

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6497652号
(P6497652)

(45) 発行日 平成31年4月10日 (2019. 4. 10)

(24) 登録日 平成31年3月22日 (2019. 3. 22)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 L 63/00 (2006. 01)

C O 8 L 63/00 A

C O 8 L 61/06 (2006. 01)

C O 8 L 61/06

C O 8 K 3/36 (2006. 01)

C O 8 K 3/36

C O 8 K 5/5415 (2006. 01)

C O 8 K 5/5415

C O 8 K 9/06 (2006. 01)

C O 8 K 9/06

請求項の数 5 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2015-83444 (P2015-83444)
 (22) 出願日 平成27年4月15日 (2015. 4. 15)
 (65) 公開番号 特開2016-204420 (P2016-204420A)
 (43) 公開日 平成28年12月8日 (2016. 12. 8)
 審査請求日 平成30年3月16日 (2018. 3. 16)

(73) 特許権者 000006633
 京セラ株式会社
 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地
 (74) 代理人 100089185
 弁理士 片岡 誠
 (74) 代理人 100158481
 弁理士 石原 俊秀
 (72) 発明者 藤枝 新悦
 東京都品川区東品川三丁目32番42号
 京セラケミカル株式会社内
 (72) 発明者 安藤 元丈
 東京都品川区東品川三丁目32番42号
 京セラケミカル株式会社内

審査官 松浦 裕介

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 封止用エポキシ樹脂成形材料及び電子部品

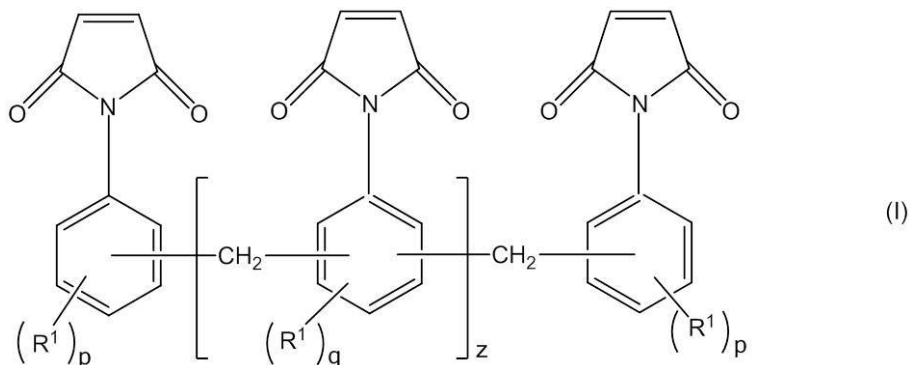
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) エポキシ樹脂、(B) フェノール系硬化剤、(C) 下記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂、(D) シランカップリング剤、(E) 無機充填材及びイオントラップ剤を含有し、

前記(E)成分がシラザンにより表面処理されたシリカを含有することを特徴とする、
 パワーデバイス用の S i C 又は G a N 素子封止用エポキシ樹脂成形材料。

【化 1】



(式中、R 1 はそれぞれ独立に炭素数 1 ~ 1 0 の炭化水素基である。複数の R 1 は、互い

に同一でも異なっているもよい。pは0～4の整数、qは0～3の整数、zは0～10である。)

【請求項2】

前記シラザンにより表面処理されたシリカの平均粒子径が0.5～1.0μmであることを特徴とする請求項1に記載のパワーデバイス用のSiC又はGaN素子封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項3】

前記(E)成分中に含まれる前記シラザンにより表面処理されたシリカが1～10質量%であることを特徴とする請求項1又は2に記載のパワーデバイス用のSiC又はGaN素子封止用エポキシ樹脂成形材料。

10

【請求項4】

前記(E)成分の含有量が樹脂成形材料全体に対し、60～95質量%であることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載のパワーデバイス用のSiC又はGaN素子封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項5】

請求項1～4のいずれか一項に記載のパワーデバイス用のSiC又はGaN素子封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える、電子部品装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明は、封止用エポキシ樹脂成形材料、及び電子部品に関する。

【背景技術】

【0002】

従来から、トランジスタ、IC等の電子部品封止の分野では、エポキシ樹脂成形材料が広く用いられている。これは、エポキシ樹脂が、電気特性、耐湿性、機械特性、インサート品との接着性等のバランスに優れるからである。

【0003】

近年、資源エネルギーの将来的な枯渇に対する不安や、いわゆる地球温暖化問題等を背景に世界的に省エネルギーの機運が高まっており、電力の制御や変換を行い、「省エネ技術のキーデバイス」と言われるパワーデバイス(パワー半導体)が注目されている。

30

パワー半導体にとって電力変換効率はその性能を決定する非常に重要な項目であるが、ここにきて、従来のSi素子より変換効率の高い炭化ケイ素(SiC)や窒化ガリウム(GaN)等の化合物半導体の研究開発や市場での流通が活況を呈するようになってきた。

【0004】

SiCやGaNの大きな特徴として、従来のSi素子と比較して高温動作が可能である点を挙げることができる。また、特にSiCについては、Si素子に比べ、より高い耐圧性を有するため、より小さな素子やパッケージでこれまで以上の耐圧性を実現することが期待されている。

【0005】

一方、より小さな素子やパッケージで、これまで以上の耐圧性を実現することは、素子自身の発熱もこれまで以上になることを意味し、高温動作が可能となることと相まって、周辺部材にもこれまで以上の耐熱性が求められることになる。樹脂成形材料のガラス転移温度(Tg)としては、250前後が一つの目標温度とされている。

40

【0006】

また、一般に、パワーデバイスはハンダ付けによるリードフレームへの固定が行なわれることが多く、リードフレームには、Niメッキが施される場合が多い。

したがって、上記化合物半導体を封止するエポキシ樹脂成形材料には、高温耐性及びNiメッキへの密着力の両立が求められることになるが、高温耐性を高めるために樹脂のTgを上げるとNi等への密着性が低下することが多く、一般にその両立は困難である。

【0007】

50

エポキシ系接着剤やシリコンゴム系接着剤とNiメッキとの密着力を上げる手法として、例えば、特許文献1には、ニッケル表面を熱過酸化水素溶液で改質させて濡れ性酸化ニッケル表面を形成する方法が開示されている。

また、非特許文献1には、金属Ni粉末/エポキシ樹脂複合材料において、カップリング剤としてエポキシシランやチタネートシラン等を用いてNi粒子表面を改質し、接着力を向上させる方法が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特開平8-302291号公報

10

【非特許文献】

【0009】

【非特許文献1】高分子論文集 Vol. 52 (1995), No. 11, P703-709

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

しかしながら、特許文献1に記載の方法では、Niメッキ表面を過酸化水素水で予め処理しなければならない等、必ずしも生産性の高い方法とはいえない。また、非特許文献1に記載の方法では、十分な接着力が得られない等の課題があった。

20

【0011】

本発明は、このような実情に鑑みてなされたものであり、ガラス転移温度(T_g)及び熱分解温度が高いため、耐熱性に優れた硬化物を形成することができ、Niメッキとの密着性に優れ、高温放置後の剥離やクラックの発生が少ない封止用エポキシ樹脂成形材料、及び該樹脂成形材料を用いる電子部品を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者らは、上記の課題を解決するべく鋭意検討した結果、特定の骨格を有するエポキシ樹脂、及びフェノール系硬化剤と共に、特定構造を有するマレイミド樹脂、及びグリシドキシプロピルトリアルコキシシランを含むシランカップリング剤を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料が、上記課題を解決することを見出した。

30

本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

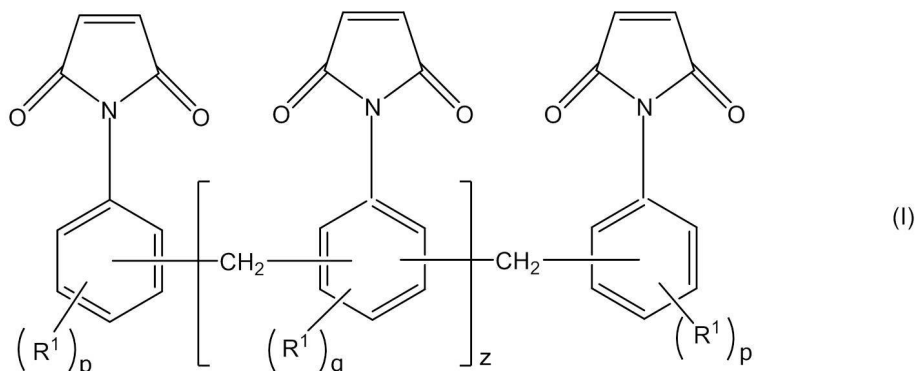
【0013】

すなわち、本発明は、以下の[1]~[10]を提供する。

[1](A)エポキシ樹脂、(B)フェノール系硬化剤、(C)下記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂、(D)シランカップリング剤、及び(E)無機充填材を含有し、前記(A)成分と前記(B)成分とが、それぞれトリフェニルメタン骨格、及びノ又はナフタレン骨格を含み、前記(D)成分が、炭素数2~4のアルコキシ基を有するグリシドキシプロピルトリアルコキシシランを含有する、封止用エポキシ樹脂成形材料。

【化1】

40



50

(式中、 R^1 はそれぞれ独立に炭素数 1 ~ 10 の炭化水素基である。複数の R^1 は、互いに同一でも異なってもよい。 p は 0 ~ 4 の整数、 q は 0 ~ 3 の整数、 z は 0 ~ 10 である。)

[2] 前記グリシドキシプロピルトリアルコキシシランが、3 - グリシドキシプロピルトリエトキシシランである、上記 [1] に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

[3] 前記 (D) 成分が、さらにイソシアネートプロピルトリアルコキシシランを含有する、上記 [1] 又は [2] に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

[4] 前記イソシアネートプロピルトリアルコキシシランが、3 - イソシアネートプロピルトリエトキシシランである、上記 [3] に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

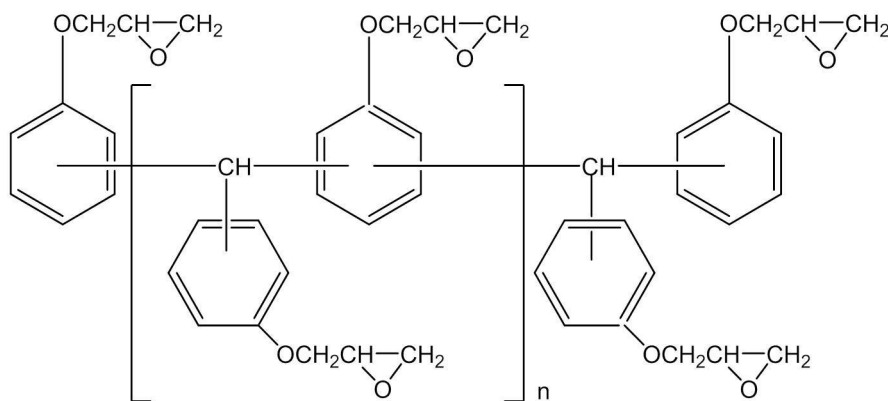
[5] 前記 (C) マレイミド樹脂の含有量が、前記 (A) 成分、(B) 成分、及び (C) 成分の合計 100 質量 % に対し、30 質量 % 以上である、上記 [1] ~ [4] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

[6] 前記 (C) マレイミド樹脂の含有量が、前記 (A) 成分、(B) 成分、及び (C) 成分の合計 100 質量 % に対し、60 質量 % 以上である、上記 [1] ~ [5] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

[7] 前記 (E) 成分が、シラザンにより表面処理されたシリカを含む、上記 [1] ~ [6] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

[8] 前記 (A) 成分が、下記一般式 (II) で表されるトリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂、下記一般式 (III) で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂、及び下記一般式 (IV) で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂から選択される少なくとも 1 種含む、上記 [1] ~ [7] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【化 2】



(II)

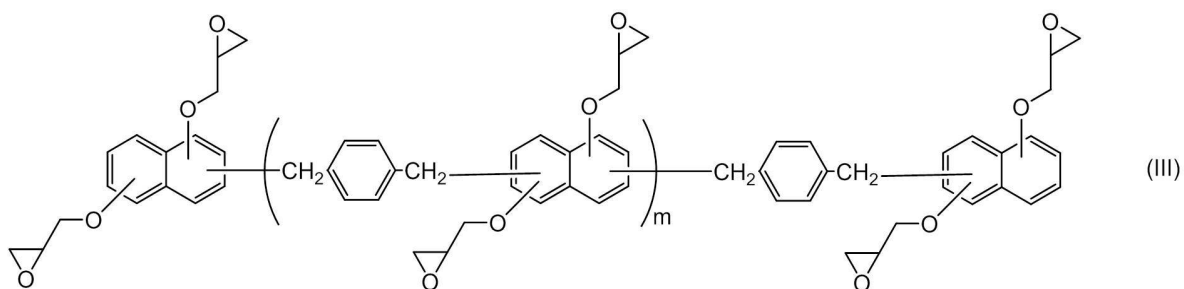
(式中、 n は 0 ~ 10 である。)

10

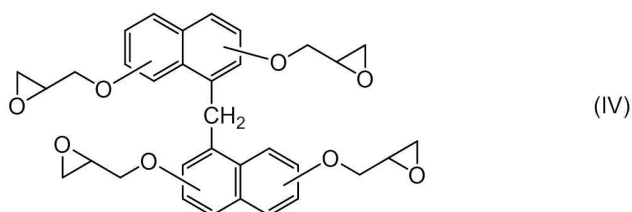
20

30

【化 3】



10

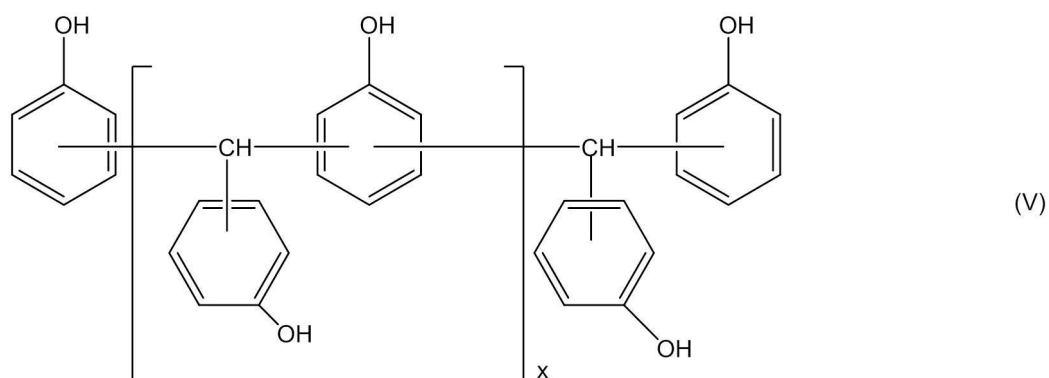


(式中、 m は0～10である。)

[9] 前記 (B) 成分が、下記一般式 (V) で表されるトリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、下記一般式 (V I) で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂、及び下記一般式 (V I I) で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂から選択される少なくとも1種を含む、上記 [1] ～ [8] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

20

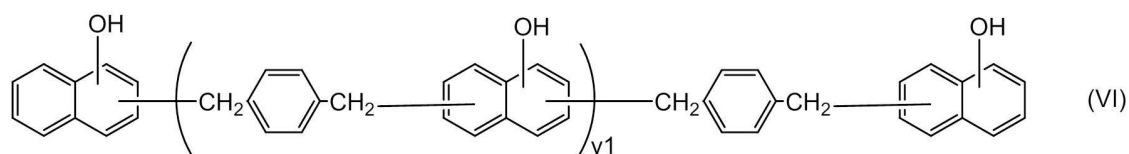
【化 4】



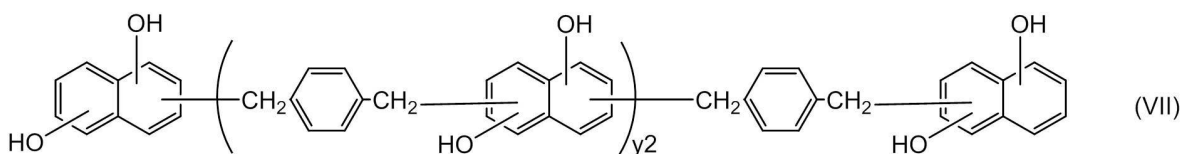
30

(式中、 x は0～10である。)

【化 5】



40



50

(式中、 y_1 は 0 ~ 10、 y_2 は 0 ~ 10 である。)

[10] 上記 [1] ~ [9] のいずれか一項に記載の封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える、電子部品装置。

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、ガラス転移温度 (T_g) 及び熱分解温度が高いため、耐熱性に優れた硬化物を形成することができ、Niメッキとの密着性に優れ、高温放置後の剥離やクラックの発生が少ない封止用エポキシ樹脂成形材料、及び該樹脂成形材料を用いる電子部品を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

10

【0015】

以下、本発明を詳細に説明する。

(封止用エポキシ樹脂成形材料)

まず、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料(以下、単に「樹脂成形材料」ともいう)の各成分について述べる。

〔(A) エポキシ樹脂〕

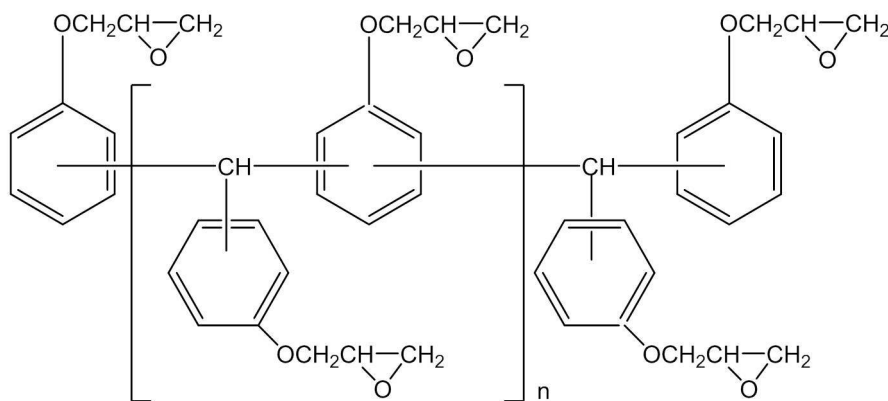
本発明で用いる(A)成分のエポキシ樹脂は、一分子中に2個以上のエポキシ基を有し、トリフェニルメタン骨格、及びノ又はナフタレン骨格を含む。具体的には、トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂、及びナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂のうち少なくとも1種を含む硬化性エポキシ樹脂である。

20

上記トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば、下記一般式(II)で表されるエポキシ樹脂が挙げられる。

【0016】

【化6】



(II)

30

(式中、 n は 0 ~ 10 である。)

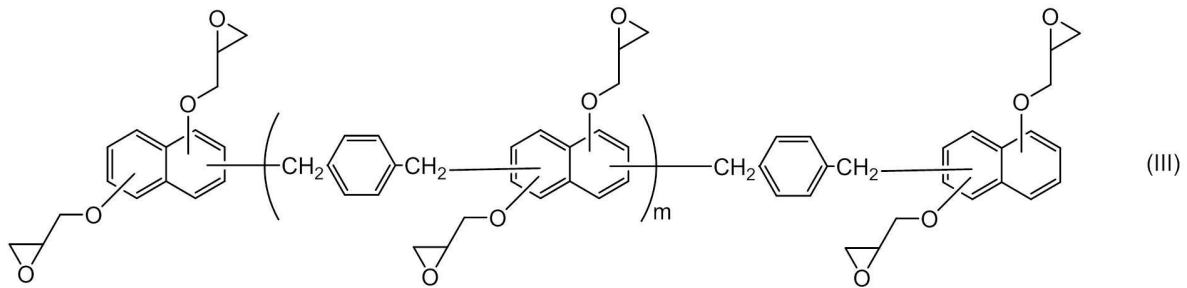
【0017】

また、上記ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂としては、一分子中に少なくとも2個以上のグリシジル基を有し、少なくとも1つのナフタレン環を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されるものではなく、例えば、下記一般式(III)、及び下記一般式(IV)で表されるエポキシ樹脂が挙げられ、これらを好ましく用いることができる。

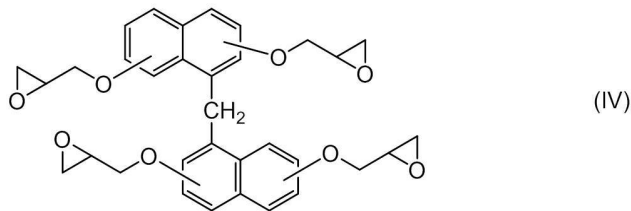
40

【0018】

【化 7】



10



(式中、mは0～10である。)

【0019】

上記(A)成分のエポキシ樹脂は、上記一般式(II)で表されるトリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂、上記一般式(III)で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂、及び上記一般式(IV)で表されるナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂から選択される少なくとも1種を含むことが、後述する(B)成分のフェノール系硬化剤とともに、樹脂成形材料の硬化物の耐熱性や生産性を高める観点から好ましい。

20

なお、上記一般式(II)～(IV)で表されるエポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0020】

上記一般式(II)で表されるエポキシ樹脂は、EPPN-502H(日本化薬(株)製)として、上記一般式(III)で表されるエポキシ樹脂は、ESN-375(新日鉄住金化学(株)製)として、上記一般式(IV)で表されるエポキシ樹脂は、HP-4710(DIC(株)製)として、それぞれ市販品として入手することができる。

30

【0021】

上記トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂及びナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂の軟化点は、主として生産性の観点から、好ましくは55～100、より好ましくは60～90、更に好ましくは65～85である。

【0022】

また、(A)成分のエポキシ樹脂全量に対する、上記トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂及び上記ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂の配合量は、好ましくは70～100質量%、より好ましくは80～100質量%、更に好ましくは90～100質量%である。上記範囲内とすることにより、樹脂成形材料の硬化物の耐熱性を向上させることができる。

40

なお、2種以上を併用する場合には、それらの合計量が上記範囲内となるように調製する。

【0023】

上記(A)成分のエポキシ樹脂は、上記トリフェニルメタン骨格を有するエポキシ樹脂及び上記ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂の他に、本発明の効果を損なわない範囲で半導体素子封止材料として用いられるエポキシ樹脂を併用することができる。併用可能なエポキシ樹脂としては、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、o-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂等を挙げることができるが、これら以外のエポキシ樹脂を併用してもよい。

50

なお、上記樹脂を併用する場合、その配合量は (A) 成分のエポキシ樹脂 100 質量部に対し、30 質量部以下とすることが好ましく、20 質量部以下とすることがより好ましく、10 質量部以下とすることが更に好ましい。

【0024】

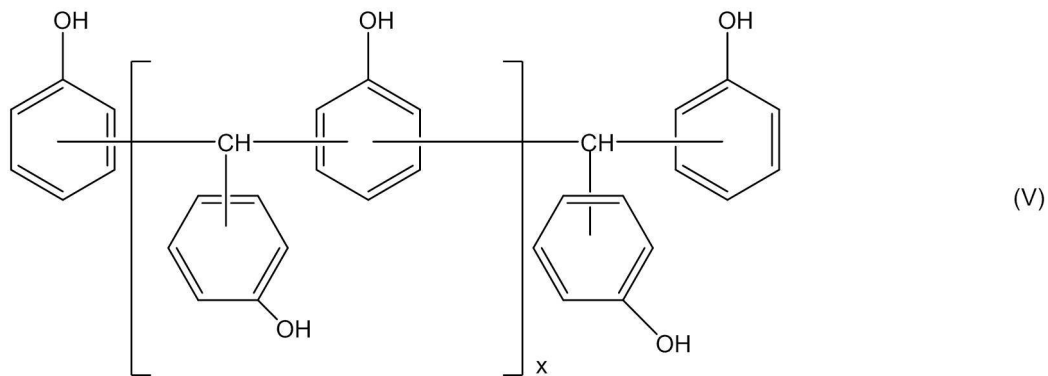
〔(B) フェノール系硬化剤〕

本発明で用いる (B) 成分のフェノール系硬化剤は、一分子中に少なくとも 2 個の水酸基を有し、トリフェニルメタン骨格、及び/又はナフタレン骨格を含む。具体的には、トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、及びナフタレン骨格を有するフェノール樹脂のうち少なくとも 1 種を含む。

上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば、下記一般式 (V) で表されるフェノール樹脂が挙げられる。

【0025】

【化 8】



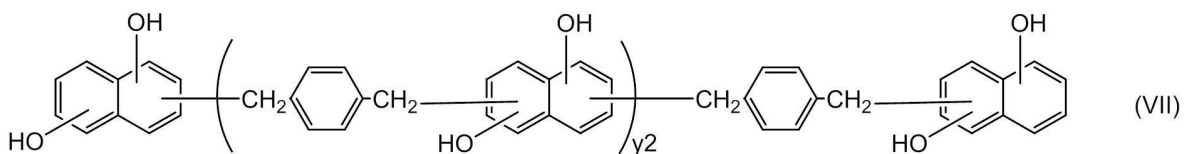
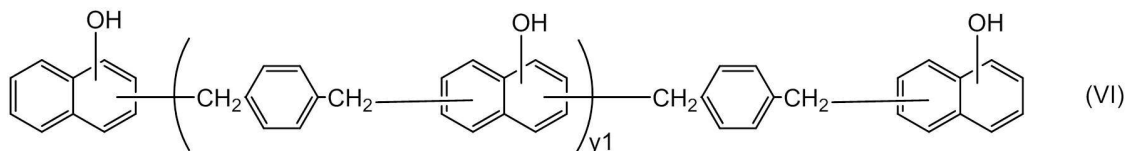
(式中、x は 0 ~ 10 である。)

【0026】

また、上記ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂としては、一分子中に少なくとも 2 個の水酸基を有し、少なくとも 1 つのナフタレン環を有するフェノール樹脂であれば特に限定されるものではなく、例えば、下記一般式 (VI)、及び下記一般式 (VII) で表されるフェノール樹脂が挙げられ、これらを好ましく用いることができる。

【0027】

【化 9】



(式中、y1 は 0 ~ 10、y2 は 0 ~ 10 である。)

【0028】

上記 (B) 成分のフェノール樹脂は、上記一般式 (V) で表されるトリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、上記一般式 (VI) で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂、及び上記一般式 (VII) で表されるナフタレン骨格を有するフェノール

樹脂から選択される少なくとも１種を含むことが、上記（Ａ）成分のエポキシ樹脂とともに、樹脂成形材料の硬化物の耐熱性や生産性を高める観点から好ましい。

なお、上記一般式（Ｖ）～（ＶＩＩ）で表されるフェノール樹脂は、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。

【００２９】

上記一般式（Ｖ）で表されるフェノール樹脂は、ＭＥＨ－７５００（明和化成（株）製）として、上記一般式（ＶＩ）で表されるフェノール樹脂は、ＳＮ－４８５（新日鉄住金化学（株）製）として、上記一般式（ＶＩＩ）で表されるフェノール樹脂は、ＳＮ－３９５（新日鉄住金化学（株）製）として、それぞれ市販品として入手することができる。

【００３０】

上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂及びナフタレン骨格を有するフェノール樹脂の軟化点は、主として生産性の観点から、好ましくは６５～１３０、より好ましくは７０～１２５、更に好ましくは７５～１２０である。

【００３１】

また、（Ｂ）成分のフェノール系硬化剤全量に対する、上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂及び／又はナフタレン骨格を有するフェノール樹脂の配合量は、好ましくは７０～１００質量％、より好ましくは８０～１００質量％、更に好ましくは９０～１００質量％である。上記範囲内とすることにより、樹脂成形材料の硬化物の耐熱性を向上させることができる。

なお、２種以上を併用する場合には、それらの合計量が上記範囲内となるように調製する。

【００３２】

上記（Ｂ）成分のフェノール系硬化剤は、上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂及び上記ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂の他に、本発明の効果を損なわない範囲で半導体素子封止材料として用いられるフェノール系樹脂を併用することができる。併用可能な樹脂としては、例えば、フェノールノボラック、*o*-クレゾールノボラック等を挙げることができるが、これら以外のフェノール樹脂を併用してもよい。

また、本発明の効果を損なわない範囲で、無水酸系硬化剤、アミン系硬化剤等を併用してもよい。

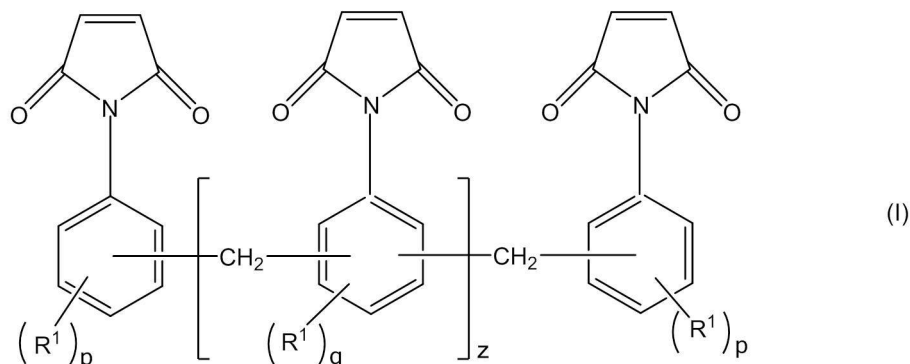
なお、上記樹脂を併用する場合、その配合量は（Ｂ）成分のフェノール系硬化剤１００質量部に対し、３０質量部以下とすることが好ましく、２０質量部以下とすることがより好ましく、１０質量部以下とすることが更に好ましい。

【００３３】

〔（Ｃ）マレイミド樹脂〕

本発明で用いる（Ｃ）成分のマレイミド樹脂は、下記一般式（Ｉ）で表され、１分子内にマレイミド基を２つ以上含む化合物であり、加熱によりマレイミド基が反応することで３次元的網目構造を形成し、硬化する樹脂である。また、上記マレイミド樹脂は、耐熱性や耐熱分解性に優れる。

【化１０】



【００３４】

上記一般式 (I) 中、 R^1 はそれぞれ独立に炭素数 1 ~ 10 の炭化水素基である。p は 0 ~ 4 の整数、q は 0 ~ 3 の整数である。

上記炭素数 1 ~ 10 の炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基などのアルキル基；ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基などのアルケニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基などのアリール基；ベンジル基、フェネチル基などのアラールキル基；クロロメチル基、3 - クロロプロピル基などの置換アルキル基などの 1 価の炭化水素基が挙げられる。

また、複数の R^1 は、互いに同一でも異なってもよい。

z は 0 ~ 10 であり、好ましくは 0 ~ 4 である。

10

【0035】

上記一般式 (I) で表されるマレイミド樹脂の具体例としては、例えば、N, N' - (4, 4' - ジフェニルメタン) ビスマレイミド、ビス (3 - エチル - 5 - メチル - 4 - マレイミドフェニル) メタン、ポリフェニルメタンマレイミド等が挙げられる。

また、上記マレイミド樹脂は、例えば、N, N' - (4, 4' - ジフェニルメタン) ビスマレイミドで z = 0 を主成分とする BMI、BMI - 70 (以上、ケイアイ化成 (株) 製)、BMI - 1000 (大和化成工業 (株) 製)、同じく z = 0 ~ 2 を主成分とする BMI - 2300 (大和化成工業 (株) 製) 等が市販品として入手することができる。

【0036】

上記 (C) 成分のマレイミド樹脂は、その一部若しくは全部を上記 (A) 成分のエポキシ樹脂の一部若しくは全部と、又は上記 (B) 成分のフェノール系硬化剤の一部若しくは全部と、予め予備混合を行ってから用いてもよい。予備混合の方法は特に限定されず、公知の混合方法を用いることができる。例えば、攪拌可能な装置を用い、(A) 成分のエポキシ樹脂又は (B) 成分のフェノール系硬化剤を 50 ~ 180 で溶解した後、攪拌しつつ (C) 成分のマレイミド樹脂を徐々に加えて混合し、その全てが溶解してから更に 10 ~ 60 分程度攪拌し、予備混合樹脂とする方法等が挙げられる。

20

なお、予備混合において、(A) 成分のエポキシ樹脂や (B) 成分のフェノール系硬化剤をそれぞれ 2 種以上用いてもよい。

【0037】

耐熱分解性の観点から、上記 (C) 成分のマレイミド樹脂の含有量は、(A) 成分、(B) 成分、及び (C) 成分の合計 100 質量% に対し、30 質量% 以上であることが好ましく、45 質量% 以上であることがより好ましく、60 質量% 以上であることが更に好ましい。

30

また、特に成形性の観点から、上記 (C) 成分のマレイミド樹脂の含有量は、(A) 成分、(B) 成分、及び (C) 成分の合計 100 質量% に対し、80 質量% 以下であることが好ましい。

【0038】

上記 (C) 成分のマレイミド樹脂は、本発明の効果を妨げない範囲で、上記一般式 (I) で表されるマレイミド樹脂以外のマレイミド樹脂を併用してもよい。併用可能なマレイミド樹脂としては、例えば、3, 3' - ジメチル - 5, 5' - ジエチル - 4, 4' - ジフェニルメタンビスマレイミド、m - フェニレンビスマレイミド、2, 2 - ビス [4 - (4 - マレイミドフェノキシ) フェニル] プロパン、1, 6 - ビスマレイミド - (2, 2, 4 - トリメチル) ヘキサン等を挙げることができるが、これら以外の従来公知のマレイミド樹脂を併用してもよい。

40

なお、上記一般式 (I) で表されるマレイミド樹脂以外のマレイミド樹脂を配合する場合、その配合量は、(C) 成分のマレイミド樹脂 100 質量部に対し、30 質量部以下とすることが好ましく、20 質量部以下とすることがより好ましく、10 質量部以下とすることが更に好ましい。

【0039】

[(D) シランカップリング剤]

50

本発明で用いる（Ｄ）成分のシランカップリング剤は、炭素数２～４のアルコキシ基を有するグリシドキシプロピルトリアルコキシシランを含有し、Niメッキとの密着性を向上させる効果を有する。中でも、Niメッキとの密着性向上の観点から、アルコキシ基の炭素数が２である３－グリシドキシプロピルトリエトキシシランが好ましい。

炭素数２～４のアルコキシシラン系カップリング剤は、炭素数１のトリメトキシシラン系カップリング剤と比較してアルコキシ基の加水分解性が低く、後述する（Ｅ）成分のシリカ等の無機充填材との反応性が相対的に低いため、エポキシ樹脂成形材料と被着体との界面に上記無機充填材がブリードアウトしやすく、両者の密着性向上に有利に働くものと考えられる。

【００４０】

３－グリシドキシプロピルトリエトキシシランの市販品は、KBE-403（信越化学工業（株）製）として入手することができる。

【００４１】

樹脂成形材料全量に対する上記炭素数２～４のグリシドキシプロピルトリアルコキシシランの配合量は、好ましくは０．０１～１質量％、より好ましくは０．０３～０．５質量％、更に好ましくは０．０５～０．４質量％である。０．０１質量％以上とすることで、Niメッキとの密着性を向上させることができ、１質量％以下とすることで、樹脂成形時の硬化性の低下を抑制することができる。

【００４２】

上記（Ｄ）成分のシランカップリング剤は、さらにイソシアネートプロピルトリアルコキシシランを含有することが、Niメッキとの密着性をより向上させる観点から、好ましい。

上記イソシアネートプロピルトリアルコキシシランの具体例としては、３－イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。中でも、Niメッキとの密着性向上の観点からは、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシランが好ましい。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。

【００４３】

３－イソシアネートプロピルトリエトキシシランの市販品は、KBE-9007（信越化学工業（株）製）として入手することができる。

【００４４】

上記（Ｄ）成分のシランカップリング剤は、本発明の効果を損なわない範囲で、さらに他のシラン系カップリング剤を併用してもよく、エポキシ樹脂成形材料の機械強度を高める観点から、トリメトキシシラン系カップリング剤を併用する等の例を挙げることができる。

上記トリメトキシシラン系カップリング剤としては、例えば、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、N-フェニル-３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

【００４５】

上記（Ｄ）成分のシランカップリング剤の例として、例えば、（Ｄ）成分全量に対し、上記３－グリシドキシプロピルトリエトキシシランを３０～７０質量％とした上で、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシランや３－グリシドキシプロピルトリメトキシシランを併用する等を挙げることができる。また、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシランを同質量％程度ずつ併用する等の例示も可能である。

【００４６】

なお、上記（Ｄ）成分のシランカップリング剤は、後述する（Ｅ）成分のシリカ等の無機充填材と単純に混合して用いてもよいし、予めシリカ等の無機充填材に表面処理を施して用いてもよいが、生産性を考慮すると、単純混合でも十分に効果的である。

【００４７】

〔（Ｅ）無機充填材〕

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、（Ｅ）成分の無機充填材を含有する。無機充填材を含有することで、硬化物の機械強度、線膨張係数、熱伝導性等の向上を図ることができる。

上記（Ｅ）成分の無機充填材は、一般に封止用成形材料に用いられるものを適宜選択して使用することができ、特に限定されない。例えば、熔融シリカ、結晶シリカ、合成シリカ、アルミナ、ジルコン、ケイ酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸バリウム、窒化アルミ、窒化ホウ素等を挙げることができる。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。

【００４８】

上記（Ｅ）成分の無機充填材の平均粒径は、通常、 $0.5 \sim 30 \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $5 \sim 20 \mu\text{m}$ である。なお、上記平均粒径は、レーザ回折散乱方式（たとえば、（株）島津製作所製、装置名：ＳＡＬＤ－３１００）により測定された値である。

【００４９】

上記（Ｅ）成分の無機充填材は、シラザンにより表面処理されたシリカを含むことが、Ｎｉメッキとの密着性向上の観点から好ましい。シラザン処理を施されるシリカは、熔融シリカ、結晶シリカ、合成シリカのいずれであってもよい。また、シラザン処理を施された複数種のシリカを併用してもよい。

シリカ表面をシラザン処理する方法としては、例えば、ヘキサメチルジシラザンを用い、 $80 \sim 100$ 程度の温度下で湿式処理する方法等が挙げられる。

【００５０】

なお、シラザン処理されたシリカの市販品としては、例えば、平均粒径 $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の合成シリカをシラザン処理したＳＣ－２５００ＳＱ（（株）アドマテックス製）等が挙げられる。

【００５１】

シラザン処理されたシリカを含む（Ｅ）成分の無機充填材として、例えば、平均粒径 $10 \sim 30 \mu\text{m}$ の熔融球状シリカに、シラザン処理された平均粒径 $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の合成シリカを、該熔融球状シリカの $1 \sim 10$ 質量％程度混合して（Ｅ）成分とする、等を例示することができる。

【００５２】

樹脂成形材料全量に対する上記（Ｅ）成分の配合量は、流動特性や線膨張係数、熱伝導率等の観点から、好ましくは $60 \sim 95$ 質量％、より好ましくは $65 \sim 90$ 質量％、更に好ましくは $70 \sim 88$ 質量％である。

【００５３】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、以上の各成分の他に、本発明の効果を阻害しない範囲で、この種の組成物に一般に配合される離型剤、硬化促進剤、シリコーン系等の低応力剤、難燃剤、カーボンブラック、有機染料、酸化チタン、ベンガラ等の着色剤等を必要に応じて配合することができる。

【００５４】

上記離型剤としては、例えば、カルナバワックス等の天然ワックス、脂肪酸エステル系ワックス、脂肪酸アミド系ワックス、非酸化型ポリエチレン系離型剤、酸化型ポリエチレン系離型剤等を挙げることができる。

上記離型剤は、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。また、数平均分子量 $800 \sim 2000$ の酸化型ポリエチレン系離型剤を単独で用いると、Ｎｉメッキとの密着性が高くなる傾向があり、好ましく用いることができる。数平均分子量 $800 \sim 2000$ の酸化型ポリエチレン系離型剤の市販品としては、例えば、三井化学（株）製のハイワックスＨＷ－４０５１Ｅ、ＨＷ－４０５２Ｅ、ＨＷ－４２０２Ｅ、ＨＷ－４２５２Ｅ等が挙げられる。

【００５５】

また、上記硬化促進剤としては、例えば、トリフェニルホスフィン、トリス（４－メチ

10

20

30

40

50

ルフェニル)ホスフィン、テトラフェニルホスフィン・テトラフェニルボロン、1,8-ジアザピシクロ[5.4.0]ウンデセン、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール等を挙げることができる。

上記硬化促進剤は、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。

【0056】

上記難燃剤としては、例えば、ブロム化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ホウ酸亜鉛、酸化亜鉛、リン酸エステル等のリン化合物、メラミン、シクロホスファゼン等を挙げることができる。

上記難燃剤は、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。

【0057】

また、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、半導体素子の耐湿性や高温放置特性向上等の観点から、陰イオン交換体等のイオントラップ剤を配合することができる。陰イオン交換体としては、例えば、ハイドロタルサイト類、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ピスマス等から選ばれる元素の含水酸化物等を挙げることができるが、これら以外の従来公知の陰イオン交換体を併用してもよい。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】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、上記成分(A)~(E)、及び前述したその他の成分を所定量配合したものを均一に分散混合することにより、調製することができる。調製方法は、特に限定されないが、一般的な方法として、例えば、上記各成分を所定量配合したものを、ミキサー等で十分に混合し、次いで、ミキシングロール、押出機等により熔融混合した後、冷却、粉碎する方法を挙げることができる。

【0059】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料中に含まれる上記成分(A)~(E)の合計含有量は、好ましくは90~100質量%、より好ましくは95~100質量%、更に好ましくは98~100質量%である。

【0060】

このようにして得られた封止用エポキシ樹脂成形材料の硬化物のガラス転移温度は、好ましくは240 以上、より好ましくは250 以上、更に好ましくは260 以上である。また、上記封止用エポキシ樹脂成形材料の硬化物の熱分解温度は、好ましくは350 以上、より好ましくは370 以上、更に好ましくは400 以上である。

なお、上記ガラス転移温度及び熱分解温度は、実施例に記載の方法により測定できる。

また、上記封止用エポキシ樹脂成形材料の硬化物は、Niメッキとの密着性に優れ、225 で1000時間放置後でも剥離やクラックが発生しにくい。

【0061】

(電子部品装置)

本発明の電子部品装置は、上記封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備える。上記電子部品装置とは、リードフレーム、単結晶シリコン半導体素子又はシリコン、ガリウム等の化合物半導体素子等の支持部材、これらを電氣的に接続するためのワイヤやパンプ等の部材、及びその他の構成部材一式に対し、必要部分を上記封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された電子部品装置のことである。

また、上記リードフレームの表面にNiメッキが施されていても、上記封止用エポキシ樹脂成形材料を用いることにより、硬化物の耐熱性、Niメッキとの密着性に優れ、高温放置後でも剥離やクラックを発生しにくくすることができる。

【0062】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料を用いて封止する方法としては、トランスファ成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。

【実施例】

【0063】

次に実施例により、本発明を具体的に説明するが、本発明は、これらの例によってなん

10

20

30

40

50

ら限定されるものではない。

【 0 0 6 4 】

(実施例 1 ~ 1 0 、 及び比較例 1 ~ 1 1)

表 1 及び表 2 に記載の種類及び配合量の各成分を小型押出機で混練し、封止用エポキシ樹脂成形材料を調製した。各実施例及び比較例における混練温度は、約 8 0 に設定した。なお、表 1 及び表 2 中、空欄は配合なしを表す。

【 0 0 6 5 】

封止用エポキシ樹脂成形材料の調製に使用した表 1 及び表 2 に記載の各成分の詳細は以下のとおりである。

< エポキシ樹脂 >

〔 (A) 成分 〕

・ E P P N - 5 0 2 H : トリフェニルメタン型エポキシ樹脂 (一般式 (I I) 中の $n = 0 \sim 3$ であるエポキシ樹脂が主成分)、日本化薬 (株) 製、商品名、エポキシ当量 1 6 8、軟化点 6 7

・ E S N - 3 7 5 : ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂 (一般式 (I I I) 中の $m = 0 \sim 3$ であるエポキシ樹脂が主成分)、新日鉄住金化学 (株) 製、商品名、エポキシ当量 1 7 2、軟化点 7 5

・ H P - 4 7 1 0 : ジヒドロキシナフタレンノボラック型エポキシ樹脂 (一般式 (I V) で表されるエポキシ樹脂)、D I C (株) 製、商品名、エポキシ当量 1 6 1、軟化点 8 2

〔 その他 〕

・ N C - 3 0 0 0 : ビフェニレンアラルキル型エポキシ樹脂、日本化薬 (株) 製、商品名、エポキシ当量 2 7 0、軟化点 5 2

【 0 0 6 6 】

< フェノール系硬化剤 >

〔 (B) 成分 〕

・ M E H - 7 5 0 0 : トリフェニルメタン型フェノール樹脂 (一般式 (V) 中の $x = 1 \sim 4$ であるフェノール樹脂が主成分)、明和化成 (株) 製、商品名、水酸基当量 9 7、軟化点 1 1 0

・ S N - 4 8 5 : ナフトールアラルキル樹脂 (一般式 (V I) 中の $y_1 = 0 \sim 3$ であるフェノール樹脂が主成分)、新日鉄住金化学 (株) 製、商品名、水酸基当量 2 1 5、軟化点 8 7

・ S N - 3 9 5 : ジヒドロキシナフタレンアラルキル樹脂 (一般式 (V I I) 中の $y_2 = 0 \sim 3$ であるフェノール樹脂が主成分)、新日鉄住金化学 (株) 製、商品名、水酸基当量 1 0 9、軟化点 8 5

〔 その他 〕

・ H E - 2 0 0 C - 1 0 : ビフェニレンアラルキル樹脂、エア・ウォーター (株) 製、商品名、水酸基当量 2 0 4、軟化点 7 0

【 0 0 6 7 】

< マレイミド樹脂 >

〔 (C) 成分 〕

・ B M I - 1 0 0 0 : N , N ' - (4 , 4 ' - ジフェニルメタン) ビスマレイミド (一般式 (I) 中の $z = 0$ を主成分とする)、大和化成工業 (株) 製、商品名

・ B M I - 2 3 0 0 : ポリフェニルメタンマレイミド (一般式 (I) 中の $z = 0 \sim 2$ を主成分とする)、大和化成工業 (株) 製、商品名

なお、上記マレイミド樹脂は、その全量を (B) 成分のフェノール系硬化剤の全量に加え予備混合して用いた。予備混合は、1 4 0 ~ 1 5 0 で (B) 成分のフェノール系硬化剤の全量を溶融させた後、同温度で、マレイミド樹脂を徐々に加えて混合し、その全量が溶融した後、更に 3 0 分程攪拌した。

【 0 0 6 8 】

< シランカップリング剤 >

〔 (D) 成分 〕

・ K B E - 4 0 3 : 3 - グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、信越化学工業 (株) 製、商品名

〔 その他 〕

・ K B M - 4 0 3 : 3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、信越化学工業 (株) 製、商品名

・ K B E - 9 0 0 7 : 3 - イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、信越化学工業 (株) 製、商品名

・ K B E - 4 0 2 : 3 - グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、信越化学工業 (株) 製、商品名

・ K B E - 9 0 3 : 3 - アミノプロピルトリエトキシシラン、信越化学工業 (株) 製、商品名

【 0 0 6 9 】

< 無機充填材 >

〔 成分 (E) 〕

・ F B - 1 0 5 : 溶融球状シリカ、電気化学工業 (株) 製、商品名、平均粒径 $1.8 \mu\text{m}$ 、比表面積 $4.5 \text{ m}^2 / \text{g}$

・ S C - 2 5 0 0 S Q : 合成微細球状シリカ (予めシラザン処理を施されている)、(株) アドマテックス製、商品名、平均粒径 $0.6 \mu\text{m}$ 、比表面積 $6 \text{ m}^2 / \text{g}$

< その他 >

・ カルナバックス : 離型剤、東洋アドレ (株) 製、商品名

・ H W - 4 2 5 2 E : 離型剤 (数平均分子量 1 0 0 0 の酸化型ポリエチレン系離型剤)、三井化学 (株) 製、商品名

・ P P - 2 0 0 : 硬化促進剤 (トリフェニルホスフィン)、北興化学工業 (株) 製、商品名

・ M A - 6 0 0 : 着色剤 (カーボンブラック)、三菱化学 (株) 製、商品名

【 0 0 7 0 】

以下に示す測定条件により、実施例 1 ~ 1 0、及び比較例 1 ~ 1 1 で調製したエポキシ樹脂成形材料の特性の測定、及び評価を行った。評価結果を表 1 及び表 2 に示した。なお、エポキシ樹脂成形材料の成形は、明記しない限りトランスファ成形機により、金型温度 180°C 、成形圧力 10 MPa 、硬化時間 $180 \sim 240$ 秒の条件で行なった。また、後硬化は 200°C で 8 時間行った。

< 評価項目 >

(1) ガラス転移温度 (T_g)

エポキシ樹脂成形材料の硬化物の耐熱性の目安の一つとしてガラス転移温度 (T_g) を測定した。まず、縦 4 mm × 横 4 mm × 高さ 20 mm の金型を用いて、エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、更に、上記条件で後硬化させ、成形品 (縦 4 mm × 横 4 mm × 厚み 20 mm) を作製した。該成形品を必要な寸法に切り出したものを試験片とし、該試験片のガラス転移温度 (T_g) を、熱分析装置 (セイコーインスツル (株) 製、SSC / 5200) を用いて測定した。なお、 240°C 以上を合格とする。

【 0 0 7 1 】

(2) 熱分解温度

エポキシ樹脂成形材料の硬化物の耐熱性のもう一つの目安として、TG-DTA による熱分解温度を測定した。上記 (1) と同サイズの試験片を乳鉢で十分にすり潰して得られた粉末を用い、昇温速度 $10^\circ\text{C} / \text{分}$ で室温 (25°C) から 600°C まで加熱した。得られた重量変化チャートから、1 % の重量減少が認められた温度を熱分解温度とした。測定装置はセイコーインスツル (株) 製の「EXSTAR 6000」を用いた。なお、 350°C 以上を合格とする。

【 0 0 7 2 】

(2) Niメッキとの密着力

無電解Niメッキ（（株）三井ハイテック製、商品名「VQFP208p」）上に、エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、更に、上記条件で後硬化させた成形品をそれぞれ4個作製した。ボンドテスター（西進商事（株）製、SS-30WD）を用いて、Niメッキ上に成形した3.5mmのプリント状成形物を、成形品の下部より0.5mmの高さから速度0.1mm/秒でせん断方向に引き剥がし、成形物とNiメッキとの密着力を測定した。これを4回行い、平均値を求めた。なお、7MPa以上を合格とする。

【0073】

(3) 高温放置後、剥離・クラック観察

無電解Niメッキ（（株）三井ハイテック製、商品名「VQFP208p」）上に、エポキシ樹脂成形材料を上記条件で成形し、更に、上記条件で後硬化させた成形品をそれぞれ20個作製した。該成形品を225℃で1000時間放置した後、超音波映像装置（（株）日立製作所製、FS300II）を用いて、該成形品を観察し、剥離やクラックの有無について確認した。なお、剥離又はクラック数が20個中4個以下を合格とする。

【0074】

【表1】

表1

			単位	実施例									
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
エポキシ樹脂	(A)成分	EPPN-502H	質量部	100	100	100	100	100			20	20	100
		ESN-375	質量部						100				
		HP-4710	質量部							100			
		NC-3000	質量部										
フェノール系硬化剤	(B)成分	MEH-7500	質量部	58									
		SN-485	質量部		128	128	128	128	125		90	90	128
		SN-395	質量部							65			
		HE-200C-10	質量部										
マレイミド樹脂	(C)成分	BMI-1000	質量部	150							300		
		BMI-2300	質量部		150	150	150	150	150	150		280	150
シランカップリング剤	(D)成分	KBE-403	質量部	4	4	4	6	3	4	4	5	5	2
		KBM-403	質量部										2
		KBE-9007	質量部			2		3					
		KBE-402	質量部										
		KBE-903	質量部										
無機充填材	(E)成分	FB-105	質量部	1200	1400	1800	2050	1600	1400	1200	1500	1500	800
		SC-2500SQ	質量部				150						25
(C)／(A)＋(B)＋(C)			質量%	48.7	39.7	39.7	39.7	39.7	40.0	47.6	73.2	71.8	39.7
離型剤		カルナバックス	質量部	2	3	3	3		3	3	3	3	3
		HW-4252E	質量部					1					
硬化促進剤		PP-200	質量部	2	2	2	2	2	2	2	3	3	3
着色剤		MA-600	質量部	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
ガラス転移温度 (T _g)			[°C]	255	245	245	245	245	240	260	270	270	245
熱分解温度			[°C]	350	370	370	370	370	370	365	415	415	370
Niメッキとの密着力			[MPa]	8	9	12	11	11	8	8	7	7	9
高温放置後剥離・クラック観察			[個]	4/20	3/20	0/20	0/20	1/20	2/20	3/20	3/20	4/20	0/20

【0075】

【表 2】

表2

			単位	比較例										
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
エポキシ樹脂	(A)成分	EPPN-502H	質量部									100	100	100
		ESN-375	質量部						100	100				
		HP-4710	質量部								100			
		NC-3000	質量部	100	100	100	100	100						
フェノール系硬化剤	(B)成分	MEH-7500	質量部	36	36									
		SN-485	質量部			80	80						128	128
		SN-395	質量部					39						
		HE-200C-10	質量部						120	120	130	120		
マレイミド樹脂	(C)成分	BMI-1000	質量部							150				
		BMI-2300	質量部		150		150	150			150	150	150	150
シランカップリング剤	(D)成分	KBE-403	質量部	3	4	3	4	4	3	5	5	5		
		KBM-403	質量部											
		KBE-9007	質量部											
		KBE-402	質量部										5	
		KBE-903	質量部											5
無機充填材	(E)成分	FB-105	質量部	750	1200	700	1300	1200	850	1400	1400	1400	1400	1400
		SC-2500SQ	質量部											
離型剤		カルナバックス	質量部	1	2	1	2	2	1	3	3	3	3	3
		HW-4252E	質量部											
硬化促進剤		PP-200	質量部	2	2.5	2	2.5	2.5	2	2	2	2	2.5	2.5
着色剤		MA-600	質量部	1.5	3	1.5	3	3	3	3	3.5	2.8	2.8	2.8
ガラス転移温度 (T _g)			[°C]	150	195	140	180	195	140	190	190	190	240	240
熱分解温度			[°C]	365	380	370	380	375	380	380	365	370	370	370
Niメッキとの密着力			[MPa]	10	10	13	12	11	15	14	9	9	3	3
高温放置後剥離・クラック観察			[個]	20/20	15/20	20/20	14/20	16/20	18/20	15/20	19/20	10/20	10/20	8/20

10

20

【0076】

以上説明したように、(A)成分～(E)成分を含有する封止用エポキシ樹脂成形材料を用いた実施例1～10では、いずれも硬化物のガラス転移温度が240以上、熱分解温度が350以上であり、Niメッキとの密着性も良好であった。また、225で1000時間放置後においても剥離やクラックの発生が少ない結果が得られた。特に、(C)成分のマレイミド樹脂の割合が、(A)成分～(C)成分の合計量に対し、60質量%以上である実施例8及び9では、ガラス転移温度が270、熱分解温度が415と共に高く、耐熱性に優れる。また、(D)成分として、グリシドキシプロピルトリエトキシシランとイソシアネートプロピルトリエトキシシランとを含む実施例3は、(C)成分としてグリシドキシプロピルトリエトキシシランのみ用いた実施例2と比較して、Niメッキとの密着性がより高い結果を示している。また、(E)成分として、シラザンにより表面処理されたシリカを含む実施例4は、(D)成分としてシラザンにより表面処理されていないシリカのみを用いた実施例2と比較して、Niメッキとの密着性がより高い結果を示している。

30

一方、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料とは異なる組成の比較例1～11では、目標とされるガラス転移温度(250)を達成できない(比較例1～9)、又は、Niメッキとの密着力が弱い(比較例10及び11)等、耐熱性及びNiメッキとの密着性の両立を満足しない結果となった。

40

【産業上の利用可能性】

【0077】

本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、電子部品装置などに利用できる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
H 0 1 L 23/29 (2006.01) H 0 1 L 23/30 R
H 0 1 L 23/31 (2006.01)

(56)参考文献 国際公開第2012/101991(WO,A1)
特開2007-023272(JP,A)
特開2014-111693(JP,A)
特開2014-237861(JP,A)
国際公開第2014/065152(WO,A1)
特開2004-161900(JP,A)
特開2010-168470(JP,A)
特開2014-132802(JP,A)
国際公開第2012/053522(WO,A1)
特開2014-019815(JP,A)
特開2012-056989(JP,A)
特開2010-275526(JP,A)
特開2010-100802(JP,A)
特開2010-100803(JP,A)
特開平05-239426(JP,A)
米国特許出願公開第2012/0247820(US,A1)
韓国公開特許第10-2009-0071774(KR,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

I P C	C 0 8 L	1 / 0 0	-	1 0 1 / 1 4
	C 0 8 K	3 / 0 0	-	1 3 / 0 8
	H 0 1 L	2 3 / 2 8	-	2 3 / 3 0
	C 0 9 K	3 / 1 0	-	3 / 1 2

DB名 C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)