（0.2質量部）

[0174] エポキシ樹脂2：エポキシ当量192g／eqのビフェニル型エポキシ樹脂

エポキシ樹脂 3 : エポキシ当量 192 g / e q のビスフェノール F 型エポキシ樹脂

硬化剤 2 : 水酸基当量 106 g / e q、軟化点 83℃ のノボラック型フェノール樹脂

起泡剤 : 有機変性シリコーン

[0175] - 評価基準 -

A : 長さ H が、2 mm 未満

B : 長さ H が、2 mm 以上

[0176] [表1]

	シリコーン化合物								封止材組成物			ニートレジン
									粘度	消泡性		消泡性
	1	2	3	4	5	6	7	積分値	Pa・s	減圧直後	3秒後	
実施例1	2							48.3	180.1	2	1	A
実施例2	0.2								112.2	2	1	
実施例3		2						73.6	151.9	2	1	A
実施例4		0.2							146.9	3	1	
実施例5			2					78.8	243.1	1	1	A
実施例6			0.2						101.7	1	1	
実施例7				2				112.2	155.8	1	1	A
実施例8				0.2					133.8	2	1	
実施例9					2			308	151.1	2	1	A
実施例10						2		7	457.4	1	1	B
比較例1								-	124.0	3	3	B
比較例2							2	548.6	160.3	3	3	B

[0177] 表1からわかるように、実施例の封止材組成物は、減圧から3秒後には発泡が抑えられており、実施例5～7では減圧直後から発泡が抑えられていた。

実施例1～9の封止材組成物では粘度上昇が抑えられており、ワイヤ流れがより抑えられる傾向にあることがわかる。また、実施例1～9ではニートレジンでも発泡が抑えられており、より低粘度の封止材に適用した場合でも発泡が抑えられることがわかる。具体的には、例えばフィラが少なく粘度が低く発泡しやすい封止材の設計でも発泡が抑えられる傾向にある。

他方、シリコン化合物を含有しない比較例1、並びに3.0 ppm～4.0 ppmに

現れるケミカルシフトBの積分値が350以下から外れるシリコン化合物を用いた比較例2では、減圧から3秒経過しても発泡が抑えられなかった。

[0178] 日本国特許出願2021-210834号の開示は、その全体が参照により本開示に取り込まれる。

本開示における全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本開示中に参照により取り込まれる。

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂、硬化剤、無機充填材、及びシリコン化合物を含み、
- 前記シリコン化合物は、 $CDCl_3$ 中での 1H NMRの測定結果において、 $-0.3\text{ ppm} \sim 0.3\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトAの積分値を300としたときに $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBの積分値が350以下である、封止材組成物。
- [請求項2] 前記シリコン化合物がポリエーテル部位を有する、請求項1に記載の封止材組成物。
- [請求項3] 前記シリコン化合物の含有量が、前記エポキシ樹脂100質量部に対して5質量部以下である請求項1又は請求項2に記載の封止材組成物。
- [請求項4] 前記ケミカルシフトAの積分値を300としたときの $3.0\text{ ppm} \sim 4.0\text{ ppm}$ に現れるケミカルシフトBの積分値が40以上である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の封止材組成物。
- [請求項5] 圧縮成形に使用される請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の封止材組成物。
- [請求項6] 素子と、
- 前記素子を封止する請求項1～請求項5のいずれか1項に記載の封止材組成物の硬化物と、
- を備える電子部品装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/048050

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C09K 3/10</i> (2006.01)i; <i>C08G 59/40</i> (2006.01)i; <i>C08L 63/00</i> (2006.01)i FI: C09K3/10 L; C08G59/40; C08L63/00 Z; C09K3/10 G		
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) C09K3/10-3/12; C08G59/00-59/72; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; H01L21/56		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
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	WO 2019/189142 A1 (SUMITOMO BAKELITE CO) 03 October 2019 (2019-10-03) claims 1-6, paragraphs [0001]-[0046], examples 1-5, comparative examples 1-3	1-6
A	WO 2015/019407 A1 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 12 February 2015 (2015-02-12) claims 1-8	1-6
A	JP 1-266140 A (SHIN ETSU CHEM CO LTD) 24 October 1989 (1989-10-24) claims 1-4	1-6
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 14 March 2023		Date of mailing of the international search report 28 March 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/048050

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2019/189142	A1	03 October 2019	KR 10-2020-0127043 CN 111989772 TW 201941964	A A A
WO	2015/019407	A1	12 February 2015	US 2016/0177055 claims 1-8 EP 3031859 CN 105452372 KR 10-2016-0040218	A1 A1 A A
JP	1-266140	A	24 October 1989	(Family: none)	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09K 3/10(2006.01)i; C08G 59/40(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i FI: C09K3/10 L; C08G59/40; C08L63/00 Z; C09K3/10 G</p>														
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C09K3/10-3/12; C08G59/00-59/72; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; H01L21/56</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2023年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年													
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2019/189142 A1 (住友ベークライト株式会社) 03.10.2019 (2019 - 10 - 03) 請求項1-6、段落0001-0046、実施例1-5、比較例1-3</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2015/019407 A1 (日立化成株式会社) 12.02.2015 (2015 - 02 - 12) 請求項1-8</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 1-266140 A (信越化学工業株式会社) 24.10.1989 (1989 - 10 - 24) 請求項1-4</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			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	WO 2019/189142 A1 (住友ベークライト株式会社) 03.10.2019 (2019 - 10 - 03) 請求項1-6、段落0001-0046、実施例1-5、比較例1-3	1-6	A	WO 2015/019407 A1 (日立化成株式会社) 12.02.2015 (2015 - 02 - 12) 請求項1-8	1-6	A	JP 1-266140 A (信越化学工業株式会社) 24.10.1989 (1989 - 10 - 24) 請求項1-4	1-6
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	WO 2019/189142 A1 (住友ベークライト株式会社) 03.10.2019 (2019 - 10 - 03) 請求項1-6、段落0001-0046、実施例1-5、比較例1-3	1-6												
A	WO 2015/019407 A1 (日立化成株式会社) 12.02.2015 (2015 - 02 - 12) 請求項1-8	1-6												
A	JP 1-266140 A (信越化学工業株式会社) 24.10.1989 (1989 - 10 - 24) 請求項1-4	1-6												
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>														
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>														
<p>国際調査を完了した日</p> <p>14.03.2023</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>28.03.2023</p>													
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>中野 孝一 4V 9153</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3483</p>													

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/048050

引用文献			公表日	パテントファミリー文献		公表日			
WO	2019/189142	A1	03.10.2019	KR 10-2020-0127043	A				
				CN 111989772	A				
				TW 201941964	A				

WO	2015/019407	A1	12.02.2015	US 2016/0177055	A1				
				請求項1-8					
				EP 3031859	A1				
				CN 105452372	A				
				KR 10-2016-0040218	A				

JP	1-266140	A	24.10.1989	(ファミリーなし)					
