

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국



(43) 국제공개일
2020 년 9 월 10 일 (10.09.2020) **WIPO | PCT**

(10) 국제공개번호
WO 2020/179988 A1

- (51) 국제특허분류:
C08G 59/42 (2006.01) *H01L 23/29* (2006.01)
C08G 59/62 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2019/016955
- (22) 국제출원일: 2019 년 12 월 3 일 (03.12.2019)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2019-0026276 2019 년 3 월 7 일 (07.03.2019) KR
- (71) 출원인: 주식회사 케이씨씨 (**KCC CORPORATION**)
[KR/KR]; 06608 서울시 서초구 사평대로 344, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 공병선 (**KONG, Byung Seon**); 17013 경기도 용인시 기흥구 동백중앙로 73, 5204-1402, Gyeonggi-do (KR). 탁상용 (**TAK, Sang Yong**); 17857 경기도 평택시 비전3로 115, 105-602, Gyeonggi-do (KR).
- (74) 대리인: 특허법인 성암 (**SUNGAM SUH INTERNATIONAL PATENT & LAW FIRM**); 06252 서울시 강남구 역삼로 114, 9층, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, 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).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(54) Title: EPOXY RESIN COMPOSITION

(54) 발명의 명칭: 에폭시 수지 조성물

(57) Abstract: The present invention relates to an epoxy resin composition for sealing semiconductor devices, the epoxy resin composition having low dielectric properties.

(57) 요약서: 본 발명은 낮은 유전특성을 갖는 반도체 소자 봉지용 에폭시 수지 조성물에 관한 것이다.



WO 2020/179988 A1

명세서

발명의 명칭: 에폭시 수지 조성물

기술분야

- [1] 본 발명은 낮은 유전특성을 갖는 반도체 소자 봉지용 에폭시 수지 조성물에 관한 것이다.

[2]

배경기술

- [3] 모바일 기기 및 사물인터넷(Internet of Things, IoT) 분야의 성장과 함께, 이에 기반한 이동통신 기술 규격 또한 급격한 발전을 해오고 있다. 최근 5G 통신 시대로 접어들면서, 고용량의 정보를 빠르고 정확하게 전달하기 위해 필요한 제반 기술에 대한 연구 개발이 지속적으로 이루어지고 있다. 기존 LTE 또는 4G 통신 시대에는 반도체 패키지용 회로기판(PCB)을 구성하는 소재의 개량이 중심이 되었으나, 5G 통신 시대로 접어들면서 패키지용 회로기판뿐만 아니라 반도체 봉지 조성물의 개량까지 요구되고 있다.
- [4] 반도체 봉지재는 반도체 내부 회로를 외부 충격 및 오염물질로부터 보호하는 역할을 하는 재료로서, 최근 모바일 기기에 사용되는 반도체 봉지재는 방열성 및 흐름성 등 기본적으로 요구되는 물성뿐만 아니라, 고주파 신호 전달 시 전송 손실을 줄이기 위해 낮은 유전상수(Dk) 및 유전정접(Df)을 나타낼 것이 요구되며, 관련 연구가 활발히 이루어지고 있다.
- [5] 일례로, 한국 공개특허 10-2014-0127957호는 페놀 수지 및 에피할로히드린을 염기촉매 하에서 반응시켜 형성된 저유전성 에폭시 수지 조성물을 개시하고 있다. 그러나 상기 에폭시 수지 조성물은 최근 이동통신 기술이 요구하는 수준의 낮은 유전상수(Dk) 및 유전정접(Df) 특성을 만족시키지 못하고 있어, 낮은 유전특성을 갖는 반도체 소자 봉지용 조성물에 대한 요구가 계속되고 있는 실정이다.

[6]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [7] 본 발명은 낮은 유전특성을 갖는 에폭시 수지 조성물 및 이를 이용하여 봉지된 반도체 소자를 제공한다.

[8]

과제 해결 수단

- [9] 본 발명은 에폭시 수지, 경화제 및 충전제를 포함하고, 상기 경화제는 에스터계 수지를 포함하는 에폭시 수지 조성물을 제공한다.

[10]

발명의 효과

[11] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 낮은 유전상수 및 유전정접을 확보함으로써, 반도체 소자에 적용될 경우 고주파 신호 전달 시 전송 손실을 최소화함과 동시에 빠른 정보 전달을 가능하게 한다. 또한 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 낮은 흡습율을 가짐으로써 반도체 내부 회로를 효과적으로 보호할 수 있다.

[12]

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[13] 이하, 본 발명에 대하여 설명한다. 그러나, 하기 내용에 의해서만 한정되는 것은 아니며, 필요에 따라 각 구성요소가 다양하게 변형되거나 선택적으로 혼용될 수 있다. 따라서, 본 발명의 사상 및 기술범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.

[14]

[15] <에폭시 수지 조성물>

[16] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 에폭시 수지, 경화제 및 충전제를 포함하고, 상기 경화제는 에스터계 수지를 포함한다. 또한 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 필요에 따라 경화 촉진제 및 당 분야에서 통상적으로 사용되는 첨가제를 더 포함할 수 있다. 이하 본 발명의 에폭시 수지 조성물의 구성을 살펴보면 다음과 같다.

[17]

[18] 에폭시 수지

[19] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 에폭시 수지를 주(主) 수지로서 포함한다. 상기 에폭시 수지는 경화제와 반응하여 경화되며, 경화 후 삼차원 망상 구조를 가짐으로써 피착체에 강하고 견고하게 접착하는 성질과 내열성을 부여한다.

[20]

상기 에폭시 수지로는 반도체 소자 봉지재에 통상적으로 사용되는 에폭시 수지를 제한 없이 사용할 수 있다. 사용 가능한 에폭시 수지의 비제한적인 예로는 비스페놀 A형 에폭시 수지, 크레졸 노불락형 에폭시 수지, 비스페놀 F형 에폭시 수지, 비스페놀 S형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 안트라센 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 테트라메틸 비페닐형 에폭시 수지, 페놀 노불락형 에폭시 수지, 비스페놀 A 노불락형 에폭시 수지, 비스페놀 S 노불락형 에폭시 수지, 비페닐 노불락형 에폭시 수지, 나프톨 노불락형 에폭시 수지, 나프톨 페놀 공축 노불락형 에폭시 수지, 나프톨 크레졸 공축 노불락형 에폭시 수지, 방향족 탄화수소 포름알데히드 수지 변형 페놀 수지형 에폭시 수지, 트리페닐 메탄형 에폭시 수지, 테트라페닐 에탄형 에폭시 수지, 디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지, 디사이클로펜타디엔 페놀 부가반응형 에폭시 수지, 페놀 아랄킬형 에폭시 수지, 다관능성 페놀 수지, 나프톨 아랄킬형 에폭시 수지 중 1종 이상을 들 수 있으나, 반드시 이에 한정되는 것은 아니다.

- [21] 상기 에폭시 수지의 에폭시 당량(EEW)은 100 내지 400 g/eq, 예를 들어 150 내지 300 g/eq, 연화점은 30 내지 150°C, 예를 들어 40 내지 130°C, 점도(150 °C 기준)는 0.01 내지 30 poise, 예를 들어 0.02 내지 20 poise일 수 있다. 이러한 에폭시 수지는 상대적으로 낮은 점도 특성을 가지므로, 고함량의 충전제가 포함되더라도 흐름성을 확보할 수 있으며, 혼련이 용이하다.
- [22] 상기 에폭시 수지의 에폭시 당량이 100 g/eq 미만이면 과도하게 흐름성이 떨어질 수 있고, 400 g/eq를 초과하면 유리전이온도(Tg)가 떨어지고 열팽창계수가 증가할 수 있다. 또한, 상기 에폭시 수지의 연화점 및 점도가 상기 범위를 벗어나면 분산성이 저하될 수 있다.
- [23] 상기 에폭시 수지는 에폭시 수지 조성물 총 중량을 기준으로 1 내지 20 중량%, 예를 들어 1 내지 10 중량%로 포함될 수 있다. 상기 에폭시 수지의 함량이 1 중량% 미만이면 접착성, 전기절연성, 흐름성 및 성형성이 저하될 수 있으며, 함량이 20 중량%를 초과하면 흡습량 증가로 반도체의 신뢰성이 불량해지고, 충전제의 상대적 함량 감소로 방열특성이 저하될 수 있다.
- [24]
- [25] 경화제
- [26] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 경화제를 포함한다. 상기 경화제는 에폭시 수지와 반응하여 조성물의 경화를 진행시키는 역할을 한다.
- [27] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 경화제로 에스터계 수지를 포함한다. 상기 에스터계 수지는 구성 분자의 주쇄가 에스테르 결합을 포함하고 있는 수지라면 특별한 한정없이 사용할 수 있다. 일례로 상기 에스터계 수지는 카르복실산 화합물과 글리콜 화합물 또는 페놀 화합물을 축매 및 용매 하에서 중합하여 제조된 것일 수 있다.
- [28] 상기 카르복실산 화합물의 종류는 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어 테레프탈산(Terephthalic acid), 이소프탈산(Isophthalic acid), 1,4-사이클로헥산디카르복실산(1,4-Cyclohexane dicarboxylic acid), 아디프산(Adipic acid), 세바식산(Sebacic acid), 무수프탈산(Phthalic anhydride), 트리멜리트산무수물(Trimellitic anhydride), 벤조산(Benzoic acid), 테트라하이드로무수프탈산(Tetrahydrophthalic anhydride)으로 이루어진 군에서 선택된 1종 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다.
- [29] 상기 글리콜 화합물의 종류는 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어 에틸렌글리콜(Ethylene glycol), 프로필렌글리콜(Propylene glycol), 1,2-부틸렌글리콜(1,2-Butylene glycol), 네오펜틸글리콜(Neopentyl glycol), 1,6-헥산디올(1,6-Haxanediol), 글리세롤(Glycerol)로 이루어진 군에서 선택된 1종 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다.
- [30] 상기 페놀 화합물의 종류는 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어 페놀, 크레졸(Cresol), p-t-부틸페놀(p-t-Butylphenol), 1-나프톨(1-Naphthol), 2-나프톨(2-Naphthol), 카테콜(Catechol), 레조르시놀(Resorcinol),

하이드로퀴논(Hydroquinone)으로 이루어진 군에서 선택된 1종 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다.

- [31] 상기 에스터계 수지의 히드록시기(OH) 당량은 50 내지 400 g/eq, 예를 들어 100 내지 300 g/eq일 수 있고, 연화점은 25 내지 130°C, 예를 들어 50 내지 100°C일 수 있고, 점도(150 °C 기준)는 0.1 내지 3 poise, 예를 들어 0.3 내지 1.5 poise일 수 있다. 상기 에스터계 수지의 히드록시기(OH) 당량이 400 g/eq를 초과하는 경우 경화반응 후 경화밀도가 저하되어 신뢰성이 저하될 수 있고, 50 g/eq 미만인 경우 경화반응 속도가 증가하여 겔(Gel) 발생율이 높고 안정성이 저하될 수 있다. 연화점이 130°C를 초과하는 경우 점도가 증가하여 흐름성이 저하되어 성형성 불량률이 야기될 수 있으며, 25°C 미만인 경우 분산성이 저하되어 뭉침으로 인해 수율이 감소될 수 있다. 점도가 3 poise를 초과하는 경우 흐름성이 저하되어 성형성 불량률이 야기될 수 있으며, 0.1 poise 미만인 경우 분산성이 저하되어 뭉침으로 인해 수율이 감소될 수 있다.

- [32] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 경화제로서 페놀계 수지를 더 포함할 수 있다. 사용 가능한 페놀계 수지의 비제한적인 예로는 페놀 노불락형 수지, 크레졸 노불락형 수지, 페놀 알킬 수지, 페놀 자일록형 수지, 비스페놀 A로부터 합성된 각종 노불락형 수지 중 선택된 1종 이상을 들 수 있다.

- [33] 상기 페놀계 수지의 히드록시기(OH) 당량은 50 내지 200 g/eq, 예를 들어 80 내지 150 g/eq, 연화점은 50 내지 150°C, 예를 들어 60 내지 100°C, 점도(150 °C 기준)는 0.5 내지 2.5 poise, 예를 들어 1.0 내지 2.0 poise일 수 있다. 상기 페놀계 수지의 히드록시기(OH) 당량, 연화점 및 점도가 전술한 범위를 벗어나는 경우, 에폭시 수지 조성물의 분산성 및 흐름성이 저하될 수 있다.

- [34] 일례로, 상기 에스터계 수지 및 페놀계 수지의 배합비는 1 : 0.1 내지 5, 예를 들어 1 : 0.1 내지 3의 중량비일 수 있다. 상기 에스터계 수지 및 페놀계 수지의 배합비가 전술한 범위를 만족하는 경우, 내식성 및 부착성을 향상시킬 수 있을 뿐만 아니라, 낮은 유전상수 및 유전정점을 확보할 수 있다.

- [35] 상기 경화제는 에폭시 수지 조성물 총 중량을 기준으로 1 내지 20 중량%, 예를 들어 1 내지 10 중량%로 포함될 수 있다. 상기 경화제의 함량이 1 중량% 미만이면 경화성 및 성형성에 문제가 생길 수 있으며, 20 중량%를 초과하면 흡습량 증가로 신뢰성이 저하되고, 상대적으로 강도가 낮아질 수 있다.

[36]

[37] 충진제

- [38] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 충진제를 포함한다. 상기 충진제는 봉지재의 방열성 및 강도를 향상시키고 흡습량을 낮추는 역할을 한다.

- [39] 상기 충진제로는 예를 들어 실리카, 실리카 나이트라이드, 알루미늄, 알루미늄 나이트라이드, 보론 나이트라이드 등의 무기 충진제를 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 사용할 수 있다.

- [40] 일례로, 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 충진제로서 구상 실리카를

포함할 수 있고, 예를 들어, 평균 입경이 5 내지 30 μm 인 구상 실리카를 사용할 수 있다. 상기 구상 실리카가 전술한 평균 입경 분포를 갖는 경우 가공성을 충분히 가짐과 동시에 우수한 방열성을 확보할 수 있다.

- [41] 상기 충전제는 에폭시 수지 조성물 총 중량을 기준으로 70 내지 95 중량%, 예를 들어 80 내지 95 중량%로 포함될 수 있다. 상기 충전제의 함량이 70 중량% 미만이면 흡습량 증가로 강도가 저하되고 밀착성이 떨어질 수 있으며, 충전제의 함량이 95 중량%를 초과하면 점도 증가 및 흐름성 저하로 가공성이 불량해질 수 있다.

[42]

[43] 경화 촉진제

- [44] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 경화 촉진제를 포함할 수 있다. 경화 촉진제는 경화반응 촉진과 더불어 고온 신뢰성 및 연속 작업성의 주기를 향상시키는 역할을 한다.

- [45] 본 발명에서 사용되는 경화 촉진제는 상기 경화제의 경화 반응을 촉진하는 것이라면 특별한 제한 없이 사용될 수 있으며, 일례로 상기 경화 촉진제는 2-메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-페닐이미다졸, (4-메틸-2-페닐-1H-이미다졸-5-일)메탄올 등의 이미다졸 화합물; 트리에틸아민, 트리부틸아민, 벤질디메틸아민 등의 아민 화합물; 2-(디메틸아미노메틸)페놀, 2,4,6-트리스(디메틸아미노메틸)페놀, 1,8-디아자비사이클로(5,4,0)운데크-7-엔 등의 삼급 아민 화합물; 및 페닐포스핀, 디페닐포스핀, 트리페닐포스핀, 트리부틸포스핀, 트리(p-메틸페닐)포스핀 중에서 선택된 1종 이상일 수 있다.

- [46] 상기 경화 촉진제는 에폭시 수지 조성물 총 중량을 기준으로 0.01 내지 5 중량%, 예를 들어 0.01 내지 2 중량%로 포함될 수 있다. 상기 경화 촉진제의 함량이 0.01 중량% 미만이면 경화성이 저하될 수 있으며, 함량이 5 중량%를 초과하면 과경화로 인해 흐름성이 저하될 수 있다.

[47]

[48] 첨가제

- [49] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 필요에 따라 전술한 성분들 이외에 당 분야에 알려진 통상적인 첨가제를 선택적으로 더 포함할 수 있다. 본 발명에서 사용 가능한 첨가제의 비제한적인 예로는 커플링제, 착색제, 소포제, 레벨링제, 접착력 개선제, 난연제, 광 흡수제, 건조제, 흡습제 및 왁스 중 선택된 1종 이상을 들 수 있다.

- [50] 커플링제는 도막의 부착성을 증진시키기 위한 물질로서, 머캅토알킬알콕시실란(mercaptoalkylalkoxysilane), 감마글리독시프로필트리메톡시실란 등의 실란계 화합물을 사용할 수 있다. 착색제로는 당 분야에 공지된 카본블랙, 벵갈라, 유기염료, 무기염료 등의 통상의 착색제를 단독 사용하거나 2종 이상 혼용할 수 있다. 왁스로는 파라핀 왁스, 천연 왁스, 합성 왁스 또는 이들의 혼합물을 사용할 수 있다. 천연 왁스로는

카르나우바 왁스 등을 사용할 수 있고, 합성 왁스로는 폴리에틸렌 왁스 등을 사용할 수 있다.

[51] 상기 첨가제의 함량은 특별히 한정되지 않으며, 에폭시 수지 조성물의 총 중량을 기준으로 0.1 내지 5 중량%일 수 있다.

[52]

[53] 본 발명의 에폭시 수지 조성물을 제조하는 방법은 특별히 제한되지 않으며, 당 분야에 공지된 방법을 사용하여 제조될 수 있다. 일례로, 반바리 믹서, 니더, 롤, 단축 또는 이축의 압출기, 코니더 등을 이용한 용융 혼련 방법을 사용할 수 있다. 예를 들어, 전술한 성분들을 균일하게 섞은 후, 용융 혼합기(heat kneader)를 이용하여 100 내지 130°C의 온도에서 용융 혼합하고, 상온으로 냉각시켜 분말상태로 분쇄한 후 블렌딩하여 제조할 수 있다.

[54]

[55] <반도체 소자>

[56] 본 발명은 상기한 바와 같은 에폭시 수지 조성물을 이용하여 봉지된 반도체 소자를 제공한다. 구체적으로, 본 발명의 조성물을 적용할 수 있는 반도체 장치란 트랜지스터, 다이오드, 저항, 콘덴서 등을 반도체 칩이나 기판 위에 집적하고 배선하여 만들어지는 전자회로(집적회로)를 의미한다.

[57] 본 발명의 에폭시 수지 조성물을 이용하여 반도체 장치를 봉지, 제조하는 방법은 특별히 제한되지 않으며, 트랜스퍼 몰드, 컴프레션 몰드, 인젝션 몰드 등의 성형방법으로 반도체 소자를 봉지하여 제조할 수 있다.

[58]

발명의 실시를 위한 형태

[59] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 보다 구체적으로 설명한다. 그러나, 하기 실시예는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것일 뿐 어떠한 의미로든 본 발명의 범위가 실시예로 한정되는 것은 아니다.

[60]

[실시예 1-6]

[62] 하기 표 1에 기재된 조성에 따라 각 성분을 컨테이너 믹서를 이용하여 배합한 후, 용융 혼합, 냉각, 분쇄, 블렌딩 공정을 거쳐 일정 크기로 타정하여 실시예 1-6의 에폭시 수지 조성물을 각각 제조하였다. 하기 표 1의 사용량 단위는 중량%이다.

[63]

[비교예 1-4]

[65] 하기 표 2에 기재된 조성에 따른 것을 제외하고는, 실시예 1-6과 동일한 방법으로 비교예 1-4의 에폭시 수지 조성물을 각각 제조하였다. 하기 표 2의 사용량 단위는 중량%이다.

[66]

[67] [표 1]

	실시예					
	1	2	3	4	5	6
예폭시 수지	5.91	5.60	5.26	4.60	6.08	6.09
경화제 1-1	1.14	2.06	3.12	5.12	0.63	0.6
경화제 2	2.67	2.06	1.34		3.01	3.03
충진제	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5
커플랑제	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
착색제	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
왁스	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
경화 촉진제	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08
총합	100	100	100	100	100	100

[68]

[69] [표2]

	비교예			
	1	2	3	4
에폭시 수지	6.29	4.96	5.6	5.91
경화제 1-2		2.26		1.14
경화제 1-3		2.26	2.06	
경화제 2	3.43	0.24	2.06	2.67
충진제	89.5	89.5	89.5	89.5
커플링제	0.4	0.4	0.4	0.4
착색제	0.2	0.2	0.2	0.2
왁스	0.1	0.1	0.1	0.1
경화 촉진제	0.08	0.08	0.08	0.08
총합	100	100	100	100

[70]

[71] 에폭시 수지:

4,4-비스(2,3-에폭시프로폭시)-3,3,5,5-테트라메틸(1,1-바이페닐)(YK-4000HK, MITSUBISHI CHEMICAL社, 에폭시 당량: 192 g/eq, 연화점: 109 °C, 점도(150 °C 기준): 0.2 poise)

[72] 경화제 1-1: 에스터계 수지(OH 당량: 209 g/eq, 연화점: 78 °C, 점도(150 °C 기준): 0.6 poise)

[73] 경화제 1-2: 에스터계 수지(OH 당량: 185 g/eq, 연화점: 135 °C, 점도(150 °C 기준): 1.8 poise)

[74] 경화제 1-3: 에스터계 수지(OH 당량: 169 g/eq, 연화점: 152 °C, 점도(150 °C 기준): 1.6 poise)

[75] 경화제 2: 페놀계 수지(Phenol polymer with hydroxybenzaldehyde, MEH-7500-3S, Meiwa Kasei社, OH 당량: 103 g/eq, 연화점: 83 °C, 점도(150 °C 기준): 1.4 poise)

[76] 충진제: 구상 실리카(평균 입경 15 μm)

[77] 커플링제: 2-(3,4-에폭시사이클로헥실)에틸트리메톡시실란(KBM-403,

ShinEtsu社, 비중(25 °C): 1.070, 인화점: 135 °C, 굴절률(25 °C): 1.429,
끓는점(°C/mmHg): 120/2)

[78] 착색제: 카본 블랙(MA-600, MITSUBISHI CHEMICAL社, 최대 입경(cut size): 20 nm)

[79] 왁스: 폴리에틸렌 왁스(Wax E, Clariant社, Drop Point: 84 °C, 산가: 2 내지 7 mgKOH/g)

[80] 경화 촉진제: (4-메틸-2-페닐-1H-이미다졸-5-일)메탄올(2P4MHZ-PW, Shikoku社, 녹는점: 240 °C, 분자량: 152 g/mol)

[81]

[82] **[실험예 - 물성 평가]**

[83] 실시예 1-6 및 비교예 1-4에서 각각 제조된 에폭시 수지 조성물의 물성을 하기와 같이 측정하였으며, 이의 결과를 하기 표 3 및 표 4에 나타내었다.

[84] 시편 제조

[85] 실시예 1-6 및 비교예 1-4에 따라 제조된 에폭시 수지 조성물을 가열 이송 성형기를 이용하여 175°C에서 70초간 트랜스퍼 몰딩으로 성형시켜 지름 33 mmX높이 2.5 mm 패키지를 제작한 다음, 이를 175°C에서 4시간 동안 후경화(PMC: post mold cure)시킨 후 상온으로 냉각하였다.

[86] 유전상수(Dk) 및 유전정접(Df)

[87] 유전특성 측정기(Impedance Analyzer, Novocontrol社)로 1Hz, 1.5V 조건으로 30°C에서 평가하였다.

[88] 흡습율

[89] PCT 조건(121°C, 2기압, 100%RH)에서 24시간 방치 전후의 시편 무게를 비교하여 흡습율을 평가하였다.

[90] Spiral flow

[91] EMMI-I-66 규격의 유동성(Spiral Flow) 몰드를 이용하여 가열이송성형기(압력=70kg/cm², 온도=175°C, 경화시간=120초)로 측정하였다.

[92] Gel time

[93] 실시예 1-6 및 비교예 1-4에 따라 제조된 에폭시 수지 조성물 소량을 겔 타이머에 넣고 고르게 펴, 제조물의 겔화 소요시간을 측정하였다.

[94] 열팽창계수(α_1 , α_2)

[95] 시편 제작 몰드(가로=60mm, 세로=10mm, 두께=3mm)를 이용하여 가열이송성형기(압력=70kg/cm², 온도=175°C, 경화시간=120초)에서 몰딩한 후, 175°C의 오븐에서 4시간동안 후경화시킨 다음, 시편을 절단(가로=10mm, 세로=10mm, 두께=3mm)하여 TMA(ThermoMechanical Analyser)로 측정하였다.

[96] 유리전이온도

[97] 시편 제작 몰드(가로=60mm, 세로=10mm, 두께=3mm)를 이용하여 가열이송성형기(압력=70kg/cm², 온도=175°C, 경화시간=120초)에서 몰딩한 후, 175°C의 오븐에서 4시간동안 후경화시킨 다음, 시편을 절단(가로=10mm,

세로=10mm, 두께=3mm)하여 TMA(ThermoMechanical Analyser)로 측정하였다.

[98] Flexural Modulus

[99] 시편 제작 몰드(가로=125mm, 세로=12.5mm, 두께=6mm)를 이용하여 가열이송성형기(압력=70kg/cm², 온도=175°C, 경화시간=120초)에서 몰딩한 후, 175°C의 오븐에서 4시간동안 후경화시킨 다음, UTM(Universal Testing Machine)으로 측정하였다.

[100] Mold Shrinkage

[101] 시편 제작 몰드(가로=125mm, 세로=12.5mm, 두께=6mm)를 이용하여 가열이송성형기(압력=70kg/cm², 온도=175°C, 경화시간=120초)에서 몰딩한 후, 175°C의 오븐에서 4시간동안 후경화시킨 다음, 버니어 캘리퍼스(Vernier Calipers)를 이용하여 수축된 시편의 길이를 측정하였다.

[102] Hot Hardness

[103] Spiral flow 몰드 직후 금형 상부 경화물 표면에서 Shore-D type 경도계를 이용하여 측정하였다.

[104]

[105] [표3]

	실시예					
	1	2	3	4	5	6
유전상수(Dk)	4.4	4.5	4.3	4.1	4.7	4.7
유전정접(Df)	0.06	0.02	0.01	0.01	0.1	0.13
흡습율(%)	0.31	0.3	0.27	0.25	0.33	0.36
Spiral flow(inch)	45	49	52	79	43	43
Gel time(sec)	70	78	81	154	65	63
열팽창계수(α_1)	7.8	8.2	8	8.4	7.6	7.5
열팽창계수(α_2)	35	37	38	40	34	34
Tg(°C)	161	131	126	124	163	165
Flexural Modulus (kgf/mm ²)	2,260	2,460	2,540	2,710	2,220	2,220
Mold Shrinkage(%)	0.03	0.05	0.07	0.08	0.03	0.03
Hot Hardness	80	68	67	50	80	80

[106]

[107] [표4]

	비교예			
	1	2	3	4
유전상수(Dk)	4.9	4.9	4.8	5.1
유전정접(Df)	0.16	0.04	0.03	0.19
흡습율(%)	0.45	0.32	0.4	0.4
Spiral flow(inch)	40	48	50	47
Gel time(sec)	60	75	80	73
열팽창계수(α_1)	7.3	8.6	8.4	7.9
열팽창계수(α_2)	32	38	39	36
Tg(°C)	170	119	120	155
Flexural Modulus (kgf/mm ²)	2,200	2,850	2,800	2,300
Mold Shrinkage(%)	0.02	0.12	0.11	0.04
Hot Hardness	82	65	60	70

[108]

[109] 상기 표 3 및 표 4에 나타난 바와 같이, 본 발명에 따른 실시예 1-6의 에폭시 수지 조성물은 측정된 모든 물성에서 우수한 효과를 나타냄을 확인할 수 있었다. 특히 실시예 1-6의 에폭시 수지 조성물은 본 발명에 따른 에스터계 수지를 사용하지 않은 비교예 1-4의 에폭시 수지 조성물에 비해 낮은 유전상수 및 유전정접을 가질 뿐만 아니라, 흡습율을 최소화 할 수 있음을 확인할 수 있었다.

[110]

산업상 이용가능성

[111] 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 낮은 유전상수 및 유전정접을

확보함으로써, 반도체 소자에 적용될 경우 고주파 신호 전달 시 전송 손실을 최소화함과 동시에 빠른 정보 전달을 가능하게 한다. 또한 본 발명에 따른 에폭시 수지 조성물은 낮은 흡습율을 가짐으로써 반도체 내부 회로를 효과적으로 보호할 수 있다.

청구범위

- [청구항 1] 에폭시 수지, 경화제 및 충전제를 포함하고,
상기 경화제는 에스터계 수지를 포함하고,
상기 에스터계 수지의 히드록시기(OH) 당량은 50 내지 400 g/eq이고,
연화점은 25 내지 130 °C인 에폭시 수지 조성물.
- [청구항 2] 제1항에 있어서, 상기 경화제는 페놀계 수지를 더 포함하는 에폭시 수지 조성물.
- [청구항 3] 제2항에 있어서, 상기 에스터계 수지 및 페놀계 수지의 배합비는 1 : 0.1 내지 5 중량비인 에폭시 수지 조성물.
- [청구항 4] 제1항에 있어서, 상기 에폭시 수지 조성물 총 중량을 기준으로, 에폭시 수지 1 내지 20 중량%, 경화제 1 내지 20 중량% 및 충전제 70 내지 95 중량%를 포함하는 에폭시 수지 조성물.
- [청구항 5] 제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 따른 에폭시 수지 조성물을 이용하여 봉지된 것을 특징으로 하는 반도체 소자.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2019/016955**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER***C08G 59/42(2006.01)i, C08G 59/62(2006.01)i, H01L 23/29(2006.01)i*

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)

C08G 59/42; B32B 27/18; B32B 27/20; B32B 27/26; B32B 37/06; C08G 59/20; C08G 59/40; C08G 59/50; C08G 59/62; H01L 23/29

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean utility models and applications for utility models: IPC as above

Japanese utility models and applications for utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: epoxy, curing agent, filler, ester, semiconductor sealing

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 08-143642 A (YUKA SHELL EPOXY KK.) 04 June 1996 See paragraphs [0015], [0044], [0049], [0055], [0057], claim 1, curing agent example 1 and example 1.	1-5
X	JP 08-120057 A (YUKA SHELL EPOXY KK.) 14 May 1996 See paragraphs [0025], [0032]-[0042], claim 1, manufacturing example 2 and example 3.	1-5
A	KR 10-2012-0121912 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 06 November 2012 See paragraphs [0031]-[0055], [0104], [0147]-[0148] and example 5.	1-5
A	JP 2013-075440 A (SEKISUI CHEM CO., LTD.) 25 April 2013 See paragraphs [0093], [0157], [0172], claims 7-10 and example 4.	1-5
A	JP 08-283387 A (YUKA SHELL EPOXY KK.) 29 October 1996 See paragraph [0012] and claims 1, 4.	1-5



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

18 MARCH 2020 (18.03.2020)

Date of mailing of the international search report

18 MARCH 2020 (18.03.2020)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex Daejeon Building 4, 189, Cheongsu-ro, Seo-gu,
Daejeon, 35208, Republic of Korea

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2019/016955

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 08-143642 A	04/06/1996	JP 3369323 B2	20/01/2003
JP 08-120057 A	14/05/1996	JP 3650637 B2	25/05/2005
KR 10-2012-0121912 A	06/11/2012	CN 102822272 A	12/12/2012
		JP 4938910 B1	02/03/2012
		KR 10-1298368 B1	20/08/2013
		US 2013-0108861 A1	02/05/2013
		US 9120293 B2	01/09/2015
		WO 2012-131971 A1	04/10/2012
JP 2013-075440 A	25/04/2013	None	
JP 08-283387 A	29/10/1996	JP 3481347 B2	22/12/2003

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C08G 59/42(2006.01)i, C08G 59/62(2006.01)i, H01L 23/29(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C08G 59/42; B32B 27/18; B32B 27/20; B32B 27/26; B32B 37/06; C08G 59/20; C08G 59/40; C08G 59/50; C08G 59/62; H01L 23/29

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 에폭시(epoxy), 경화제(curing agent), 충전제(filler), 에스터(ester), 반도체 봉지(semiconductor sealing)

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 08-143642 A (YUKA SHELL EPOXY KK) 1996.06.04 단락 [0015], [0044], [0049], [0055], [0057], 청구항 1, 경화제에 1 및 실시예 1 참조.	1-5
X	JP 08-120057 A (YUKA SHELL EPOXY KK) 1996.05.14 단락 [0025], [0032]-[0042], 청구항 1, 제조예 2 및 실시예 3 참조.	1-5
A	KR 10-2012-0121912 A (세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤) 2012.11.06 단락 [0031]-[0055], [0104], [0147]-[0148] 및 실시예 5 참조.	1-5
A	JP 2013-075440 A (SEKISUI CHEM CO., LTD.) 2013.04.25 단락 [0093], [0157], [0172], 청구항 7-10 및 실시예 4 참조.	1-5
A	JP 08-283387 A (YUKA SHELL EPOXY KK) 1996.10.29 단락 [0012] 및 청구항 1, 4 참조.	1-5

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“D” 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후 “X”에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일

2020년 03월 18일 (18.03.2020)

국제조사보고서 발송일

2020년 03월 18일 (18.03.2020)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소

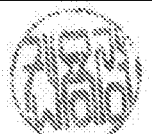
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

권용경

전화번호 +82-42-481-3371



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 08-143642 A	1996/06/04	JP 3369323 B2	2003/01/20
JP 08-120057 A	1996/05/14	JP 3650637 B2	2005/05/25
KR 10-2012-0121912 A	2012/11/06	CN 102822272 A	2012/12/12
		JP 4938910 B1	2012/03/02
		KR 10-1298368 B1	2013/08/20
		US 2013-0108861 A1	2013/05/02
		US 9120293 B2	2015/09/01
		WO 2012-131971 A1	2012/10/04
JP 2013-075440 A	2013/04/25	없음	
JP 08-283387 A	1996/10/29	JP 3481347 B2	2003/12/22