

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3672225号
(P3672225)

(45) 発行日 平成17年7月20日(2005.7.20)

(24) 登録日 平成17年4月28日(2005.4.28)

(51) Int. Cl.⁷

F I

C O 8 G 59/68

C O 8 G 59/68

C O 8 K 5/50

C O 8 K 5/50

C O 8 L 63/00

C O 8 L 63/00

B

H O 1 L 23/29

C O 8 L 63/00

C

H O 1 L 23/31

H O 1 L 23/30

R

請求項の数 5 (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願平11-280447
 (22) 出願日 平成11年9月30日(1999.9.30)
 (65) 公開番号 特開2001-98053(P2001-98053A)
 (43) 公開日 平成13年4月10日(2001.4.10)
 審査請求日 平成14年8月23日(2002.8.23)

(73) 特許権者 000002141
 住友ベークライト株式会社
 東京都品川区東品川2丁目5番8号
 (72) 発明者 郷 義幸
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内
 (72) 発明者 三宅 澄也
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内
 (72) 発明者 永田 寛
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内
 (72) 発明者 大久保 明子
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内

最終頁に続く

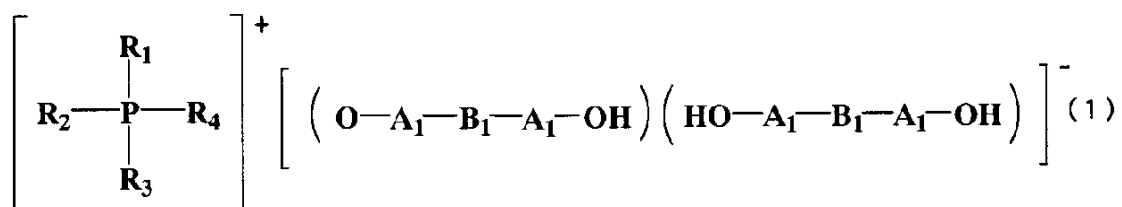
(54) 【発明の名称】 熱硬化性樹脂組成物およびそれを用いたエポキシ樹脂成形材料ならびに半導体装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

1 分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)、および、一般式(1)で表される分子化合物(C)を必須成分とすることを特徴とする熱硬化性樹脂組成物。

【化1】

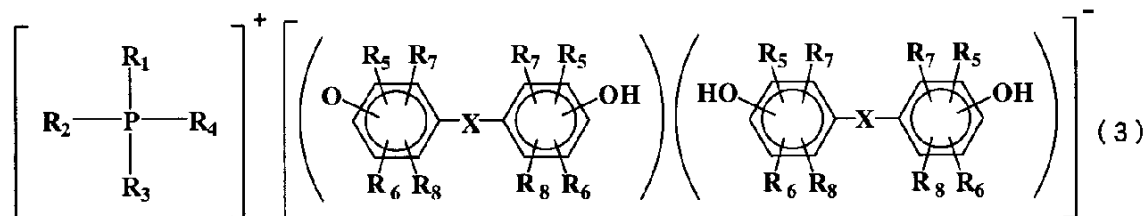


(ただし、Pはリン原子、R₁、R₂、R₃およびR₄は置換もしくは無置換の芳香族基、またはアルキル基、A₁は2価の芳香族基、B₁はエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基から選ばれる2価の置換基を表す。)

【請求項2】

分子化合物(C)が、一般式(3)で表される分子化合物である請求項1記載の熱硬化性樹脂組成物。

【化3】



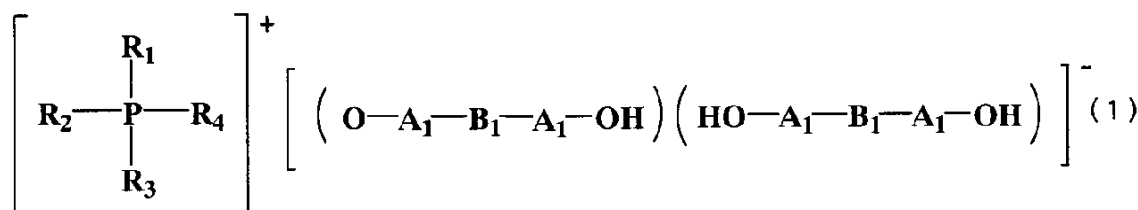
(ただし、Pはリン原子、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は置換もしくは無置換の芳香族基、またはアルキル基を表し、 R_5 、 R_6 、 R_7 および R_8 は水素原子またはハロゲン原子または炭素原子数1~6で構成される1価の有機基を表す。Xはエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基から選ばれる2価置換基を表す。)

10

【請求項3】

1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)、一般式(1)で表される分子化合物(C)、および無機充填材(D)を必須成分とすることを特徴とするエポキシ樹脂成形材料。

【化1】



20

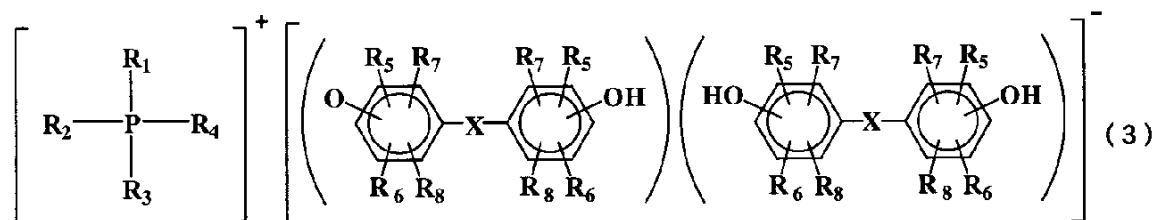
(ただし、Pはリン原子、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は置換もしくは無置換の芳香族基、またはアルキル基、 A_1 は2価の芳香族基、 B_1 はエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基から選ばれる2価の置換基を表す。)

【請求項4】

分子化合物(C)が、一般式(3)で表される分子化合物である請求項3記載のエポキシ樹脂成形材料。

30

【化3】



(ただし、Pはリン原子、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は置換もしくは無置換の芳香族基、またはアルキル基を表し、 R_5 、 R_6 、 R_7 および R_8 は水素原子またはハロゲン原子または炭素原子数1~6で構成される1価の有機基を表す。Xはエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基から選ばれる2価置換基を表す。)

40

【請求項5】

請求項3または4記載のエポキシ樹脂成形材料の硬化物にて封止された半導体装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、硬化性と保存性が良好で、電気・電子材料分野に有用な熱硬化性樹脂組成物、および、これを用いたエポキシ樹脂成形材料、ならびにその硬化物にて封止された半導体装置に関するものである。

50

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

電気・電子材料、特に、IC封止材料は、近年、生産効率の向上を目的とした速硬化性と、物流・保管時のハンドリング性向上のための保存性の向上とが、求められるようになってきている。

【 0 0 0 3 】

従来、電子電気分野向けエポキシ樹脂には、硬化触媒として、アミン類、イミダゾール系化合物、ジアザビシクロウンデセンなどの含窒素複素環式化合物、第四級アンモニウム、ホスホニウムあるいはアルソニウム化合物などの種々の化合物が使用されている。

【 0 0 0 4 】

これら一般に使用される硬化触媒は、常温などの比較的低温においても、硬化促進作用を示す場合が多い。このことは、樹脂組成物の製造および保存時の粘度上昇や、流動性の低下、硬化性のばらつきなど、製品としての品質を低下させる原因となっている。

【 0 0 0 5 】

この問題を解決すべく、近年では、低温での粘度、流動性の経時変化を抑え、賦形、成形時の加熱によってのみ、硬化反応を起こすような、いわゆる潜伏性硬化促進剤の研究が盛んになされている。その手段として、硬化促進剤の活性点をイオン対により保護することで、潜伏性を発現する研究がなされており、特開平8-41290号公報では、種々の有機酸とホスホニウムイオンとの塩構造を有する潜伏性硬化促進剤が提示されている。しかし、このホスホニウム塩は、特定の高次の分子構造を有さず、イオン対が比較的容易に外部環境の影響を受けるため、近年の低分子エポキシ樹脂やフェノールアラルキル樹脂のような分子の動きやすい硬化剤を用いる半導体封止材料では、保存性が低下する問題が生じている。

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、硬化性と保存性が良好で、電気・電子材料分野に有用な熱硬化性樹脂組成物、および、これを用いたエポキシ樹脂成形材料、ならびにその硬化物にて封止された耐湿信頼性に優れた半導体装置を提供することを目的とするものである。

【 0 0 0 7 】

【課題を解決するための手段】

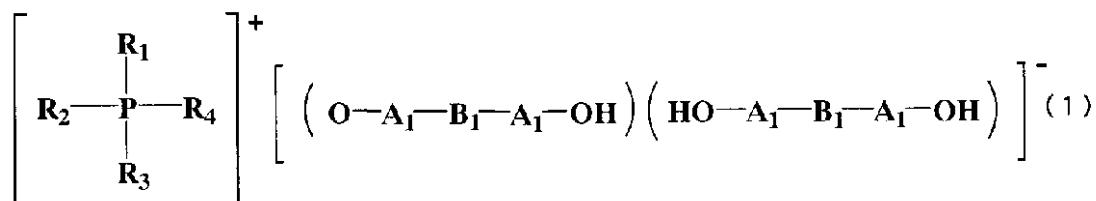
本発明者らは、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物と共に、特定構造の分子化合物を用いることにより、優れた硬化性と保存性を有する樹脂組成物、およびエポキシ樹脂成形材料が得られ、さらには高い耐湿信頼性を有する半導体装置が得られることを見だし、本発明を完成するに至った。

【 0 0 0 8 】

すなわち、本発明は、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)、および、一般式(1)で表される分子化合物(C)を必須成分とすることを特徴とする熱硬化性樹脂組成物、

【 0 0 0 9 】

【化5】



【 0 0 1 1 】

(ただし、Pはリン原子、R¹、R²、R³およびR⁴は置換もしくは無置換の芳香族基、ま

10

20

30

40

50

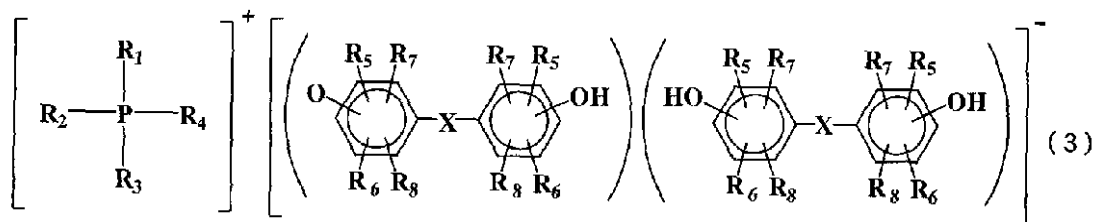
たはアルキル基、 A^1 は2価の芳香族基、 B はエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基等から選ばれる2価の置換基を表す。)

【0012】

また、分子化合物(C)が、一般式(3)で表される分子化合物である前記の熱硬化性樹脂組成物、

【0013】

【化7】



10

【0015】

(ただし、 P はリン原子、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は置換もしくは無置換の芳香族基、またはアルキル基を表し、 R^5 、 R^6 、 R^7 および R^8 は水素原子またはハロゲン原子または炭素原子数1~6で構成される1価の有機基を表す。 X はエーテル基、スルホン基、スルフィド基、カルボニル基等から選ばれる2価の置換基を表す。)

【0016】

また、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)、一般式(1)で表される分子化合物(C)、さらには一般式(3)で表される分子化合物(C)、および無機充填材(D)を必須成分とすることを特徴とするエポキシ樹脂成形材料、ならびにその硬化物にて封止された半導体装置である。

20

【0017】

【発明の実施の形態】

本発明に用いる1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)は、1分子内にエポキシ基を2個以上有するものであれば、何ら制限はなく、例えば、ピフェニル型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂など、ピフェノールなどのフェノール類やフェノール樹脂、ナフトール類などの水酸基にエピクロロヒドリンを反応させて製造するエポキシ樹脂、エポキシ化合物などが挙げられる。その他に、脂環式エポキシ樹脂のようにオレフィンに過酸を用いて酸化させエポキシ化したエポキシ樹脂や、ハイドロキノン等のジヒドロキシベンゼン類をエピクロロヒドリンでエポキシ化したものが挙げられる。

30

【0018】

また、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)は、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)の硬化剤として作用するものである。具体的には、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、アルキル変性ノボラック樹脂(シクロアルケンの二重結合をフリーデルクラフツ型の反応でフェノール類と反応、共縮合した樹脂を含む)、フェノールアラルキル樹脂、ナフトール類とフェノール類をカルボニル基含有化合物と共縮合した樹脂などが例示されるが、1分子内で芳香族性の環に結合する水素原子が、水酸基で2個以上置換された化合物であればよい。

40

【0019】

本発明において硬化促進剤として機能する分子化合物(C)は、一般式(1)、さらには一般式(3)で表されるテトラ置換ホスホニウムとフェノール化合物との分子会合体である。この分子化合物は、1個のテトラ置換ホスホニウムカチオンと、3個のフェノール性水酸基および1個のフェノキシドアニオンの単位で構成され、テトラ置換ホスホニウムイオンの正電荷の周囲を3個のフェノール性水酸基と1個のフェノキシドアニオンが取り囲み、安定化した構造となっているものと考えられる。

50

【0020】

このような構造をとりうるホスホニウムイオンは、置換または無置換のアリール基やアルキル基を置換基にもつテトラ置換ホスホニウムイオンが、熱や、加水分解に対して安定であり好ましく、具体的には、テトラフェニルホスホニウム、テトラトリルホスホニウムなどのテトラアリール置換ホスホニウム、トリフェニルメチルホスホニウムなどのトリアリールホスフィンとアルキルハライドから合成されたホスホニウムハライドに起源をもつトリアリールモノアルキルホスホニウム、テトラブチルホスホニウムなどのテトラアルキル置換ホスホニウムなどが例示される。

【0021】

また、分子化合物(C)を形成するもう一方の成分である、フェノール化合物としては、ビスフェノールS(2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン)、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタノンなどのビスフェノール類が例示されるが、分子化合物の安定性や硬化性、硬化物物性の点で、ビスフェノールSが好適である。

10

【0022】

分子化合物(C)は、前述のようなフェノール化合物と、最終的に脱ハロゲン化水素を助ける塩基、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどのアルカリ金属水酸化物や、ピリジン、トリエチルアミンなどの有機塩基をアルコールなどの溶媒に溶解し、続いて適当な溶媒に溶解した前記テトラ置換ホスホニウムのハライドを添加し反応させて、最終的には再結晶や再沈殿などの操作により固形分として取り出す方法や、テトラ置換ホスホニウムテトラ置換ボレートとフェノール化合物を熱反応後、アルコールなどの溶媒中で加熱反応させる方法で合成可能である。

20

【0023】

本発明に用いる分子化合物(C)は、前述のようにホスホニウム-フェノキシド型の塩を構造に有するが、これが従来のホスホニウム-有機酸アニオン塩型の化合物と異なる点は、分子化合物(C)では、フェノール性水酸基のプロトンが関与した水素結合による高次構造が、このイオン結合を取り囲んでいる点である。従来の塩では、イオン結合の強さのみにより反応性を制御していたのに対し、分子化合物(C)では、常温では反応活性点のイオン対が高次構造により囲い込まれて、活性点が保護され、一方、実際の賦形の段階においては、この高次構造が崩れることで活性点がむき出しになり、反応性を発現する、いわゆる潜伏性が付与される。

30

【0024】

本発明に用いる、硬化促進剤として機能する、分子化合物(C)の配合量は、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)と、硬化剤として機能する、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)の合計重量を100重量部とした場合、0.5~20重量部程度が硬化性、保存性、他特性のバランスがよく好適である。また、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)と、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)の配合比率は、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)のエポキシ基1モルに対し、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)のフェノール性水酸基と分子化合物(C)に含まれるフェノール性水酸基との合算にて0.5~2モル、好ましくは、0.8~1.2程度のモル比となるよう用いると、硬化性、耐熱性、電気特性等がより良好となる。

40

【0025】

本発明に用いる無機充填材(D)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、熔融破碎シリカ粉末、熔融球状シリカ粉末、結晶シリカ粉末、2次凝集シリカ粉末、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、特に熔融球状シリカ粉末が好ましい。形状は限りなく真球状であることが好ましく、又、粒子の大きさの異なるものを混合することにより充填量を多くすることができる。

【0026】

この無機充填材の配合量としては、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)

50

と、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)の合計量100重量部あたり、200~2400重量部が好ましい。200重量部未満だと、無機充填材による補強効果が十分に発現しないおそれがあり、2400重量部を越えると、樹脂組成物の流動性が低下し成形時に充填不良等が生じるおそれがあるので好ましくない。特に、無機充填材の配合量が、前記成分(A)と(B)の合計量100重量部あたり、250~1400重量部であれば、成形材料の硬化物の吸湿率が低くなり、半田クラックの発生を防止することができ、更に熔融時の成形材料の粘度が低くなるため、半導体装置内部の金線変形を引き起こすおそれがなく、より好ましい。又、無機充填材は、予め充分混合しておくことが好ましい。

【0027】

本発明のエポキシ樹脂成形材料は、(A)~(D)成分の他に、必要に応じて - 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、カーボンブラック等の着色剤、臭素化エポキシ樹脂、酸化アンチモン、リン化合物等の難燃剤、シリコンオイル、シリコンゴム等の低応力成分、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸もしくはその金属塩類、パラフィン等の離型剤、酸化防止剤等の各種添加剤を配合することができ、また、本発明において硬化促進剤として機能する分子化合物(C)の特性を損なわない範囲で、トリフェニルホスフィン、1,8-ジアザビシクロ(5,4,0)ウンデセン-7、2-メチルイミダゾール等の他の公知の触媒と併用しても何ら問題はない。

【0028】

本発明のエポキシ樹脂成形材料は、(A)~(D)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、ロール、押出機等の混練機で混練し、冷却後粉碎して得られる。

【0029】

本発明のエポキシ樹脂成形材料を用いて、半導体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成形方法で硬化成形することができる。

【0030】

本発明のエポキシ樹脂成形材料の硬化物で封止された半導体装置は、本発明の技術的範囲に含まれ、優れた耐湿性を示す。

【0031】

【実施例】

以下に、本発明の実施例を示すが、本発明は、これにより何ら制限を受けるものではない。

【0032】

[硬化促進剤の合成]

合成した分子化合物(C)の構造確認は、NMR、元素分析、および次の方法による中和滴定(ホスホニウムフェノキシド当量の測定)により実施した。

合成した分子化合物(C)をメタノール/水系溶媒中で、重量既知の過剰量のシュウ酸と反応させ、残余のシュウ酸を規定度既知の水酸化ナトリウム水溶液で定量して、分子化合物(C)の重量あたり規定度(N/g)を算出した。この値の逆数がホスホニウムフェノキシド当量となる。

【0033】

(合成例1)

攪拌装置付きの1リットルのセパラブルフラスコにビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン50.0g(0.2モル)、メタノール100mlを仕込み、室温で攪拌溶解し、さらに攪拌しながら水酸化ナトリウム4.0g(0.1モル)を予め、50mlのメタノールで溶解した溶液を添加した。次いで、予めテトラフェニルホスホニウムクロライド37.5g(0.1モル)を150mlのメタノールに溶解した溶液を加えた。しばらく攪拌を継続し、300mlのメタノールを追加した後、フラスコ内の溶液を大量の水に攪拌しながら滴下し、白色沈殿を得た。沈殿を濾過、乾燥し、白色結晶81.0gを得た。この化合物をC4とする。C4は、NMR、マススペクトル、元素分析の結果から、テトラ

10

20

30

40

50

フェニルホスホニウム 1 分子と ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン とが、モル比 1 : 2 で錯化した一般式 (3) で表される目的の分子化合物であることが確認された。また、中和滴定の値からホスホニウムフェノキシド当量が、理論値 838 に近く、前述の構造を示した。

【0035】

(比較合成例 1)

攪拌装置付きの 1 リットルのセパラブルフラスコに、ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル)メタンを 12.8 g (0.05 モル)、メタノール 50 ml を仕込み、室温で攪拌溶解し、さらに攪拌しながら水酸化ナトリウム 4.0 g (0.1 モル) を、予め 50 ml のメタノールで溶解した溶液を添加した。次いで、予めテトラブチルホスホニウムプロ
10
マイド 33.9 g (0.1 モル) を 150 ml のメタノールに溶解した溶液を加えた。しばらく攪拌を継続し、フラスコ内に純水 100 ml を攪拌しながら滴下し、さらに 2-プロパノール 100 ml を加え白色沈殿を得た。沈殿を濾過、乾燥し、白色結晶を得た。この化合物を D1 とする。合成例 1 と同様の分析を行った結果、ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル)メタンの 2 個の水酸基のプロトンが解離した各々のフェノキシドに、各 1 分子のテトラブチルホスホニウムが、1 : 2 でイオン結合した化合物であった。この D1 は、単なるホスホニウム塩であって、本発明に用いる分子化合物ではない。

【0036】

(比較合成例 2)

攪拌装置付きの 1 リットルのセパラブルフラスコに、p-フェニルフェノール 17.0 g (0.1 モル)、メタノール 50 ml を仕込み室温で攪拌溶解し、さらに攪拌しながら水酸化ナトリウム 4.0 g (0.1 モル) を、予め 50 ml のメタノールで溶解した溶液を添加した。次いで、予めテトラフェニルホスホニウムプロミド 41.9 g (0.1 モル) を 150 ml のメタノールに溶解した溶液を加えた。しばらく攪拌を継続し、フラスコ内に純水 100 ml を攪拌しながら滴下し、さらに 2-プロパノール 100 ml を加え白色沈殿を得た。沈殿を濾過、乾燥し、白色結晶を得た。この化合物を D2 とする。合成例 1 と同様の分析を行った結果、p-フェニルフェノールの水酸基のプロトンが脱離したフェノキシドに、1 分子のテトラフェニルホスホニウムが、1 : 1 でイオン結合した化合物であった。この D2 は、単なるホスホニウム塩であって、本発明に用いる分子化合物ではない。
20

【0037】

(比較合成例 3)

攪拌装置付きの 1 リットルセパラブルフラスコに、安息香酸 12.2 g (0.1 モル)、メタノール 50 ml を仕込み室温で攪拌溶解し、さらに攪拌しながら水酸化ナトリウム 4.0 g (0.1 モル) を、予め 50 ml のメタノールで溶解した溶液を添加した。次いで、予めテトラフェニルホスホニウムプロミド 41.9 g (0.1 モル) を 150 ml のメタノールに溶解した溶液を加えた。しばらく攪拌を継続し、フラスコ内の溶液を 100 ml の水に攪拌しながら滴下し、さらに 2-プロパノール 100 ml を加え白色沈殿を得た。沈殿を濾過、乾燥し、白色結晶を得た。この化合物を D3 とする。合成例 1 と同様の分析を行った結果、安息香酸のカルボキシル基のプロトンが脱離したカルボキシラートに、1 分子のテトラフェニルホスホニウムが、1 : 1 でイオン結合した化合物であった。この D3
40
は、単なるホスホニウム塩であって、本発明に用いる分子化合物ではない。

比較合成例の結果も、他の合成例と同様に表 1 にまとめた。

【0038】

【表 1】

表1

	合成例	比較合成例		
	1	1	2	3
合成した化合物記号	C4	D1	D2	D3
分子化合物(C)を構成するフェノール化合物および比較合成例使用原料(モル)				
ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン	0.4 ²⁾			
ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル)メタン		0.1 ²⁾		
p-フェニルフェノール			0.1 ²⁾	
安息香酸				0.1 ²⁾
ホスホニウムハライド(モル)				
テトラフェニルホスホニウムフロマイド			0.1	0.1
テトラフェニルホスホニウムクロライド	0.1			
テトラフェニルホスホニウムフロマイド		0.1		
アルカリ金属水酸化物(モル)				
水酸化ナトリウム	0.1	0.1	0.1	0.1
ホスホニウムフェノキシト当量				
理論値	838	388	678	460
実測値 ¹⁾	850	393	686	477

1) 中和滴定にて算出した化合物(C)の重量あたり規定度(N/g)の値の逆数

2) 数字は水酸基のモル数

10

20

【0039】

[熱硬化性樹脂組成物の評価]

まず、合成した分子化合物(C)を、1分子内にエポキシ基を2個以上有する化合物(A)と、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有する化合物(B)、に加えて粉碎混合し、さらに100で5分間、熱板上で溶融混練した後、冷却粉碎して、組成物のサンプルを調製し、評価を行った。評価方法は、下記のとおりである。

(1) 硬化トルク

前記のサンプル調製方法により作製した樹脂組成物を用いて、キュラストメーター(オリエンテック社製、JSRキュラストメーターPS型)により、175で、45秒後のトルクを求めた。キュラストメーターにおけるトルクは、硬化性のパラメータであり、値の大きい方が、硬化性が高いことを示す。

30

(2) 硬化発熱量残存率(保存性評価)

前記のサンプル調製方法により作製した樹脂組成物を用いて、調製直後の初期硬化発熱量、および40で3日間保存処理後の硬化発熱量を測定し、初期硬化発熱量(mJ/mg)に対する保存処理後の硬化発熱量(mJ/mg)の百分率を算出した。尚、硬化発熱量の測定は、昇温速度10/minの条件で、示差熱分析により測定した。この値が大きいほど、保存性が良好であることを示す。

【0040】

(実施例1、および比較例1~4)

実施例1、および比較例1~4について、表2に示した配合により、前記の方法で、組成物のサンプルを調製し評価した。比較例1では、実施例における化合物(C)にかえてトリフェニルホスフィンを用いた。比較例2~4では、前述比較合成例1~3で合成された化合物D1~D3を用いた。得られた各組成物の評価結果は、表2に示した通りであった。

40

【0041】

【表2】

表2

		実施例	比較例				
			1	1	2	3	4
配合 (重量部)	成分	EOCN-1020-65 ¹⁾					67
		YX-4000H ²⁾	52	52	52	52	
	成分 (B)	フェノールノボラック ³⁾					48
		XL225-LL ⁴⁾	48	48	48	48	
	化合物(C)記号 ⁵⁾		C4				
	化合物(C)添加量		3.9				
	D1、2、3化合物記号 ⁵⁾			トリフェニル ホスフィン	D1	D2	D3
D1、2、3添加量			1.0	2.5	3.5	3.1	
特性	硬化トルク(kgf·cm) (175°C、45s)	0.68	0	0.61	0.48	0.43	
	硬化発熱量残存率(%)	93	60	55	51	52	

1) 日本化薬製クレゾールノボラックエポキシ樹脂

2) 油化シエルエポキシ製ビフェニル型エポキシ

3) 水酸基当量104、軟化点95°Cのフェノールノボラック樹脂

4) 三井化学製フェノールアラキル樹脂

5) トリフェニルホスフィンを除き、合成例、比較合成例にて合成した化合物

10

【0042】

実施例に示すように、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、硬化性、保存性が良好であるのに対し、比較例1のトリフェニルホスフィンを硬化促進剤に用いた樹脂組成物は、硬化性、保存性とも悪く、比較例2～4の本発明に用いる分子化合物ではないホスホニウム塩を用いたものは、硬化性はよいものの保存性がよくない。

【0048】

【発明の効果】

本発明の熱硬化性樹脂組成物及びエポキシ樹脂成形材料は、優れた硬化性、保存性を有し、このエポキシ樹脂成形材料の硬化物で封止された半導体装置は、耐湿信頼性に優れ有用である。

20

30

フロントページの続き

審査官 加賀 直人

(56)参考文献 特開2001-064366(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

C08G 59/00-59/72

C08L 63/00-63/10

H01L 23/29

H01L 23/31