



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 202313840 A

(43) 公開日：中華民國 112 (2023) 年 04 月 01 日

(21) 申請案號：111133139

(22) 申請日：中華民國 111 (2022) 年 09 月 01 日

(51) Int. Cl. :

*C08L63/00 (2006.01)**C08G59/62 (2006.01)**C08K5/13 (2006.01)**C08K7/00 (2006.01)**H01L23/29 (2006.01)*

(30) 優先權：2021/09/02 日本

2021-143465

(71) 申請人：日商昭和電工材料股份有限公司 (日本) SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.

(JP)

日本

(72) 發明人：平井友貴 HIRAI, TOMOKI (JP)

(74) 代理人：卓俊傑；鮑亞嵐；卓孟儀

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：7 項 圖式數：0 共 48 頁

(54) 名稱

壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置

(57) 摘要

一種壓縮成形用環氧樹脂組成物，包含：環氧樹脂，含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者；硬化劑；及無機填充材，無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

An epoxy resin composition for compression molding includes an epoxy resin including at least one of a polycyclic structure or two or more kinds of cyclic structures, a curing agent and an inorganic filler, a content of the inorganic filler is 87.0% by mass or more with respect to a total amount of the epoxy resin composition for compression molding, and a maximum particle size of the epoxy resin composition for compression molding is 2.0 mm or less.

【發明摘要】

【中文發明名稱】 壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置

【英文發明名稱】 EPOXY RESIN COMPOSITION FOR
COMPRESSION MOLDING, AND ELECTRONIC COMPONENT
APPARATUS

【中文】

一種壓縮成形用環氧樹脂組成物，包含：環氧樹脂，含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者；硬化劑；及無機填充材，無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為87.0質量%以上，壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為2.0 mm以下。

【英文】

An epoxy resin composition for compression molding includes an epoxy resin including at least one of a polycyclic structure or two or more kinds of cyclic structures, a curing agent and an inorganic filler, a content of the inorganic filler is 87.0% by mass or more with respect to a total amount of the epoxy resin composition for compression molding, and a maximum particle size of the epoxy resin composition for compression molding is 2.0 mm or less.

【指定代表圖】 無。

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置

【英文發明名稱】 EPOXY RESIN COMPOSITION FOR
COMPRESSION MOLDING, AND ELECTRONIC COMPONENT
APPARATUS

【技術領域】

【0001】 本揭示是有關於一種壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置。

【先前技術】

【0002】 自先前以來，於電晶體、積體電路（Integrated Circuit，IC）等電子零件密封的領域中廣泛使用環氧樹脂組成物。作為其理由，原因在於：環氧樹脂取得了電特性、耐濕性、耐熱性、機械特性、與嵌入品的接著性等的平衡。

【0003】 作為使用環氧樹脂組成物將電子零件密封的方法，最通常的是轉注成形。另一方面，於轉注成形中，藉由加壓使熔融的環氧樹脂組成物於模具內流動，因此有時藉由所述流動而產生導線偏移。相對於此，研究了環氧樹脂組成物的高流動化的方法，但導線偏移的抑制仍存在課題。作為代替轉注成形的成形方法，已知有壓縮成形（壓縮成形）。於壓縮成形中，於模具的型腔內加入環氧樹脂組成物使其熔融，關閉模具並加壓，藉此將元件密封。根據壓縮成形，基本上不會引起環氧樹脂組成物的流動，因此可

抑制導線偏移的產生。

【0004】 作為用於藉由壓縮成形而將半導體元件密封的環氧樹脂組成物，例如專利文獻 1 中提出了一種粒子狀的環氧樹脂組成物，其特徵在於含有環氧樹脂、硬化劑、硬化促進劑、無機填充材、熔點為 70°C 以下的脂肪酸及沸點為 200°C 以上的矽烷偶合劑，粒子徑分佈於 100 μm ~ 3 mm 的範圍內佔 85 質量%以上。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1]日本專利特開 2011-153173 號公報

【發明內容】

【0006】 [發明所欲解決之課題]

且說，對如下情況進行了研究：於將環氧樹脂組成物用作半導體封裝等電子零件裝置的密封材時，為了實現低成本化、小型化等，而將散熱片等構件除去。但是，於局部不使用散熱片等構件的情況下，電子零件裝置中容易產生翹曲。因此，理想的是可抑制電子零件裝置的翹曲的環氧樹脂組成物。

【0007】 例如，藉由使環氧樹脂組成物中的無機填充材的含量增加，可抑制電子零件裝置的翹曲。但是，於使無機填充材的含量增加的情況下，會容易產生導線偏移，難以兼顧翹曲的抑制與導線偏移的抑制。

【0008】 本揭示是鑒於所述情況而成，其目的在於提供一種可實現電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制的壓縮成形用

環氧樹脂組成物、以及包括由該組成物密封的元件的電子零件裝置。

[解決課題之手段]

【0009】 用以達成所述課題的具體手段為如以下所述。

<1> 一種壓縮成形用環氧樹脂組成物，包含：

環氧樹脂，含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者；

硬化劑；及

無機填充材，

無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，

壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

<2> 如<1>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂包含選自由萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種環氧樹脂。

<3> 如<1>或<2>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂的環氧當量為 200 g/eq~1000 g/eq。

<4> 如<1>至<3>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述無機填充材包含氧化鋁。

<5> 如<4>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述氧化鋁相對於無機填充材整體的含有率為 40 質量%~80 質量%。

<6> 如<1>至<5>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述包含多環結構及兩種以上的環結構的至少一者

的環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率為 5 質量%~50 質量%。

<7> 一種電子零件裝置，包括：元件；以及將所述元件密封的如<1>至<6>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物的硬化物。

[發明的效果]

【0010】 藉由本揭示，可提供一種能實現電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制的壓縮成形用環氧樹脂組成物、以及包括由該組成物密封的元件的電子零件裝置。

【實施方式】

【0011】 以下，對用以實施本發明的形態進行詳細說明。但是，本發明並不限定於以下的實施形態。於以下的實施形態中，其構成要素（亦包括要素步驟等）除了特別明示的情況，並非必須。關於數值及其範圍亦同樣如此，並不限制本發明。

於本揭示中，「步驟」的用語中，除了與其他步驟獨立的步驟以外，即便於無法與其他步驟明確區別的情況下，只要達成該步驟的目的，則亦包含該步驟。

於本揭示中，使用「~」所表示的數值範圍中包含「~」的前後所記載的數值分別作為最小值及最大值。

於本揭示中階段性記載的數值範圍中，在一個數值範圍中所記載的上限值或下限值亦可置換為其他階段性記載的數值範圍的上限值或下限值。另外，於本揭示中所記載的數值範圍中，該數值範圍的上限值或下限值亦可置換為實施例中所示的值。

於本揭示中，各成分亦可包含多種相符的物質。於在組成物中存在多種相當於各成分的物質的情況下，只要無特別說明，則各成分的含有率或含量是指組成物中所存在的該多種物質的合計含有率或含量。

於本揭示中，亦可包含多種相當於各成分的粒子。於在組成物中存在多種相當於各成分的粒子的情況下，只要無特別說明，則各成分的粒子徑是指關於組成物中所存在的該多種粒子的混合物的值。

【0012】 <壓縮成形用環氧樹脂組成物>

本揭示的壓縮成形用環氧樹脂組成物（以下，亦稱為「環氧樹脂組成物」）包含含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者的環氧樹脂（以下，亦稱為「特定環氧樹脂」、硬化劑及無機填充材，無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

【0013】 藉由將本揭示的環氧樹脂組成物用於密封元件，可實現將元件密封而成的電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制。其理由例如可推測如下。本揭示並不限定於以下的推測。

【0014】 本揭示的環氧樹脂組成物包含特定環氧樹脂，且無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上。特定環氧樹脂中所含的多環結構及兩種以上的環結構之類的剛性骨架於使環氧樹脂組成物硬化所得的硬化物中有助於低

熱膨脹化及低收縮化。藉由無機填充材的含有率為規定量以上，從而有助於硬化物的低熱膨脹化及低收縮化。藉此，推測可適宜地抑制電子零件裝置中的翹曲。另一方面，因環氧樹脂組成物包含特定環氧樹脂且無機填充材的含有率為規定量以上而容易產生導線偏移。

【0015】 然而，藉由環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下，對環氧樹脂組成物進行加熱時的熔解性提高。藉此，推測可抑制所述導線偏移的產生。

【0016】 如以上所述般將本揭示的環氧樹脂組成物用於密封元件，藉此可抑制將元件密封而成的電子零件裝置中的翹曲。即便於為了實現低成本化、小型化等而將散熱片等構件除去的情況下，亦可適宜地抑制電子零件裝置的翹曲。

【0017】 就更適宜地抑制導線偏移的產生的觀點而言，環氧樹脂組成物的最大粒徑較佳為 1.4 mm 以下，更佳為 1.0 mm 以下。另外，環氧樹脂組成物的最大粒徑可為 0.5 mm 以上。

【0018】 以下，對本揭示的環氧樹脂組成物中可包含的成分進行詳細說明。

【0019】 [特定環氧樹脂]

本揭示的環氧樹脂組成物包含含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者的環氧樹脂（特定環氧樹脂）。特定環氧樹脂較佳為於一分子中具有兩個以上的環氧基者。

【0020】 於本揭示中，所謂多環結構，是指多環結構內的至少兩

個環結構共用一個以上的原子的環結構。例如，多環結構可為稠環，亦可為如二環戊二烯型結構般的交聯稠環。

於本揭示中，所謂兩種以上的環結構，是指選自單環（例如，一個脂肪族環、一個芳香環或一個雜環）及兩個以上的環利用單鍵進行鍵結而成的環集合（例如，聯苯基）中的兩種以上的結構。兩種以上的環結構可為兩種以上的單環，亦可為兩種以上的環集合，亦可為苯環等單環與聯苯基等環集合的組合。

再者，於環氧樹脂僅包含一種聯苯基等環集合的情況下，不與特定環氧樹脂相符。

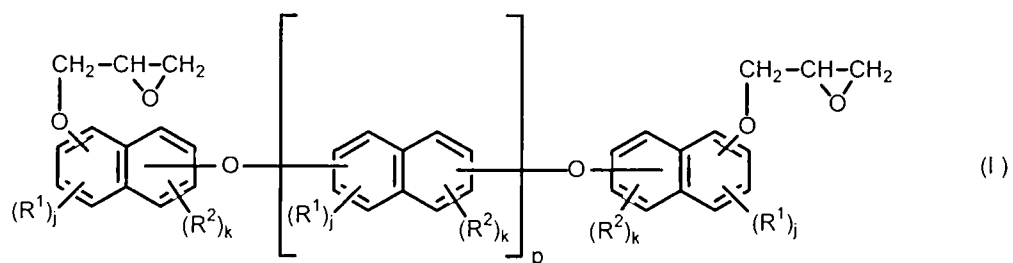
【0021】 就更適宜地抑制電子零件裝置的翹曲的觀點而言，特定環氧樹脂較佳為包含選自由萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種環氧樹脂。特定環氧樹脂更佳為選自由萘型環氧樹脂及二環戊二烯型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種。

【0022】 作為萘型環氧樹脂，只要為具有環氧基及萘環結構的樹脂，則並無特別限定。例如可為於一個萘環上鍵結兩個縮水甘油醚基的環氧樹脂（例如，1,6-雙(縮水甘油氧基)萘），亦可為多個萘環藉由連結基（醚基、亞甲基等）而鍵結且於至少兩個萘環上分別鍵結一個縮水甘油醚基的環氧樹脂，亦可為萘環及苯環藉由連結基（醚基、亞甲基等）而交替或無規地鍵結且於至少兩個萘環上分別鍵結一個以上的縮水甘油醚基的環氧樹脂。

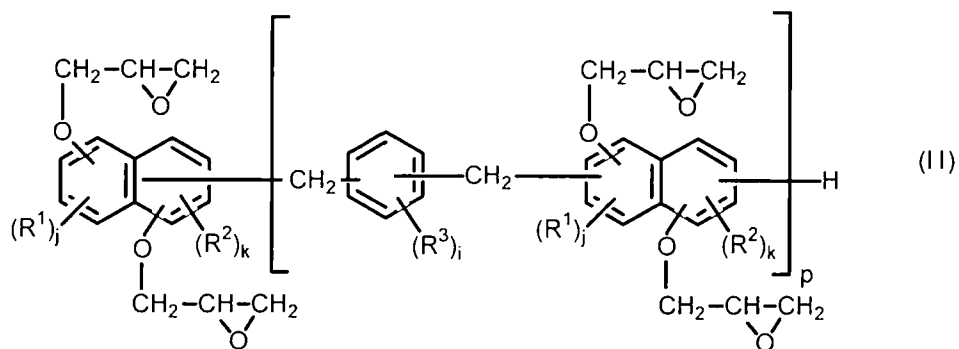
【0023】 作為萘型環氧樹脂，例如可列舉下述通式（I）～下述

通式 (III) 所表示的環氧樹脂等。

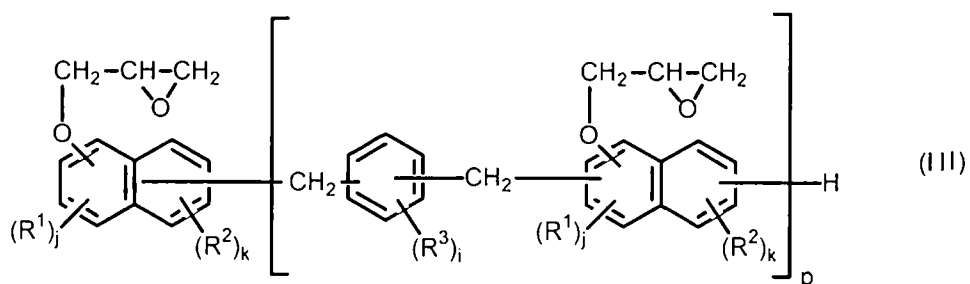
【0024】 [化 1]



【0025】 [化 2]



【0026】 [化 3]



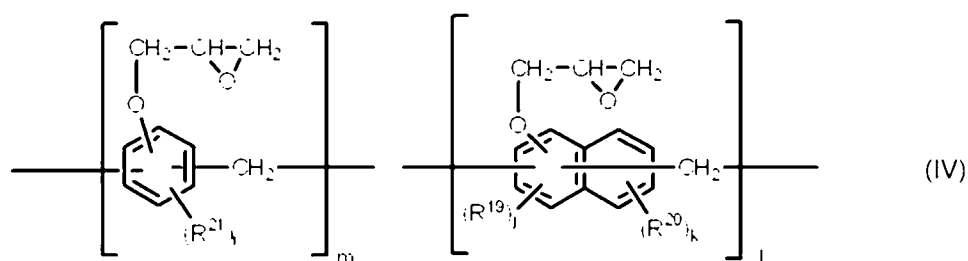
【0027】 通式 (I) ~ 通式 (III) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地表示經取代或未經取代的碳數 1~12 的一價烴基。 p 為平均值， p 分別獨立地表示 1~10 的數。 i 分別獨立地表示 0~4 的整數， j 分別獨立地表示 0~2 的整數， k 分別獨立地表示 0~2 的整數。

作為 $R^1 \sim R^3$ 中的經取代或未經取代的碳數 1~12 的一價烴基，可列舉烷基等。

於通式 (I) 或通式 (III) 中，與萘環鍵結的縮水甘油氧基只要分別獨立地鍵結於構成萘環的兩個苯環的任一者上即可。

【0028】 萘型環氧樹脂可為使由萘酚化合物及苯酚化合物與醛化合物獲得的酚醛清漆樹脂進行環氧化而得的共聚合型環氧樹脂，例如亦可為使利用具有萘酚骨架的化合物及具有苯酚骨架的化合物的酚醛清漆型酚樹脂進行縮水甘油醚化而獲得的環氧樹脂。作為此種共聚合型環氧樹脂，例如可列舉以下的通式 (IV) 所表示的環氧樹脂。

【0029】 [化 4]

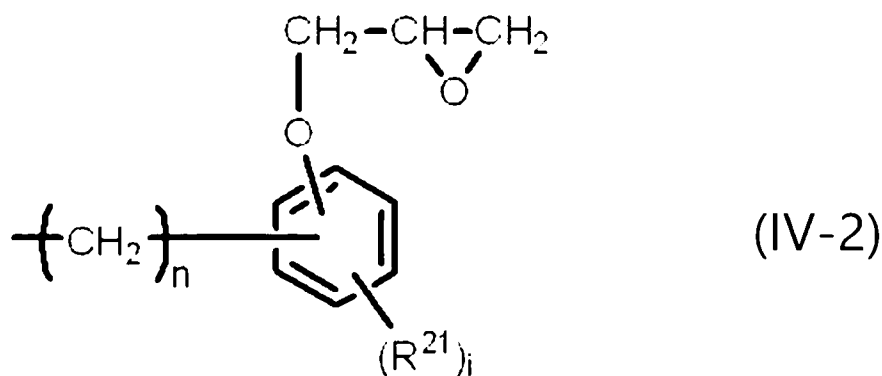
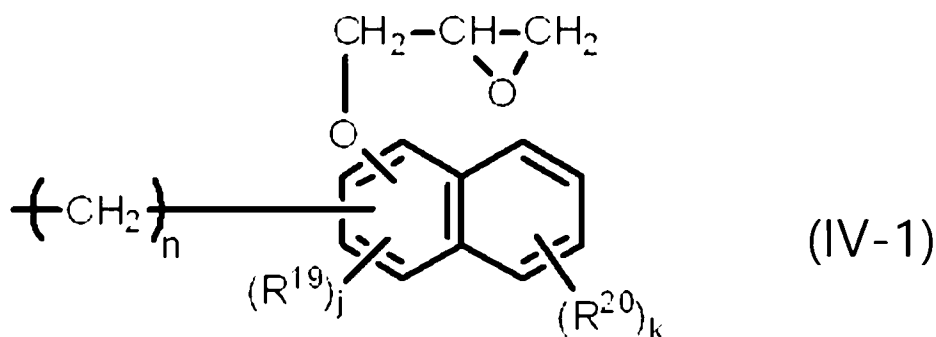


【0030】 通式 (IV) 中， $R^{19} \sim R^{21}$ 分別獨立地表示碳數 1~18 的

一價有機基。i 分別獨立地表示 0~3 的整數，j 分別獨立地表示 0~2 的整數，k 分別獨立地表示 0~4 的整數。l 及 m 分別為平均值，且為 1~10 的數，(l+m) 表示 2~20 的數。通式 (IV) 所表示的環氧樹脂的末端為下述式 (IV-1) 或式 (IV-2) 的任一者。於式 (IV-1) 及式 (IV-2) 中， $R^{19} \sim R^{21}$ 中的 i、j 及 k 的定義與式 (IV) 中的 $R^{19} \sim R^{21}$ 中的 i、j 及 k 的定義相同。n 為 1 (經由亞甲基而鍵結的情況) 或 0 (不經由亞甲基而鍵結的情況)。

通式 (IV) 所表示的環氧樹脂中，較佳為 R^{21} 為甲基、i 為 1、j 為 0、k 為 0 的環氧樹脂。

【0031】 [化 5]

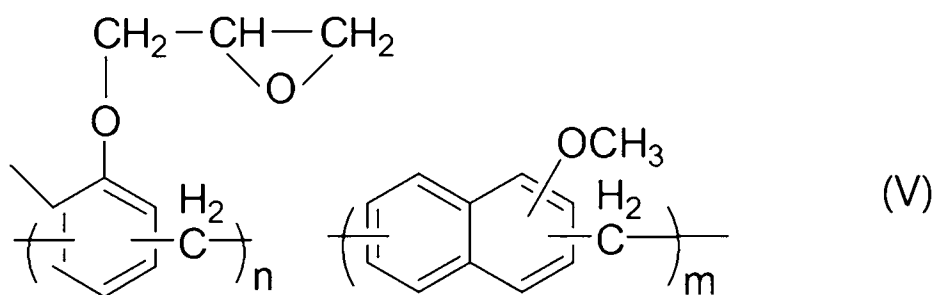


【0032】 作為所述通式 (IV) 所表示的環氧樹脂，可列舉：無規

地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的無規共聚物、交替地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的交替共聚物、規則地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的共聚物、以嵌段狀包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的嵌段共聚物等。可單獨使用該些的任一種，亦可將兩種以上組合而使用。

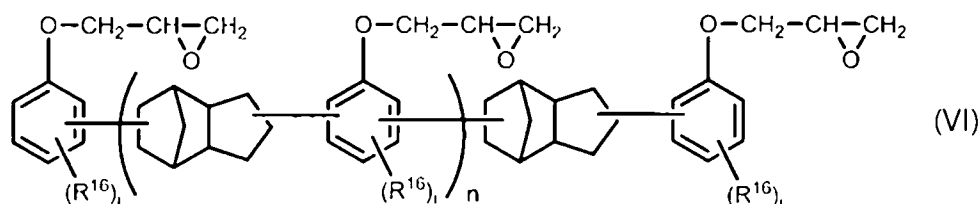
【0033】 作為共聚合型環氧樹脂，可為以無規、交替或嵌段的順序包含下述兩種結構單元的、下述通式 (V) 所表示的甲氧基萘-甲酚甲醛共縮合型環氧樹脂。下述通式 (IV) 中， n 及 m 分別為平均值，且為 1~10 的數， $(n+m)$ 表示 2~10 的數，較佳為 n 及 m 分別為平均值，且為 1~9 的數， $(n+m)$ 表示 2~10 的數。

【0034】 [化 6]



【0035】 二環戊二烯型環氧樹脂只要為將具有二環戊二烯骨架的化合物作為原料來進行環氧化而獲得的環氧樹脂，則並無特別限定。例如較佳為下述通式 (VI) 所表示的環氧樹脂。

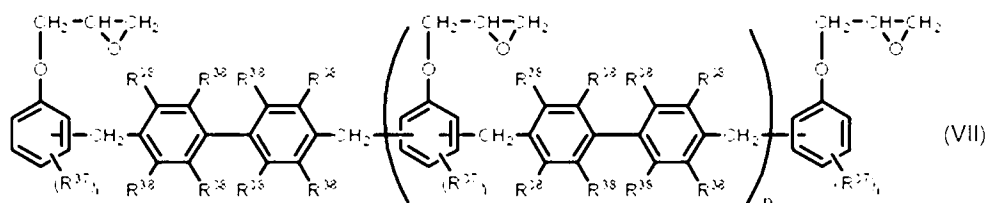
【0036】 [化 7]



【0037】 通式 (VI) 中， R^{16} 分別獨立地表示碳數 1~18 的一價有機基。 i 分別獨立地表示 0~3 的整數。 n 為平均值，且表示 0~10 的數。

【0038】 作為聯苯芳烷基型環氧樹脂，例如可列舉將苯酚、甲酚等酚化合物與由雙(甲氧基甲基)聯苯或其衍生物合成的酚樹脂作為原料的環氧樹脂。作為此種環氧樹脂，例如較佳為通式 (VII) 所表示的環氧樹脂。

【0039】 [化 8]



【0040】 通式 (VII) 中， R^{38} 分別獨立地表示氫原子或碳數 1~18 的一價有機基。 R^{37} 分別獨立地表示碳數 1~18 的一價有機基。 1 分別獨立地表示 0~3 的整數。 n 為平均值，且為 0~10 的數。

下述通式 (VII) 所表示的環氧樹脂中，較佳為 1 為 0、 R^{38} 為氫原子的環氧樹脂。

【0041】 萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂的合計含有率相對於特定環氧樹脂的整體而較佳為 50 質量%～100 質量%，更佳為 70 質量%～100 質量%，進而佳為 90 質量%～100 質量%。

【0042】 就適宜地減低電子零件裝置的翹曲的觀點而言，特定環氧樹脂的環氧當量較佳為 200 g/eq～1000 g/eq，更佳為 200 g/eq～500 g/eq。特定環氧樹脂的環氧當量設為利用依據日本工業標準（Japanese Industrial Standards, JIS）K 7236：2009 的方法而測定的值。

【0043】 本揭示的環氧樹脂組成物亦可包含所述特定環氧樹脂以外的環氧樹脂（以下，亦稱為「其他環氧樹脂」），亦可不包含。

【0044】 作為其他環氧樹脂，具體而言，可列舉：使苯酚、甲酚、二甲酚、間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F 等酚化合物與甲醛、乙醛、丙醛等脂肪族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得酚醛清漆樹脂，並使該酚醛清漆樹脂進行環氧化而獲得的酚醛清漆型環氧樹脂（苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、鄰甲酚酚醛清漆型環氧樹脂等）；使所述酚性化合物與苯甲醛、水楊醛等芳香族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得三苯基甲烷型酚樹脂，並使該三苯基甲烷型酚樹脂進行環氧化而獲得的三苯基甲烷型環氧樹脂；作為雙酚 A、雙酚 F 等的二縮水甘油醚的二苯基甲烷型環氧樹脂；作為經烷基取代或未經取代的聯苯酚的二縮水甘油醚的聯苯型環氧樹脂；作為二苯乙烯（stilbene）系酚化合物的二縮

水甘油醚的二苯乙烯型環氧樹脂；作為雙酚 S 等的二縮水甘油醚的含硫原子的環氧樹脂；作為丁二醇、聚乙二醇、聚丙二醇等醇類的縮水甘油醚的環氧樹脂；作為鄰苯二甲酸、間苯二甲酸、四氫鄰苯二甲酸等多元羧酸化合物的縮水甘油酯的縮水甘油酯型環氧樹脂；將苯胺、二胺基二苯基甲烷、異三聚氰酸等的鍵結於氮原子的活性氫以縮水甘油基取代而獲得的縮水甘油胺型環氧樹脂；使分子內的烯烴鍵進行環氧化而獲得的二環氧化乙炔基環己烯、3,4-環氧環己基甲基-3,4-環氧環己烷羧酸酯等脂環型環氧樹脂；作為對二甲苯改質酚樹脂的縮水甘油醚的對二甲苯改質環氧樹脂；作為間二甲苯改質酚樹脂的縮水甘油醚的間二甲苯改質環氧樹脂；作為萘烯改質酚樹脂的縮水甘油醚的萘烯改質環氧樹脂；作為環戊二烯改質酚樹脂的縮水甘油醚的環戊二烯改質環氧樹脂；鹵化苯酚酚醛清漆型環氧樹脂；對苯二酚型環氧樹脂；三羥甲基丙烷型環氧樹脂；利用過乙酸等過酸將烯烴鍵氧化而獲得的線狀脂肪族環氧樹脂；苯酚芳烷基樹脂等芳烷基型環氧樹脂等。進而，亦可列舉矽酮樹脂的環氧化物、丙烯酸樹脂的環氧化物等作為環氧樹脂。該些其他環氧樹脂可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0045】 其他環氧樹脂可包含聯苯型環氧樹脂及含硫原子的環氧樹脂的至少一者，亦可包含聯苯型環氧樹脂及含硫原子的環氧樹脂兩者。

【0046】 其他環氧樹脂的環氧當量並無特別限制。就成形性、耐

回焊性及電可靠性等各種特性平衡的觀點而言，其他環氧樹脂的官能基當量較佳為 100 g/eq~1000 g/eq，更佳為 150 g/eq~500 g/eq。環氧樹脂的環氧當量設為利用依據 JIS K 7236：2009 的方法而測定的值。

【0047】 於特定環氧樹脂或其他環氧樹脂為固體的情況下，特定環氧樹脂或其他環氧樹脂的軟化點或熔點並無特別限制。就成形性與耐回焊性的觀點而言，較佳為 40°C~180°C，就環氧樹脂組成物的製備時的操作性的觀點而言，更佳為 50°C~130°C。特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的熔點設為利用示差掃描熱量測定（differential scanning calorimetry，DSC）而測定的值。特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的軟化點設為利用依據 JIS K 7234：1986 的方法（環球法）而測定的值。

【0048】 特定環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率較佳為 5 質量%~50 質量%，更佳為 10 質量%~40 質量%，進而佳為 15 質量%~30 質量%。

【0049】 於環氧樹脂包含其他環氧樹脂的情況下，其他環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 50 質量%~95 質量%，亦可為 60 質量%~90 質量%，亦可為 70 質量%~85 質量%。

【0050】 於其他環氧樹脂包含聯苯型環氧樹脂的情況下，聯苯型環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 45 質量%~80 質量%，亦可為 50 質量%~75 質量%，亦可為 55 質量%~65 質量%。

【0051】 於其他環氧樹脂包含含硫原子的環氧樹脂的情況下，含

硫原子的環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 5 質量%～30 質量%，亦可為 10 質量%～25 質量%，亦可為 15 質量%～20 質量%。

【0052】 就強度、黏度、耐熱性、成形性等的觀點而言，環氧樹脂組成物中的特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的合計含有率較佳為 0.5 質量%～50 質量%，更佳為 2 質量%～30 質量%。

【0053】 [硬化劑]

本揭示的環氧樹脂組成物含有硬化劑。作為硬化劑，可列舉於分子中具有酚性羥基的酚硬化劑。

【0054】 作為酚硬化劑，例如可列舉於一分子中具有兩個以上的酚性羥基的酚樹脂及多元酚化合物。具體而言，可列舉：間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F、經取代或未經取代的聯苯酚等多元酚化合物；使選自由苯酚、間甲酚、對甲酚、二甲酚、間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F、苯基苯酚、胺基苯酚等苯酚化合物及 α -萘酚、 β -萘酚、二羥基萘等萘酚化合物所組成的群組中的至少一種酚性化合物、與甲醛、乙醛、丙醛、苯甲醛、水楊醛等醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得的酚醛清漆型酚樹脂；由所述酚化合物與二甲氧基對二甲苯、雙(甲氧基甲基)聯苯等合成的苯酚芳烷基樹脂、萘酚芳烷基樹脂等芳烷基型酚樹脂；對二甲苯改質酚樹脂及/或間二甲苯改質酚樹脂；三聚氰胺改質酚樹脂；萸烯改質酚樹脂；由所述酚性化合物與二環戊二烯藉由共聚合而合成的二環戊二烯型苯酚樹脂及二環戊二烯型萘酚樹脂；環

戊二烯改質酚樹脂；多環芳香環改質酚樹脂；聯苯型酚樹脂；使所述酚性化合物與苯甲醛、水楊醛等芳香族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得的三苯基甲烷型酚樹脂；將該些的兩種以上共聚合而獲得的酚樹脂等。該些酚硬化劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0055】 硬化劑的官能基當量（於分子中具有酚性羥基的硬化劑中，為羥基當量）並無特別限制。就成形性、耐回焊性、電可靠性等各種特性平衡的觀點而言，較佳為 70 g/eq～1000 g/eq，更佳為 80 g/eq～500 g/eq。

【0056】 硬化劑的官能基當量（於分子中具有酚性羥基的硬化劑中，為羥基當量）例如亦可為藉由依據 JIS K 0070：1992 的方法而測定的值。

【0057】 於硬化劑為固體的情況下，硬化劑的軟化點或熔點並無特別限制。就成形性與耐回焊性的觀點而言，較佳為 40°C～180°C，就環氧樹脂組成物的製造時的操作性的觀點而言，更佳為 50°C～130°C。

【0058】 硬化劑的熔點或軟化點設為與環氧樹脂的熔點或軟化點同樣地測定的值。

【0059】 環氧樹脂與硬化劑的當量比、即硬化劑中的官能基數相對於環氧樹脂中的環氧基數的比（硬化劑中的官能基數/環氧樹脂中的環氧基數）並無特別限制。就將各自的未反應成分抑制得少的觀點而言，較佳為設定為 0.5～2.0 的範圍，更佳為設定為 0.6～

1.3 的範圍。就成形性與耐回焊性的觀點而言，進而佳為設定為 0.8 ~ 1.2 的範圍。

【0060】 [硬化促進劑]

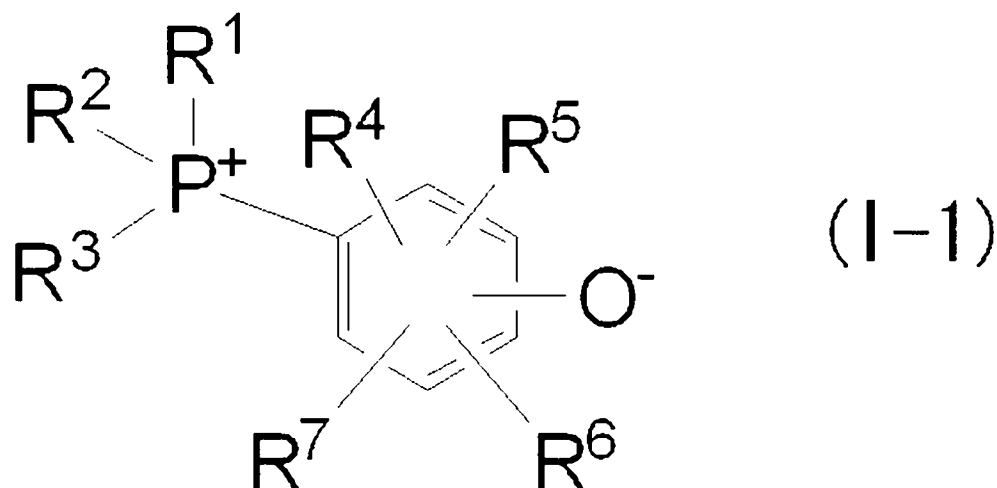
環氧樹脂組成物亦可包含硬化促進劑。硬化促進劑的種類並無特別限制，可根據環氧樹脂的種類、環氧樹脂組成物的所期望的特性等選擇。

【0061】 就硬化性及黏度的觀點而言，硬化促進劑較佳為含有磷化合物。作為磷化合物，具體而言，可列舉：三苯基磷、二苯基(對甲苯)磷、三(烷基苯基)磷、三(烷氧基苯基)磷、三(烷基·烷氧基苯基)磷、三(二烷基苯基)磷、三(三烷基苯基)磷、三(四烷基苯基)磷、三(二烷氧基苯基)磷、三(三烷氧基苯基)磷、三(四烷氧基苯基)磷、三烷基磷、二烷基芳基磷、烷基二芳基磷等三級磷；馬來酸酐、1,4-苯醌、2,5-甲苯醌、1,4-萘醌、2,3-二甲基苯醌、2,6-二甲基苯醌、2,3-二甲氧基-5-甲基-1,4-苯醌、2,3-二甲氧基-1,4-苯醌、苯基-1,4-苯醌等醌化合物、重氮苯基甲烷等具有 π 鍵的化合物加成而形成的具有分子內極化的化合物；於使所述三級磷或所述磷化合物與 4-溴苯酚、3-溴苯酚、2-溴苯酚、4-氯苯酚、3-氯苯酚、2-氯苯酚、4-碘苯酚、3-碘苯酚、2-碘苯酚、4-溴-2-甲基苯酚、4-溴-3-甲基苯酚、4-溴-2,6-二甲基苯酚、4-溴-3,5-二甲基苯酚、4-溴-2,6-二-第三丁基苯酚、4-氯-1-萘酚、1-溴-2-萘酚、6-溴-2-萘酚、4-溴-4'-羥基聯苯等鹵化酚化合物反應後經過脫鹵化氫的步驟而獲得的具有分子內極化的化合物；四苯基磷等四取代磷、四-對甲苯硼

酸鹽等不存在與硼原子鍵結的苯基的四取代磷及四取代硼酸鹽；四取代磷與自酚化合物脫離質子後的陰離子的鹽、四取代磷與自羧酸化合物脫離質子後的陰離子的鹽等。

【0062】 所述磷化合物中，較佳為下述通式 (I-1) 所表示的化合物 (以下，亦稱為特定硬化促進劑)。

【0063】 [化 9]



【0064】 式 (I-1) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地為碳數 1~18 的烴基， $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構， $R^4 \sim R^7$ 分別獨立地為氫原子、烴基或碳數 1~18 的一價有機基， $R^4 \sim R^7$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構。

【0065】 作為通式 (I-1) 的 $R^1 \sim R^3$ 所記載的「碳數 1~18 的烴基」包含碳數為 1~18 的脂肪族烴基及碳數為 6~18 的芳香族烴基。

【0066】 就黏度的觀點而言，碳數 1~18 的脂肪族烴基較佳為碳

數 1~8，更佳為 2~6，進而佳為 4~6。

【0067】 碳數 1~18 的脂肪族烴基可為碳數 1~18 的直鏈或分支狀的脂肪族烴基，亦可為碳數 3~18 的脂環式烴基。就容易製造的觀點而言，較佳為直鏈或分支狀的脂肪族烴基。

【0068】 作為碳數 1~18 的直鏈或分支狀的脂肪族烴基，具體而言，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、辛基、癸基、十二烷基等烷基、烯丙基、乙烯基等。直鏈或分支狀的脂肪族烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。直鏈或分支狀的脂肪族烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代基可相同亦可不同。於直鏈或分支狀的脂肪族烴基具有取代基的情況下，脂肪族烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 1~18。就硬化性的觀點而言，較佳為未經取代的烷基，更佳為碳數 1~8 的未經取代的烷基，進而佳為正丁基、異丁基、正戊基、正己基及正辛基。

【0069】 作為碳數 3~18 的脂環式烴，具體而言，可列舉：環戊基、環己基、環庚基等環烷基、環戊烯基、環己烯基等環烯基等。脂環式烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲基、乙基、丁基、第三丁基等烷基、甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。脂環式烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代

基可相同亦可不同。於脂環式烴基具有取代基的情況下，脂環式烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 3~18。於脂環式烴基具有取代基的情況下，取代基的位置並無特別限定。就硬化性的觀點而言，較佳為未經取代的環烷基，更佳為碳數 4~10 的未經取代的環烷基，進而佳為環己基、環戊基及環庚基。

【0070】 碳數為 6~18 的芳香族烴基較佳為碳數 6~14，更佳為 6~10。芳香族烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲基、乙基、丁基、第三丁基等烷基、甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。芳香族烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代基可相同亦可不同。於芳香族烴基具有取代基的情況下，芳香族烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 6~18。於芳香族烴基具有取代基的情況下，取代基的位置並無特別限定。

【0071】 作為碳數為 6~18 的芳香族烴基，具體而言，可列舉：苯基、1-萘基、2-萘基、甲苯基、二甲基苯基、乙基苯基、丁基苯基、第三丁基苯基、甲氧基苯基、乙氧基苯基、丁氧基苯基、第三丁氧基苯基。該些芳香族烴基中的取代基的位置可為鄰位、間位及對位中的任一種。就黏度的觀點而言，較佳為未經取代且碳數為 6~12 或包含取代基的碳數為 6~12 的芳基，更佳為未經取代且碳數為 6~10 或包含取代基的碳數為 6~10 的芳基，進而佳為苯基、對甲苯基及對甲氧基苯基。

【0072】 作為通式 (I-1) 的 $R^1 \sim R^3$ 所記載的用語「 $R^1 \sim R^3$ 中的

兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構」是指 $R^1 \sim R^3$ 中的兩個或三個鍵結，整體成為一個二價或三價烴基的情況。作為此時的 $R^1 \sim R^3$ 的例子，可列舉：可與磷原子鍵結而形成環狀結構的伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基等伸烷基、伸乙炔基、伸丙炔基、伸丁炔基等伸烯基、亞甲基伸苯基等伸芳烷基、伸苯基、伸萘基、伸蒽基等伸芳基等、可與磷原子鍵結而形成環狀結構的取代基。該些取代基亦可進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代。

【0073】 作為所述通式 (I-1) 中的 $R^4 \sim R^7$ 所記載的「碳數 1~18 的一價有機基」是指包含碳數為 1~18 且可經取代亦可未經取代的脂肪族烴基、芳香族烴基、脂肪族烴氧基、芳香族烴氧基、醯基、烴氧基羰基、以及醯氧基。

【0074】 作為所述脂肪族烴基及芳香族烴基的例子，可列舉作為 $R^1 \sim R^3$ 所表示的脂肪族烴基及芳香族烴基的例子於上文敘述者。

【0075】 作為所述脂肪族烴氧基，可列舉：甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、2-丁氧基、第三丁氧基、環丙氧基、環己氧基、環戊氧基、烯丙氧基、乙烯氧基等所述脂肪族烴基上鍵結有氧原子的結構的氧基；該些脂肪族烴氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代的基等。

【0076】 作為所述芳香族烴氧基，可列舉：苯氧基、甲基苯氧基、乙基苯氧基、甲氧基苯氧基、丁氧基苯氧基、苯氧基苯氧基等所述芳香族烴基上鍵結有氧原子的結構的氧基；該些芳香族烴氧基

進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0077】 作為所述醯基，可列舉：甲醯基、乙醯基、乙基羰基、丁醯基、環己基羰基、烯丙基羰基等脂肪族烴羰基、苯基羰基、甲基苯基羰基等芳香族烴羰基等；該些脂肪族烴羰基或芳香族烴羰基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0078】 作為所述烴氧基羰基，可列舉：甲氧基羰基、乙氧基羰基、丁氧基羰基、烯丙氧基羰基、環己基氧基羰基等脂肪族烴氧基羰基、苯氧基羰基、甲基苯氧基羰基等芳香族烴氧基羰基、該些脂肪族烴羰氧基或芳香族烴羰氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0079】 作為所述醯氧基，可列舉：甲基羰氧基、乙基羰氧基、丁基羰氧基、烯丙基羰氧基、環己基羰氧基等脂肪族烴羰氧基、苯基羰氧基、甲基苯基羰氧基等芳香族烴羰氧基、該些脂肪族烴羰氧基或芳香族烴羰氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0080】 作為所述通式 (I-1) 的 $R^4 \sim R^7$ 所記載的用語「兩個以上的 $R^4 \sim R^7$ 可相互鍵結而形成環狀結構」是指兩個～四個 $R^4 \sim R^7$ 鍵結，作為整體可形成一個二價～四價的有機基。作為此時的 $R^4 \sim R^7$ ，可列舉：伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基等伸烷基、伸乙炔基、伸丙炔基、伸丁炔基等伸烯基、亞甲基伸苯基

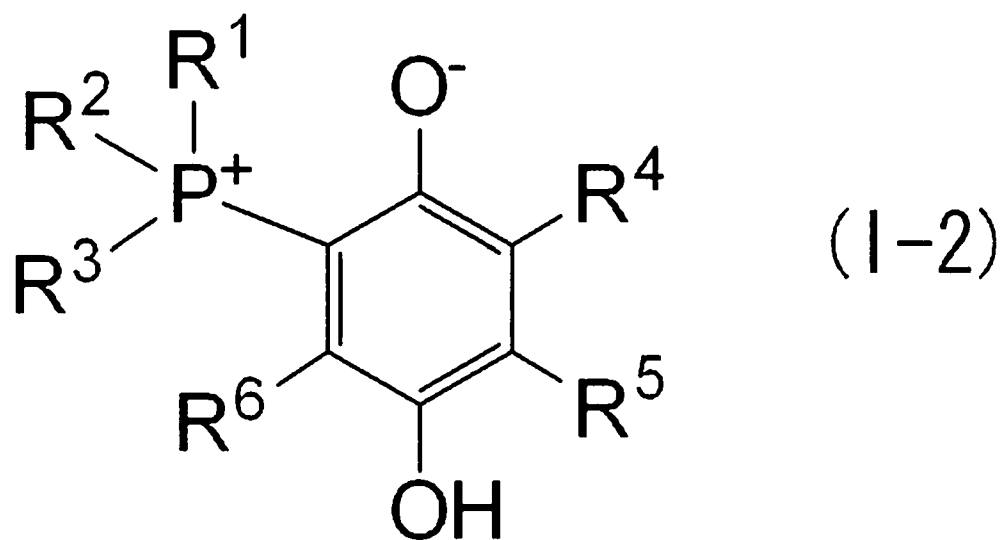
等伸芳烷基、伸苯基、伸萘基、伸蒽基等伸芳基等可形成環狀結構的取代基、該些的氧基或雙氧基等。該些取代基亦可進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代。

【0081】 作為所述通式 (I-1) 的 $R^4 \sim R^7$ ，並無特別限定。例如較佳為分別獨立地選自氫原子、羥基、經取代或未經取代的烷基、經取代或未經取代的芳基、經取代或未經取代的烷氧基、或經取代或未經取代的芳氧基。其中，就原料的獲取容易性的觀點而言，較佳為氫原子、羥基、未經取代或經選自由烷基及烷氧基所組成的群組中的至少一種取代的芳基、或者鏈狀或環狀的烷基。作為未經取代或經選自由烷基及烷氧基所組成的群組中的至少一種取代的芳基，可列舉：苯基、對甲苯基、間甲苯基、鄰甲苯基、對甲氧基苯基等。作為鏈狀或環狀的烷基，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、2-丁基、第三丁基、辛基、環己基等。就硬化性的觀點而言，較佳為 $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子的情況、或者 $R^4 \sim R^7$ 中的至少一個為羥基、其餘全部為氫原子的情況。

【0082】 於通式 (I-1) 中，更佳為 $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上為碳數 1~18 的烷基或碳數 3~18 的環烷基， $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子或至少一個為羥基，其餘全部為氫原子。進而佳為 $R^1 \sim R^3$ 中的全部為碳數 1~18 的烷基或碳數 3~18 的環烷基， $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子或至少一個為羥基，其餘全部為氫原子。

【0083】 就快速硬化性的觀點而言，特定硬化促進劑較佳為下述通式 (I-2) 所表示的化合物。

【0084】 [化 10]



【0085】 式 (I-2) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地為碳數 1~18 的烴基， $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構， $R^4 \sim R^6$ 分別獨立地為氫原子或碳數 1~18 的一價有機基， $R^4 \sim R^6$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構。

【0086】 通式 (I-2) 中的 $R^1 \sim R^6$ 的具體例分別與通式 (I-1) 中的 $R^1 \sim R^6$ 的具體例相同，較佳範圍亦相同。

【0087】 作為特定硬化促進劑的具體例，可列舉：三苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三正丁基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三環己基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、二環己基苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、環己基二苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三異丁基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三環戊基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物等。

【0088】 特定硬化促進劑例如可作為第三磷化合物與醜化化合物的加成物而獲得。

作為第三磷化合物，具體而言，可列舉：三苯基磷、三丁基磷、二丁基苯基磷、丁基二苯基磷、乙基二苯基磷、三(4-甲基苯基)磷、三(4-乙基苯基)磷、三(4-丙基苯基)磷、三(4-丁基苯基)磷、三(異丙基苯基)磷、三(第三丁基苯基)磷、三(2,4-二甲基苯基)磷、三(2,6-二甲基苯基)磷、三(2,4,6-三甲基苯基)磷、三(2,6-二甲基-4-乙氧基苯基)磷、三(4-甲氧基苯基)磷、三(4-乙氧基苯基)磷等。就成形性的觀點而言，較佳為三苯基磷及三丁基磷。

【0089】 作為醜化合物，具體而言，可列舉：鄰苯醌、對苯醌、聯苯醌、1,4-萘醌、蒽醌等。就耐濕性與保存穩定性的觀點而言，較佳為對苯醌。

【0090】 環氧樹脂組成物亦可包含磷化合物以外的硬化促進劑。

作為磷化合物以外的硬化促進劑，具體而言，可列舉：1,5-二氮雜雙環[4.3.0]壬烯-5（1,5-Diazabicyclo[4.3.0]nonene-5，DBN）、1,8-二氮雜雙環[5.4.0]十一烯-7（1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undecene-7，DBU）等二氮雜雙環烯烴、2-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-十七烷基咪唑等環狀脒化合物；所述環狀脒化合物的衍生物；所述環狀脒化合物或其衍生物的苯酚酚醛清漆鹽；於該些化合物上加成馬來酸酐、1,4-苯醌、2,5-甲苯醌、1,4-萘醌、2,3-二甲基苯醌、2,6-二甲基苯醌、2,3-二甲氧基-5-甲基-1,4-苯醌、2,3-二甲氧基-1,4-苯醌、苯基

-1,4-苯醌等醌化合物、重氮苯基甲烷等具有 π 鍵的化合物而形成的具有分子內極化的化合物；DBU 的四苯基硼酸鹽、DBN 的四苯基硼酸鹽、2-乙基-4-甲基咪唑的四苯基硼酸鹽、N-甲基嗎啉的四苯基硼酸鹽等環狀脒鎊化合物；吡啶、三乙胺、三乙二胺、苄基二甲基胺、三乙醇胺、二甲基胺基乙醇、三(二甲基胺基甲基)苯酚等三級胺化合物；所述三級胺化合物的衍生物；乙酸四正丁基銨、磷酸四正丁基銨、乙酸四乙基銨、苯甲酸四正己基銨、氫氧化四丙基銨等銨鹽化合物等。

【0091】 於環氧樹脂組成物含有特定硬化促進劑作為硬化促進劑的情況下，特定硬化促進劑的含有率較佳為硬化促進劑整體的 30 質量%以上，更佳為 50 質量%以上，進而佳為 70 質量%以上。特定硬化促進劑的含有率只要為硬化促進劑整體的 100 質量%以下即可。

【0092】 於環氧樹脂組成物包含硬化促進劑的情況下，硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.1 質量份～30 質量份，更佳為 1 質量份～15 質量份。若硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 0.1 質量份以上，則有短時間內良好地硬化的傾向。若硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 30 質量份以下，則有硬化速度不會過快而可獲得良好的成形品的傾向。

【0093】 [無機填充材]

環氧樹脂組成物包含無機填充材。

無機填充材的種類並無特別限制。具體而言，可列舉：熔融

二氧化矽、晶體二氧化矽、玻璃、氧化鋁、碳酸鈣、矽酸鋯、矽酸鈣、氮化矽、氮化鋁、氮化硼、氧化鈹、氧化鋯、鋯石、鎂橄欖石、塊滑石、尖晶石、富鋁紅柱石、氧化鈦、滑石、黏土、雲母等無機材料。亦可使用具有阻燃效果的無機填充材。作為具有阻燃效果的無機填充材，可列舉：氫氧化鋁、氫氧化鎂、鎂與鋅的複合氫氧化物等複合金屬氫氧化物、硼酸鋅等。其中，就線膨脹係數減低的觀點而言，較佳為熔融二氧化矽，就高熱傳導性的觀點而言，較佳為氧化鋁。無機填充材可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。作為無機填充材的狀態，可列舉：粉末、將粉末球形化的顆粒、纖維等。

【0094】 再者，所謂「將兩種以上的無機填充材組合而使用」，例如可列舉：將成分相同、平均粒子徑不同的無機填充材使用兩種以上的情況；將平均粒子徑相同、成分不同的無機填充材使用兩種以上的情況以及將平均粒子徑及種類不同的無機填充材使用兩種以上的情況。

【0095】 另外，無機填充材的含有率相對於環氧樹脂組成物整體而為 87.0 質量%以上，就電子零件裝置的翹曲的抑制及黏度的觀點而言，較佳為 88.0 質量%~95.0 質量%，更佳為 89.0 質量%~94.0 質量%，進而佳為 90.0 質量%~93.0 質量%，可為 91.0 質量%~93.0 質量%。

【0096】 於無機填充材包含氧化鋁的情況下，氧化鋁的含有率較佳為無機填充材整體的 40 質量%~80 質量%，更佳為 50 質量%~

80 質量%，進而佳為 60 質量%～75 質量%。

【0097】 無機填充材的平均粒子徑並無特別限制。例如，體積平均粒子徑較佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 80\ \mu\text{m}$ ，更佳為 $0.5\ \mu\text{m} \sim 70\ \mu\text{m}$ 。若體積平均粒子徑為 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上，則有可進一步抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 $80\ \mu\text{m}$ 以下，則有對狹小的縫隙的填充性進一步提高的傾向。無機填充材的體積平均粒子徑可藉由雷射繞射散射法粒度分佈測定裝置以體積平均粒子徑（D50）的形式測定。

【0098】 環氧樹脂組成物或其硬化物中的無機填充材的體積平均粒子徑可利用公知的方法來進行測定。例如，使用有機溶劑、硝酸、王水等自環氧樹脂組成物或硬化物中萃取無機填充材，利用超音波分散機等充分地分散而製備分散液。可使用該分散液，並根據利用雷射繞射散射法粒度分佈測定裝置而測定的體積基準的粒度分佈來測定無機填充材的體積平均粒子徑。或者，可將硬化物埋入至透明的環氧樹脂等中，進行研磨而獲得剖面，根據利用掃描式電子顯微鏡觀察所獲得的剖面而獲得的體積基準的粒度分佈來測定無機填充材的體積平均粒子徑。進而，亦可藉由如下方式來測定：使用聚焦離子束（Focused Ion Beam，FIB）裝置（聚焦離子束掃描式電子顯微鏡（Scanning Electron Microscope，SEM））等連續進行硬化物的二維的剖面觀察，並進行三維結構分析。

【0099】 無機填充材的最大粒子徑（亦稱為割點（cutpoint））並

無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，無機填充材的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0100】 就環氧樹脂組成物的混練性的觀點而言，關於無機填充材的粒子形狀，球形優於角形，且較佳為無機填充材的粒度分佈以廣範圍進行分佈。

【0101】 於獲得高熱傳導性的硬化物的情況下，無機填充材較佳為包含氧化鋁，更佳為包含氧化鋁作為主成分。無機填充材包含氧化鋁時的氧化鋁的平均粒子徑並無特別限制。例如氧化鋁的體積平均粒子徑較佳為 0.2 μm ~ 80 μm ，更佳為 0.5 μm ~ 70 μm 。若體積平均粒子徑為 0.2 μm 以上，則有可抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 80 μm 以下，則有對狹小的縫隙的填充性提高的傾向。

【0102】 氧化鋁的最大粒子徑並無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，氧化鋁的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0103】 於較佳的一實施形態中，亦可將體積平均粒子徑為 0.1 μm ~ 2.0 μm 、較佳為 0.2 μm ~ 1.5 μm 、更佳為 0.3 μm ~ 1.0 μm 的氧化鋁、與體積平均粒子徑超過 2.0 μm 且為 75 μm 以下、較佳為 5.0 μm ~ 55 μm 、更佳為 8.0 μm ~ 20 μm 的氧化鋁併用。藉由併用平均粒子徑不同的兩種以上的氧化鋁，有可使填充性適宜的傾向。

【0104】 氧化鋁的形狀並無特別限制。就環氧樹脂組成物的混練

性的觀點而言，氧化鋁的粒子形狀較佳為球形。

【0105】 於無機填充材包含氧化鋁的情況下，無機填充材較佳為除了氧化鋁以外包含二氧化矽。若無機填充材包含二氧化矽，則有黏度下降，可提高混練性及流動性的傾向，特別是，藉由併用微細的二氧化矽，有可抑制製成硬化物時的毛邊的產生的傾向。特別是，無機填充材較佳為包含微粒二氧化矽、例如體積平均粒子徑為 $0.01\ \mu\text{m} \sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、更佳為 $0.1\ \mu\text{m} \sim 1.5\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 1.0\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。就彈性係數的減低、線膨脹係數的減低的觀點而言，無機填充材較佳為包含大粒子徑二氧化矽。

作為大粒徑二氧化矽，可列舉體積平均粒子徑較佳為超過 $2.0\ \mu\text{m}$ 且為 $75\ \mu\text{m}$ 以下、更佳為 $5.0\ \mu\text{m} \sim 55\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $8.0\ \mu\text{m} \sim 20\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。

【0106】 就耐回焊性、抑制黏度的上升等的觀點而言，無機填充材較佳為包含二氧化矽，亦可包含二氧化矽作為主成分。無機填充材包含二氧化矽時的二氧化矽的平均粒子徑並無特別限制。例如二氧化矽的體積平均粒子徑較佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 80\ \mu\text{m}$ ，更佳為 $0.5\ \mu\text{m} \sim 70\ \mu\text{m}$ 。若體積平均粒子徑為 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上，則有可抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 $80\ \mu\text{m}$ 以下，則有對狹小的縫隙的填充性提高的傾向。另外，無機填充材較佳為包含微粒二氧化矽、例如體積平均粒子徑為 $0.01\ \mu\text{m} \sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、更佳為 $0.1\ \mu\text{m} \sim 1.5\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 1.0\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。若無機填充材包含微粒二氧化矽，則有對狹部的填充性提高，

可抑制製成硬化物時的毛邊的產生的傾向。

【0107】 二氧化矽的最大粒子徑並無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，二氧化矽的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0108】 二氧化矽的形狀並無特別限制。就環氧樹脂組成物的混練性的觀點而言，二氧化矽的粒子形狀較佳為球形。

【0109】 於無機填充材包含二氧化矽的情況下，二氧化矽的含有率並無特別限定，相對於無機填充材的整體而可為 70 質量%~100 質量%，亦可為 80 質量%~100 質量%，亦可為 90 質量%~100 質量%。另外，將二氧化矽與氧化鋁併用時的二氧化矽的含有率相對於無機填充材的整體而可為 20 質量%~60 質量%，亦可為 20 質量%~50 質量%，亦可為 25 質量%~40 質量%。

【0110】 [各種添加劑]

環氧樹脂組成物除了所述成分以外，亦可包含以下例示的偶合劑、離子交換體、脫模劑、阻燃劑、著色劑、應力緩和劑等各種添加劑。環氧樹脂組成物除了以下例示的添加劑以外，亦可視需要包含於本技術領域中周知的各種添加劑中。

【0111】 (偶合劑)

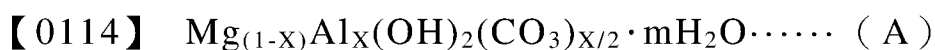
於環氧樹脂組成物包含無機填充材的情況下，為了提高樹脂成分與無機填充材的接著性，亦可包含偶合劑。作為偶合劑，可列舉：環氧基矽烷、巰基矽烷、胺基矽烷、烷基矽烷、醯脲矽烷、乙烯基矽烷等矽烷系化合物、鈦系化合物、鋁螯合物化合物、鋁/

鋅系化合物等公知的偶合劑。

【0112】 於環氧樹脂組成物包含偶合劑的情況下，偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而較佳為 0.05 質量份～5 質量份，更佳為 0.1 質量份～2.5 質量份。若偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而為 0.05 質量份以上，則有與框架（frame）的接著性進一步提高的傾向。若偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而為 5 質量份以下，則有封裝的成形性進一步提高的傾向。

【0113】 （離子交換體）

環氧樹脂組成物亦可包含離子交換體。特別是，於將環氧樹脂組成物用作密封用成形材料的情況下，就使包括進行了密封的元件的電子零件裝置的耐濕性及高溫放置特性提高的觀點而言，較佳為包含離子交換體。離子交換體並無特別限制，可使用現有公知者。具體而言，可列舉水滑石化合物、以及含有選自由鎂、鋁、鈦、鋯及鈹所組成的群組中的至少一種元素的氫氧化物等。離子交換體可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。其中，較佳為下述通式（A）所表示的水滑石。



（ $0 < x \leq 0.5$ ， m 為正數）

【0115】 於環氧樹脂組成物包含離子交換體的情況下，離子交換體的含量只要為對於捕捉鹵素離子等離子而言充分的量，則並無特別限制。例如相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.1 質量份～30 質量份，更佳為 1 質量份～15 質量份。

【0116】（脫模劑）

就獲得成形時的與模具的良好的脫模性的觀點而言，環氧樹脂組成物亦可包含脫模劑。脫模劑並無特別限制，可使用現有公知者。具體而言，可列舉：棕櫚蠟（carnauba wax）、二十八酸、硬脂酸等高級脂肪酸、高級脂肪酸金屬鹽、二十八酸酯等酯系蠟、氧化聚乙烯、非氧化聚乙烯等聚烯烴系蠟等。脫模劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0117】 於環氧樹脂組成物包含脫模劑的情況下，所述脫模劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.01 質量份～15 質量份，更佳為 0.1 質量份～10 質量份。若脫模劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 0.01 質量份以上，則有可充分獲得脫模性的傾向。若為 15 質量份以下，則有可獲得更良好的接著性的傾向。

【0118】 其中，環氧樹脂組成物包含脫模劑，脫模劑的含有率相對於環氧樹脂組成物的總質量而較佳為超過 0 質量%且為 2 質量%以下，更佳為超過 0 質量%且為 1.5 質量%以下，進而佳為超過 0 質量%且為 1.2 質量%以下。藉由以所述含有率含有脫模劑，與含有比所述含有率多的情況相比，有可抑制使外觀、接著力及雷射打印性顯著下降的傾向。另外，根據本揭示的環氧樹脂組成物，有即便脫模劑的含有率為所述範圍內亦可維持良好的脫模性的傾向。

【0119】（阻燃劑）

環氧樹脂組成物亦可包含阻燃劑。阻燃劑並無特別限制，可

使用現有公知者。具體而言，可列舉包含鹵素原子、銻原子、氮原子或磷原子的有機化合物或無機化合物、金屬氫氧化物等。阻燃劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0120】 於環氧樹脂組成物包含阻燃劑的情況下，阻燃劑的量只要為對於獲得所需的阻燃效果而言充分的量，則並無特別限制。例如相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 1 質量份～300 質量份，更佳為 2 質量份～150 質量份。

【0121】 （著色劑）

環氧樹脂組成物亦可更包含著色劑。作為著色劑，可列舉：碳黑、有機染料、有機顏料、氧化鈦、鉛丹、氧化鐵等公知的著色劑。著色劑的含量可根據目的等適宜選擇。著色劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0122】 （應力緩和劑）

環氧樹脂組成物亦可包含矽油、矽酮橡膠粒子等應力緩和劑。藉由包含應力緩和劑，可進一步減低封裝的翹曲變形及封裝裂紋的產生。作為應力緩和劑，可列舉通常使用的公知的應力緩和劑（可撓劑）。具體而言，可列舉：矽酮系、苯乙烯系、烯烴系、胺基甲酸酯系、聚酯系、聚醚系、聚醯胺系、聚丁二烯系等熱塑性彈性體，天然橡膠（natural rubber，NR）、丙烯腈-丁二烯橡膠（acrylonitrile butadiene rubber，NBR）、丙烯酸橡膠、胺基甲酸酯橡膠、矽酮粉末等橡膠粒子，甲基丙烯酸甲酯-苯乙烯-丁二烯共聚物（Methacrylate methyl styrene butadiene，MBS）、甲基丙烯酸甲

酯-矽酮共聚物、甲基丙烯酸甲酯-丙烯酸丁酯共聚物等具有核-殼結構的橡膠粒子等。應力緩和劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。其中，較佳為矽酮系應力緩和劑。作為矽酮系應力緩和劑，可列舉：具有環氧基者、具有胺基者、將該些進行聚醚改質而成者等。

【0123】（環氧樹脂組成物的製備方法）

環氧樹脂組成物的製備方法並無特別限制。作為通常的方法，可列舉如下方法：於藉由混合機等將規定調配量的成分充分混合後，藉由研磨輥、擠出機等來進行熔融混練，進行冷卻並加以粉碎。更具體而言，例如可列舉如下方法：將規定量的所述成分均勻地攪拌並加以混合，利用預先加熱為 $70^{\circ}\text{C}\sim 140^{\circ}\text{C}$ 的捏合機、輥、擠壓機等進行混練並加以冷卻，進行粉碎。

進而，利用孔徑 2.0 mm 的篩子對藉由粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物進行篩選，回收通過了篩子的粉碎物，藉此可獲得最大粒徑為 2.0 mm 以下的環氧樹脂組成物。藉由對所使用的篩子的孔徑進行變更，可調節環氧樹脂組成物的最大粒徑。

【0124】〈電子零件裝置〉

作為本揭示的一實施形態的電子零件裝置包括：元件；以及將所述元件密封的所述環氧樹脂組成物的硬化物。

作為電子零件裝置，可列舉利用環氧樹脂組成物對如下元件部進行密封而得者，所述元件部是於引線框架、已配線的輸送膠帶、配線板、玻璃、矽晶圓、有機基板等支撐構件上搭載元件（半

導體晶片、電晶體、二極體、閘流體等主動元件、電容器、電阻體、線圈等被動元件等)而獲得。

更具體而言，可列舉：雙列直插式封裝 (Dual Inline Package, DIP)、塑膠引線晶片載體 (Plastic Leaded Chip Carrier, PLCC)、四面扁平封裝 (Quad Flat Package, QFP)、小外型封裝 (Small Outline Package, SOP)、小外型 J-引線封裝 (Small Outline J-lead package, SOJ)、薄小外型封裝 (Thin Small Outline Package, TSOP)、薄型四面扁平封裝 (Thin Quad Flat Package, TQFP) 等通常的樹脂密封型 IC，其具有於將元件固定於引線框架上且以打線接合、凸塊等連接接合墊等元件的端子部與引線部後，使用環氧樹脂組成物進行密封的結構；載帶封裝 (Tape Carrier Package, TCP)，其具有利用環氧樹脂組成物對以凸塊連接於載帶上的元件進行密封的結構；基板覆晶 (Chip On Board, COB) 模組、混合 IC、多晶模組等，其具有利用環氧樹脂組成物對以打線接合、倒裝晶片接合、焊料等連接於支撐構件上所形成的配線上的元件進行密封的結構；球柵陣列 (Ball Grid Array, BGA)、晶片尺寸封裝 (Chip Size Package, CSP)、多晶片封裝 (Multi Chip Package, MCP) 等，其具有於背面形成配線板連接用端子的支撐構件的表面上搭載元件，並藉由凸塊或打線接合將元件與支撐構件上形成的配線連接後，利用環氧樹脂組成物密封元件的結構。另外，於印刷配線板中亦可適宜地使用環氧樹脂組成物。

[實施例]

【0125】 以下，藉由實施例對本發明進行具體說明，但本發明並不限定於該些實施例。

【0126】 〔環氧樹脂組成物的製備〕

將下述材料以表 1 中記載的組成混合，於混練溫度 100°C 的條件下使用雙軸混練機進行混練，藉此分別製備環氧樹脂組成物。利用孔徑 1.0 mm 的篩子對將所述環氧樹脂組成物粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物進行篩選，回收通過了篩子的粉碎物，藉此獲得最大粒徑為 1.0 mm 以下的各實施例及比較例的環氧樹脂組成物。

再者，以下的表中的「-」是指未調配此成分。

【0127】 （環氧樹脂）

環氧樹脂 1：具有聯苯骨架的環氧樹脂（環氧當量：196 g/eq、相當於其他環氧樹脂）

環氧樹脂 2：多個萘環藉由醚基而鍵結且於末端的兩個萘環上分別鍵結一個縮水甘油醚基的環氧樹脂（環氧當量：250 g/eq、相當於特定環氧樹脂）

環氧樹脂 3：雙酚 S 的二縮水甘油醚即含硫原子的環氧樹脂（環氧當量：245 g/eq、相當於其他環氧樹脂）

【0128】 （硬化劑）

·硬化劑：三苯基甲烷型酚樹脂（羥基當量 104 g/eq）

（硬化促進劑）

·硬化促進劑：三苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物

(偶合劑)

·偶合劑 1：3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷

·偶合劑 2：3-巰基丙基三甲氧基矽烷

(離子捕捉劑)

·氫氧化鎂鋁-碳酸酯-水合物

(添加劑)

·脫模劑：二十八酸酯蠟

·著色劑：碳黑

(應力緩和劑)

·應力緩和劑 1：具有環氧基的矽酮系應力緩和劑

·應力緩和劑 2：包含下述結構單元的應力緩和劑

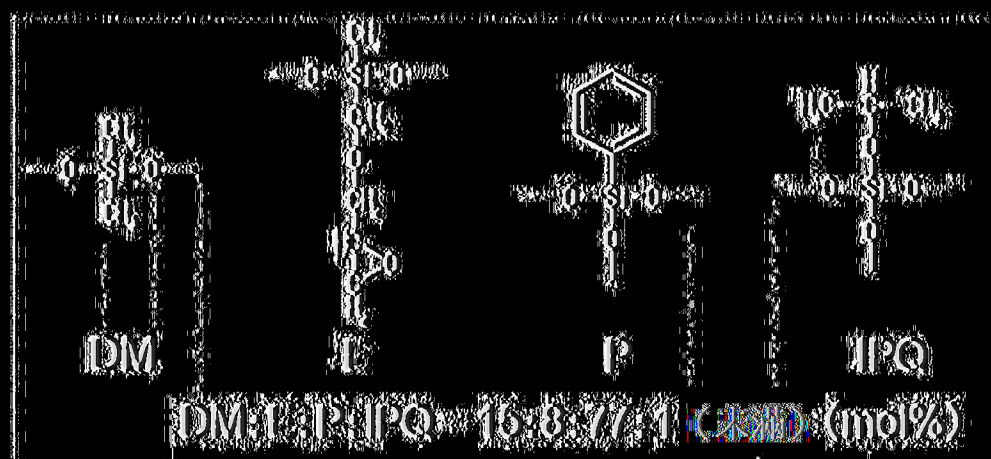
(無機填充材)

·無機填充材 1：微粒子二氧化矽 (平均粒子徑 0.5 μm)

·無機填充材 2：大粒子二氧化矽 (平均粒子徑 10 μm)

·無機填充材 3：氧化鋁/二氧化矽=體積比 9/1 的混合物 (平均粒子徑：10 μm)

【0129】 [化 11]



[0130] [環氧樹脂組成物的評價]

藉由以下的特性試驗對實施例及比較例中製備的環氧樹脂組成物的特性進行評價。將結果示於表 1 中。

[0131] (1) 旋流 (Spiral Flow, SF)

使用依據 JEMMI-1-66 的旋流測定用模具，於模具溫度 150°C、成形壓力 6.9 MPa、硬化時間 180 秒的條件下將環氧樹脂組成物成形，並求出流動距離 (cm)。

[0132] (2) 凝膠時間 (Gel Time, GT)

環氧樹脂組成物的凝膠時間是使用固拉斯特米特 (curelasiometer) (JSR 交易 (trading) 股份有限公司)，於試樣量 1.5 ml、160°C 的條件下進行測定。將所獲得的圖表的轉矩開始上升的時間設為凝膠時間 (秒)。

[0133] (3) 玻璃轉移溫度 (T_g)、CTB1 (α1) 及 CTB2 (α2)

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，

獲得 4 mm×4 mm×20 mm 的成形物。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化，使用熱機械分析裝置(耐馳(NETZSCH) 公司、TMA4000SE)來測定線膨脹係數 (CTE)。測定溫度範圍設為 30°C~260°C，升溫速度設為 10°C/分鐘。

將 40°C~80°C的範圍內的 CTE 的平均值設為 α_1 ，將 230°C~250°C的 CTE 的平均值設為 α_2 。

將 40°C~80°C的範圍內的 CTE 的切線與 230°C~250°C下的 CTE 的切線的交點設為玻璃轉移溫度 (T_g)。

【0134】 (4) 室溫彈性係數及高溫彈性係數

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，獲得長度 50 mm×寬度 5 mm×厚度 2 mm 的成形物。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化而獲得硬化物。其後，使用黏彈性測定裝置 RSA-3 (TA 儀器 (TA Instrument) 公司)，於三點彎曲模式、升溫速度 10°C/min、頻率 1 Hz 的條件下測定彈性係數。根據測定結果，分別求出室溫 (25°C) 下的彈性係數 (室溫彈性係數) 及 260°C 下的彈性係數 (高溫彈性係數)。

【0135】 (5) 熱時硬度

藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下將環氧樹脂組成物成形，使用蕭氏 D 型硬度計 (上島製作所股份有限公司製造、HD-1120 (D 型)) 對 175°C 下的熱時硬度進行測定。

【0136】 (6) 140°C下的黏度

對環氧樹脂組成物進行加熱而使其熔融，使用流變儀 AR2000 (TA 儀器 (TA Instrument) 製造)，於 40 mm 的平行板上且於剪切速度：32.5/sec 的條件下對 140°C 下的黏度進行測定。

【0137】 (7) 成形收縮率

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，獲得成形物（相當於後硬化前的硬化物）。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化而獲得硬化物（相當於後硬化後的硬化物）。基於以下的式來求出後硬化前後的成形收縮率。

成形收縮率 (%) = { (後硬化前的硬化物的長度 - 後硬化後的硬化物的長度) / (後硬化前的硬化物的長度) } × 100

所述硬化物的長度是呈矩形的硬化物的任意一邊的長度。

【0138】 (8) 熱傳導率

使用環氧樹脂組成物，並藉由壓縮成形機而於模具溫度 175°C ~ 180°C、成形壓力 7 MPa、硬化時間 150 秒的條件下將半導體元件密封，製作熱傳導率評價用試驗片。繼而，藉由氙閃光 (Xe-flash) 法來對試驗片的熱傳導率進行測定。

【0139】 [表 1]

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	比較例 1	比較例 2
環氧樹脂 1	60	70	60	70	80	60
環氧樹脂 2	20	10	20	10	0	20
環氧樹脂 3	20	20	20	20	20	20
硬化劑	50.7	49.3	49.3	49.3	49.3	49.3
硬化促進劑	2	2	1.7	1.7	1.7	2.0
偶合劑 1	10	10	10	10	10	10
偶合劑 2	2	2	2	2	2	2
脫模劑	1	1	1	1	1	1
離子捕捉劑	10	10	10	10	10	10
著色劑	5	5	5	5	5	5
應力緩和劑 1	15					
應力緩和劑 2		15	15	15	15	15
無機填充材 1	147.0	133.0	133.0	133.0	133.0	87.00
無機填充材 2	442.0	386.0	386.0	386.0	386.0	260.00
無機填充材 3	1526.0	1401.0	1401.0	1401.0	1401.0	898.00
合計	2310.7	2114.3	2114.0	2114.0	2114.0	1439.3
無機填充材的含有率 (體積%)	80.5	80.5	79.0	79.0	79.0	71.0
無機填充材的含有率 (質量%)	91.5	91.5	90.8	90.8	90.8	86.5
SF (cm)	160	180	170	170	180	250
GT (sec)	60	77	73	75	75	60
Tg (°C)	160	165	150	150	145	160
$\alpha 1$ (ppm/°C)	10	10	11	11	13	18
$\alpha 2$ (ppm/°C)	34	35	38	40	42	50
室溫彈性係數 (GPa)	38	36	36	35	35	25
高溫彈性係數 (GPa)	0.8	1	0.8	0.7	0.6	0.5
熱時硬度@175°C	81	81	80	80	80	80
黏度@140°C (Pa·s)	110	68	61	60	75	40
成形收縮率 (%)	0.1	0.12	0.14	0.16	0.16	0.3
熱傳導率 (W/m·K)	3	3	2.8	2.8	2.8	1.5

【0140】 如表 1 所示，藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物，與使用比較例 1 及比較例 2 的環氧樹脂組成物的情況相比，有 $\alpha 1$ 及 $\alpha 2$ 的值小且成形收縮率的值亦低的傾向。因此，藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物來製造電子零件裝置，可抑制電子零件裝置中的翹曲。

【0141】 〔溶解性的評價〕

以表 1 中記載的實施例 1 的組成來製備環氧樹脂組成物。將所製備的環氧樹脂組成物粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物設為比較例 3 的環氧樹脂組成物。比較例 3 的環氧樹脂組成物未利用篩子進行篩選而組成物的最大粒徑超過 2.0 mm。使用最大粒徑為 1.0 mm 以下的實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物與比較例 3 的環氧樹脂組成物，如以下般對熔解性進行評價。

首先，將鋁製的杯（ $\Phi 5.5$ cm）配置於加熱板上後，於杯內在水平方向上分別平鋪實施例 1～實施例 4 及比較例 3 的環氧樹脂組成物 5 g。其後，將平鋪有環氧樹脂組成物的杯於 175°C 下加熱 3 分鐘，對加熱後的環氧樹脂組成物的外觀進行確認，並對環氧樹脂組成物的熔解狀況進行確認。實施例 1～實施例 4 中，與比較例 3 相比，均勻性高且整體熔解，而且基本上未確認到熔解殘留。藉此，推測藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物而可抑制導線偏移。

【0142】 於 2021 年 9 月 2 日提出申請的日本專利申請案 2021-143465 的揭示的全部內容藉由參照而併入至本說明書中。

本說明書中所記載的所有文獻、專利申請案及技術規格是與具體且分別記載各文獻、專利申請案及技術規格藉由參照而併入的情況相同程度地，藉由參照而併入至本說明書中。

【發明申請專利範圍】

【請求項 1】一種壓縮成形用環氧樹脂組成物，包含：

環氧樹脂，含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者；

硬化劑；及

無機填充材，

無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，

壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

【請求項 2】如請求項 1 所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂包含選自由萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種環氧樹脂。

【請求項 3】如請求項 1 或請求項 2 所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂的環氧當量為 200 g/eq~1000 g/eq。

【請求項 4】如請求項 1 至請求項 3 中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述無機填充材包含氧化鋁。

【請求項 5】如請求項 4 所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述氧化鋁相對於無機填充材整體的含有率為 40 質量%~80 質量%。

【請求項 6】如請求項 1 至請求項 5 中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中包含所述多環結構及兩種以上的環結構的至少一者的環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率為 5 質量%~50 質量%。

【請求項 7】一種電子零件裝置，包括：元件；以及將所述元件密封的如請求項 1 至請求項 6 中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物的硬化物。

【發明說明書】

【中文發明名稱】 壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置

【英文發明名稱】 EPOXY RESIN COMPOSITION FOR COMPRESSION MOLDING, AND ELECTRONIC COMPONENT APPARATUS

【技術領域】

【0001】 本揭示是有關於一種壓縮成形用環氧樹脂組成物及電子零件裝置。

【先前技術】

【0002】 自先前以來，於電晶體、積體電路（Integrated Circuit，IC）等電子零件密封的領域中廣泛使用環氧樹脂組成物。作為其理由，原因在於：環氧樹脂取得了電特性、耐濕性、耐熱性、機械特性、與嵌入品的接著性等的平衡。

【0003】 作為使用環氧樹脂組成物將電子零件密封的方法，最通常的是轉注成形。另一方面，於轉注成形中，藉由加壓使熔融的環氧樹脂組成物於模具內流動，因此有時藉由所述流動而產生導線偏移。相對於此，研究了環氧樹脂組成物的高流動化的方法，但導線偏移的抑制仍存在課題。作為代替轉注成形的成形方法，已知有壓縮成形。於壓縮成形中，於模具的型腔內加入環氧樹脂組成物使其熔融，關閉模具並加壓，藉此將元件密封。根據壓縮成形，基本上不會引起環氧樹脂組成物的流動，因此可抑制導線

偏移的產生。

【0004】 作為用於藉由壓縮成形而將半導體元件密封的環氧樹脂組成物，例如專利文獻 1 中提出了一種粒子狀的環氧樹脂組成物，其特徵在於含有環氧樹脂、硬化劑、硬化促進劑、無機填充材、熔點為 70°C 以下的脂肪酸及沸點為 200°C 以上的矽烷偶合劑，粒子徑分佈於 100 μm ~ 3 mm 的範圍內佔 85 質量%以上。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1]日本專利特開 2011-153173 號公報

【發明內容】

【0006】 [發明所欲解決之課題]

且說，對如下情況進行了研究：於將環氧樹脂組成物用作半導體封裝等電子零件裝置的密封材時，為了實現低成本化、小型化等，而將散熱片等構件除去。但是，於局部不使用散熱片等構件的情況下，電子零件裝置中容易產生翹曲。因此，理想的是可抑制電子零件裝置的翹曲的環氧樹脂組成物。

【0007】 例如，藉由使環氧樹脂組成物中的無機填充材的含量增加，可抑制電子零件裝置的翹曲。但是，於使無機填充材的含量增加的情況下，會容易產生導線偏移，難以兼顧翹曲的抑制與導線偏移的抑制。

【0008】 本揭示是鑒於所述情況而成，其目的在於提供一種可實現電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制的壓縮成形用

環氧樹脂組成物、以及包括由該組成物密封的元件的電子零件裝置。

[解決課題之手段]

【0009】 用以達成所述課題的具體手段為如以下所述。

<1> 一種壓縮成形用環氧樹脂組成物，包含：

環氧樹脂，含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者；

硬化劑；及

無機填充材，

無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，

壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

<2> 如<1>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂包含選自由萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種環氧樹脂。

<3> 如<1>或<2>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述環氧樹脂的環氧當量為 200 g/eq~1000 g/eq。

<4> 如<1>至<3>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述無機填充材包含氧化鋁。

<5> 如<4>所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述氧化鋁相對於無機填充材整體的含有率為 40 質量%~80 質量%。

<6> 如<1>至<5>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物，其中所述包含多環結構及兩種以上的環結構的至少一者

的環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率為 5 質量%~50 質量%。

<7> 一種電子零件裝置，包括：元件；以及將所述元件密封的如<1>至<6>中任一項所述的壓縮成形用環氧樹脂組成物的硬化物。

[發明的效果]

【0010】 藉由本揭示，可提供一種能實現電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制的壓縮成形用環氧樹脂組成物、以及包括由該組成物密封的元件的電子零件裝置。

【實施方式】

【0011】 以下，對用以實施本發明的形態進行詳細說明。但是，本發明並不限定於以下的實施形態。於以下的實施形態中，其構成要素（亦包括要素步驟等）除了特別明示的情況，並非必須。關於數值及其範圍亦同樣如此，並不限制本發明。

於本揭示中，「步驟」的用語中，除了與其他步驟獨立的步驟以外，即便於無法與其他步驟明確區別的情況下，只要達成該步驟的目的，則亦包含該步驟。

於本揭示中，使用「~」所表示的數值範圍中包含「~」的前後所記載的數值分別作為最小值及最大值。

於本揭示中階段性記載的數值範圍中，在一個數值範圍中所記載的上限值或下限值亦可置換為其他階段性記載的數值範圍的上限值或下限值。另外，於本揭示中所記載的數值範圍中，該數值範圍的上限值或下限值亦可置換為實施例中所示的值。

於本揭示中，各成分亦可包含多種相符的物質。於在組成物中存在多種相當於各成分的物質的情況下，只要無特別說明，則各成分的含有率或含量是指組成物中所存在的該多種物質的合計含有率或含量。

於本揭示中，亦可包含多種相當於各成分的粒子。於在組成物中存在多種相當於各成分的粒子的情況下，只要無特別說明，則各成分的粒子徑是指關於組成物中所存在的該多種粒子的混合物的值。

【0012】 <壓縮成形用環氧樹脂組成物>

本揭示的壓縮成形用環氧樹脂組成物（以下，亦稱為「環氧樹脂組成物」）包含含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者的環氧樹脂（以下，亦稱為「特定環氧樹脂」、硬化劑及無機填充材，無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上，壓縮成形用環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下。

【0013】 藉由將本揭示的環氧樹脂組成物用於密封元件，可實現將元件密封而成的電子零件裝置中的翹曲的抑制及導線偏移的抑制。其理由例如可推測如下。本揭示並不限定於以下的推測。

【0014】 本揭示的環氧樹脂組成物包含特定環氧樹脂，且無機填充材的含有率相對於壓縮成形用環氧樹脂組成物總量而為 87.0 質量%以上。特定環氧樹脂中所含的多環結構及兩種以上的環結構之類的剛性骨架於使環氧樹脂組成物硬化所得的硬化物中有助於低

熱膨脹化及低收縮化。藉由無機填充材的含有率為規定量以上，從而有助於硬化物的低熱膨脹化及低收縮化。藉此，推測可適宜地抑制電子零件裝置中的翹曲。另一方面，因環氧樹脂組成物包含特定環氧樹脂且無機填充材的含有率為規定量以上而容易產生導線偏移。

【0015】 然而，藉由環氧樹脂組成物的最大粒徑為 2.0 mm 以下，對環氧樹脂組成物進行加熱時的熔解性提高。藉此，推測可抑制所述導線偏移的產生。

【0016】 如以上所述般將本揭示的環氧樹脂組成物用於密封元件，藉此可抑制將元件密封而成的電子零件裝置中的翹曲。即便於為了實現低成本化、小型化等而將散熱片等構件除去的情況下，亦可適宜地抑制電子零件裝置的翹曲。

【0017】 就更適宜地抑制導線偏移的產生的觀點而言，環氧樹脂組成物的最大粒徑較佳為 1.4 mm 以下，更佳為 1.0 mm 以下。另外，環氧樹脂組成物的最大粒徑可為 0.5 mm 以上。

【0018】 以下，對本揭示的環氧樹脂組成物中可包含的成分進行詳細說明。

【0019】 [特定環氧樹脂]

本揭示的環氧樹脂組成物包含含有多環結構及兩種以上的環結構的至少一者的環氧樹脂（特定環氧樹脂）。特定環氧樹脂較佳為於一分子中具有兩個以上的環氧基者。

【0020】 於本揭示中，所謂多環結構，是指多環結構內的至少兩

個環結構共用一個以上的原子的環結構。例如，多環結構可為稠環，亦可為如二環戊二烯型結構般的交聯稠環。

於本揭示中，所謂兩種以上的環結構，是指選自單環（例如，一個脂肪族環、一個芳香環或一個雜環）及兩個以上的環利用單鍵進行鍵結而成的環集合（例如，聯苯基）中的兩種以上的結構。兩種以上的環結構可為兩種以上的單環，亦可為兩種以上的環集合，亦可為苯環等單環與聯苯基等環集合的組合。

再者，於環氧樹脂僅包含一種聯苯基等環集合的情況下，不與特定環氧樹脂相符。

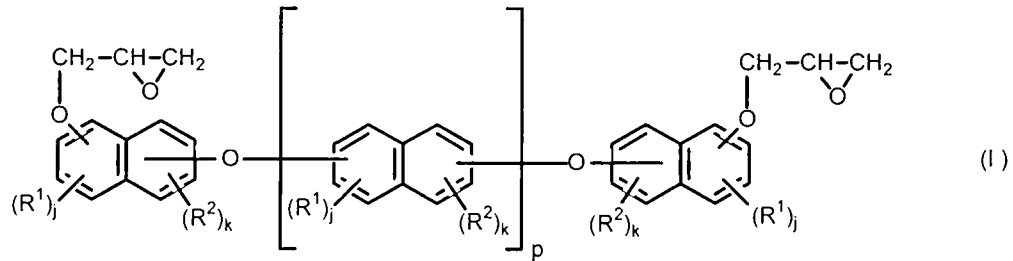
【0021】 就更適宜地抑制電子零件裝置的翹曲的觀點而言，特定環氧樹脂較佳為包含選自由萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種環氧樹脂。特定環氧樹脂更佳為選自由萘型環氧樹脂及二環戊二烯型環氧樹脂所組成的群組中的至少一種。

【0022】 作為萘型環氧樹脂，只要為具有環氧基及萘環結構的樹脂，則並無特別限定。例如可為於一個萘環上鍵結兩個縮水甘油醚基的環氧樹脂（例如，1,6-雙(縮水甘油氧基)萘），亦可為多個萘環藉由連結基（醚基、亞甲基等）而鍵結且於至少兩個萘環上分別鍵結一個縮水甘油醚基的環氧樹脂，亦可為萘環及苯環藉由連結基（醚基、亞甲基等）而交替或無規地鍵結且於至少兩個萘環上分別鍵結一個以上的縮水甘油醚基的環氧樹脂。

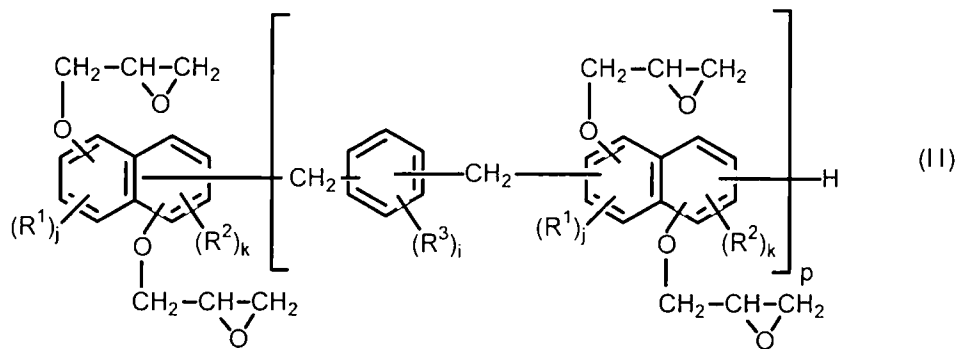
【0023】 作為萘型環氧樹脂，例如可列舉下述通式（I）～下述

通式 (III) 所表示的環氧樹脂等。

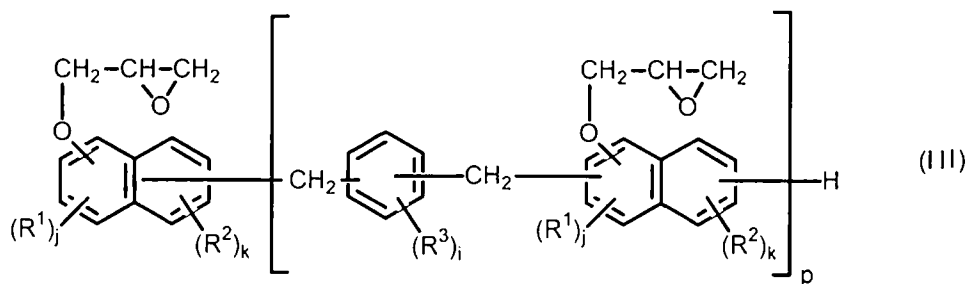
【0024】 [化 1]



【0025】 [化 2]



【0026】 [化 3]



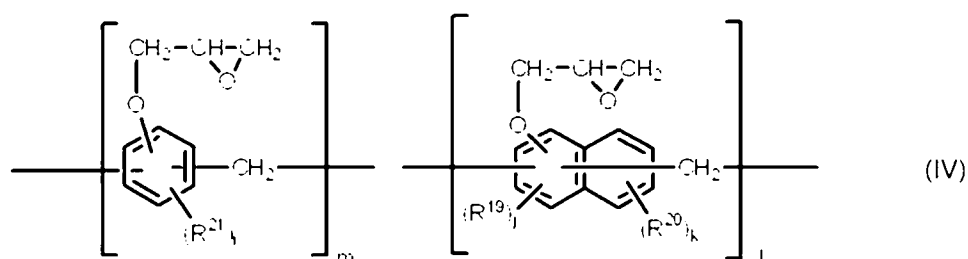
【0027】 通式 (I) ~ 通式 (III) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地表示經取代或未經取代的碳數 1~12 的一價烴基。 p 為平均值， p 分別獨立地表示 1~10 的數。 i 分別獨立地表示 0~4 的整數， j 分別獨立地表示 0~2 的整數， k 分別獨立地表示 0~2 的整數。

作為 $R^1 \sim R^3$ 中的經取代或未經取代的碳數 1~12 的一價烴基，可列舉烷基等。

於通式 (I) 或通式 (III) 中，與萘環鍵結的縮水甘油氧基只要分別獨立地鍵結於構成萘環的兩個苯環的任一者上即可。

【0028】 萘型環氧樹脂可為使由萘酚化合物及苯酚化合物與醛化合物獲得的酚醛清漆樹脂進行環氧化而得的共聚合型環氧樹脂，例如亦可為使利用具有萘酚骨架的化合物及具有苯酚骨架的化合物的酚醛清漆型酚樹脂進行縮水甘油醚化而獲得的環氧樹脂。作為此種共聚合型環氧樹脂，例如可列舉以下的通式 (IV) 所表示的環氧樹脂。

【0029】 [化 4]

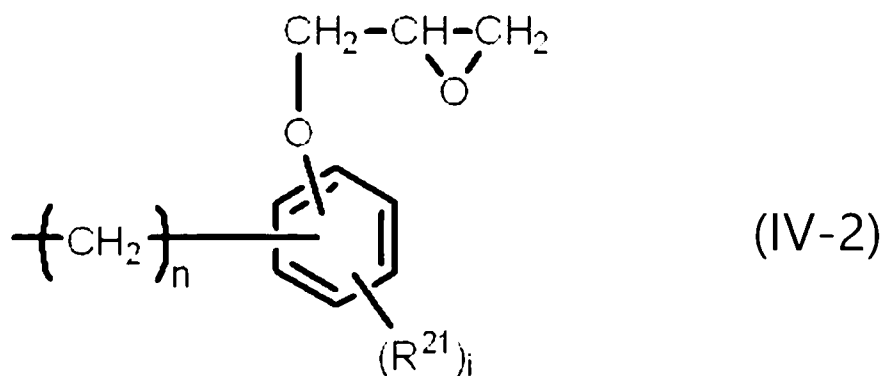
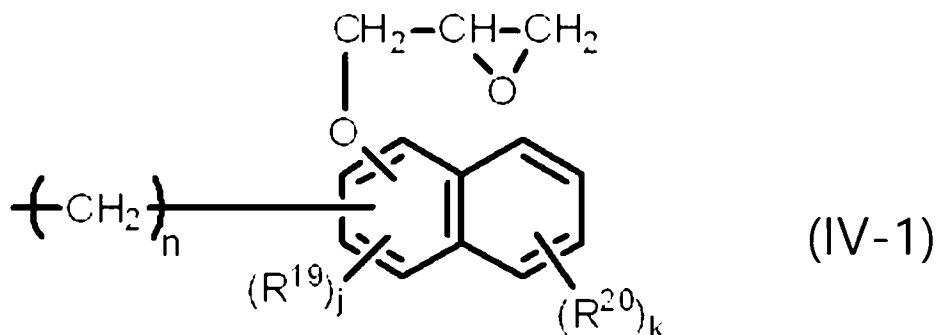


【0030】 通式 (IV) 中， $R^{19} \sim R^{21}$ 分別獨立地表示碳數 1~18 的

一價有機基。i 分別獨立地表示 0~3 的整數，j 分別獨立地表示 0~2 的整數，k 分別獨立地表示 0~4 的整數。l 及 m 分別為平均值，且為 1~10 的數，(l+m) 表示 2~20 的數。通式 (IV) 所表示的環氧樹脂的末端為下述式 (IV-1) 或式 (IV-2) 的任一者。於式 (IV-1) 及式 (IV-2) 中， $R^{19} \sim R^{21}$ 中的 i、j 及 k 的定義與式 (IV) 中的 $R^{19} \sim R^{21}$ 中的 i、j 及 k 的定義相同。n 為 1 (經由亞甲基而鍵結的情況) 或 0 (不經由亞甲基而鍵結的情況)。

通式 (IV) 所表示的環氧樹脂中，較佳為 R^{21} 為甲基、i 為 1、j 為 0、k 為 0 的環氧樹脂。

【0031】 [化 5]

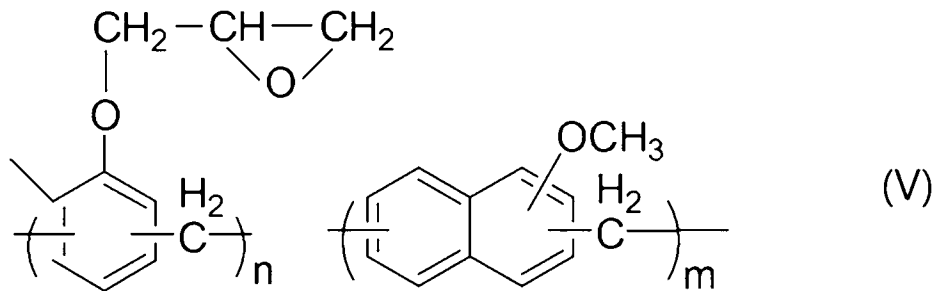


【0032】 作為所述通式 (IV) 所表示的環氧樹脂，可列舉：無規

地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的無規共聚物、交替地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的交替共聚物、規則地包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的共聚物、以嵌段狀包含 1 個結構單元及 m 個結構單元的嵌段共聚物等。可單獨使用該些的任一種，亦可將兩種以上組合而使用。

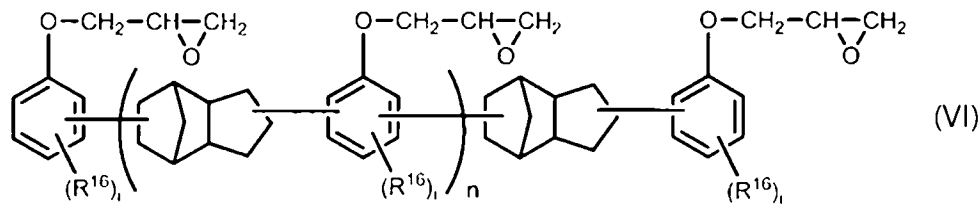
【0033】 作為共聚合型環氧樹脂，可為以無規、交替或嵌段的順序包含下述兩種結構單元的、下述通式 (V) 所表示的甲氧基萘-甲酚甲醛共縮合型環氧樹脂。下述通式 (V) 中， n 及 m 分別為平均值，且為 1~10 的數， $(n+m)$ 表示 2~10 的數，較佳為 n 及 m 分別為平均值，且為 1~9 的數， $(n+m)$ 表示 2~10 的數。

【0034】 [化 6]



【0035】 二環戊二烯型環氧樹脂只要為將具有二環戊二烯骨架的化合物作為原料來進行環氧化而獲得的環氧樹脂，則並無特別限定。例如較佳為下述通式 (VI) 所表示的環氧樹脂。

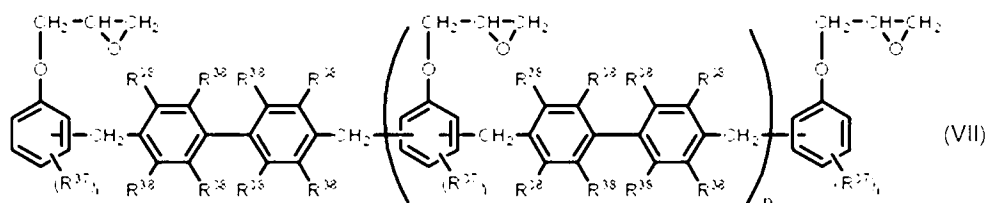
【0036】 [化 7]



【0037】 通式 (VI) 中， R^{16} 分別獨立地表示碳數 1~18 的一價有機基。 i 分別獨立地表示 0~3 的整數。 n 為平均值，且表示 0~10 的數。

【0038】 作為聯苯芳烷基型環氧樹脂，例如可列舉將苯酚、甲酚等酚化合物與由雙(甲氧基甲基)聯苯或其衍生物合成的酚樹脂作為原料的環氧樹脂。作為此種環氧樹脂，例如較佳為通式 (VII) 所表示的環氧樹脂。

【0039】 [化 8]



【0040】 通式 (VII) 中， R^{38} 分別獨立地表示氫原子或碳數 1~18 的一價有機基。 R^{37} 分別獨立地表示碳數 1~18 的一價有機基。 i 分別獨立地表示 0~3 的整數。 n 為平均值，且為 0~10 的數。

所述通式 (VII) 所表示的環氧樹脂中，較佳為 i 為 0、 R^{38} 為氫原子的環氧樹脂。

【0041】 萘型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂及聯苯芳烷基型環氧樹脂的合計含有率相對於特定環氧樹脂的整體而較佳為 50 質量%～100 質量%，更佳為 70 質量%～100 質量%，進而佳為 90 質量%～100 質量%。

【0042】 就適宜地減低電子零件裝置的翹曲的觀點而言，特定環氧樹脂的環氧當量較佳為 200 g/eq～1000 g/eq，更佳為 200 g/eq～500 g/eq。特定環氧樹脂的環氧當量設為利用依據日本工業標準（Japanese Industrial Standards, JIS）K 7236：2009 的方法而測定的值。

【0043】 本揭示的環氧樹脂組成物亦可包含所述特定環氧樹脂以外的環氧樹脂（以下，亦稱為「其他環氧樹脂」），亦可不包含。

【0044】 作為其他環氧樹脂，具體而言，可列舉：使苯酚、甲酚、二甲酚、間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F 等酚化合物與甲醛、乙醛、丙醛等脂肪族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得酚醛清漆樹脂，並使該酚醛清漆樹脂進行環氧化而獲得的酚醛清漆型環氧樹脂（苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、鄰甲酚酚醛清漆型環氧樹脂等）；使所述酚性化合物與苯甲醛、水楊醛等芳香族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得三苯基甲烷型酚樹脂，並使該三苯基甲烷型酚樹脂進行環氧化而獲得的三苯基甲烷型環氧樹脂；作為雙酚 A、雙酚 F 等的二縮水甘油醚的二苯基甲烷型環氧樹脂；作為經烷基取代或未經取代的聯苯酚的二縮水甘油醚的聯苯型環氧樹脂；作為二苯乙烯（stilbene）系酚化合物的二縮

水甘油醚的二苯乙烯型環氧樹脂；作為雙酚 S 等的二縮水甘油醚的含硫原子的環氧樹脂；作為丁二醇、聚乙二醇、聚丙二醇等醇類的縮水甘油醚的環氧樹脂；作為鄰苯二甲酸、間苯二甲酸、四氫鄰苯二甲酸等多元羧酸化合物的縮水甘油酯的縮水甘油酯型環氧樹脂；將苯胺、二胺基二苯基甲烷、異三聚氰酸等的鍵結於氮原子的活性氫以縮水甘油基取代而獲得的縮水甘油胺型環氧樹脂；使分子內的烯烴鍵進行環氧化而獲得的二環氧化乙炔基環己烯、3,4-環氧環己基甲基-3,4-環氧環己烷羧酸酯等脂環型環氧樹脂；作為對二甲苯改質酚樹脂的縮水甘油醚的對二甲苯改質環氧樹脂；作為間二甲苯改質酚樹脂的縮水甘油醚的間二甲苯改質環氧樹脂；作為萘烯改質酚樹脂的縮水甘油醚的萘烯改質環氧樹脂；作為環戊二烯改質酚樹脂的縮水甘油醚的環戊二烯改質環氧樹脂；鹵化苯酚酚醛清漆型環氧樹脂；對苯二酚型環氧樹脂；三羥甲基丙烷型環氧樹脂；利用過乙酸等過酸將烯烴鍵氧化而獲得的線狀脂肪族環氧樹脂；苯酚芳烷基樹脂等芳烷基型環氧樹脂等。進而，亦可列舉矽酮樹脂的環氧化物、丙烯酸樹脂的環氧化物等作為環氧樹脂。該些其他環氧樹脂可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0045】 其他環氧樹脂可包含聯苯型環氧樹脂及含硫原子的環氧樹脂的至少一者，亦可包含聯苯型環氧樹脂及含硫原子的環氧樹脂兩者。

【0046】 其他環氧樹脂的環氧當量並無特別限制。就成形性、耐

回焊性及電可靠性等各種特性平衡的觀點而言，其他環氧樹脂的環氧當量較佳為 100 g/eq～1000 g/eq，更佳為 150 g/eq～500 g/eq。環氧樹脂的環氧當量設為利用依據 JIS K 7236：2009 的方法而測定的值。

【0047】 於特定環氧樹脂或其他環氧樹脂為固體的情況下，特定環氧樹脂或其他環氧樹脂的軟化點或熔點並無特別限制。就成形性與耐回焊性的觀點而言，較佳為 40°C～180°C，就環氧樹脂組成物的製備時的操作性的觀點而言，更佳為 50°C～130°C。特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的熔點設為利用示差掃描熱量測定（differential scanning calorimetry，DSC）而測定的值。特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的軟化點設為利用依據 JIS K 7234：1986 的方法（環球法）而測定的值。

【0048】 特定環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率較佳為 5 質量%～50 質量%，更佳為 10 質量%～40 質量%，進而佳為 15 質量%～30 質量%。

【0049】 於環氧樹脂包含其他環氧樹脂的情況下，其他環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 50 質量%～95 質量%，亦可為 60 質量%～90 質量%，亦可為 70 質量%～85 質量%。

【0050】 於其他環氧樹脂包含聯苯型環氧樹脂的情況下，聯苯型環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 45 質量%～80 質量%，亦可為 50 質量%～75 質量%，亦可為 55 質量%～65 質量%。

【0051】 於其他環氧樹脂包含含硫原子的環氧樹脂的情況下，含

硫原子的環氧樹脂相對於環氧樹脂整體的含有率可為 5 質量%～30 質量%，亦可為 10 質量%～25 質量%，亦可為 15 質量%～20 質量%。

【0052】 就強度、黏度、耐熱性、成形性等的觀點而言，環氧樹脂組成物中的特定環氧樹脂及其他環氧樹脂的合計含有率較佳為 0.5 質量%～50 質量%，更佳為 2 質量%～30 質量%。

【0053】 [硬化劑]

本揭示的環氧樹脂組成物含有硬化劑。作為硬化劑，可列舉於分子中具有酚性羥基的酚硬化劑。

【0054】 作為酚硬化劑，例如可列舉於一分子中具有兩個以上的酚性羥基的酚樹脂及多元酚化合物。具體而言，可列舉：間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F、經取代或未經取代的聯苯酚等多元酚化合物；使選自由苯酚、間甲酚、對甲酚、二甲酚、間苯二酚、鄰苯二酚、雙酚 A、雙酚 F、苯基苯酚、胺基苯酚等苯酚化合物及 α -萘酚、 β -萘酚、二羥基萘等萘酚化合物所組成的群組中的至少一種酚性化合物、與甲醛、乙醛、丙醛、苯甲醛、水楊醛等醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得的酚醛清漆型酚樹脂；由所述酚化合物與二甲氧基對二甲苯、雙(甲氧基甲基)聯苯等合成的苯酚芳烷基樹脂、萘酚芳烷基樹脂等芳烷基型酚樹脂；對二甲苯改質酚樹脂及/或間二甲苯改質酚樹脂；三聚氰胺改質酚樹脂；萸烯改質酚樹脂；由所述酚性化合物與二環戊二烯藉由共聚合而合成的二環戊二烯型苯酚樹脂及二環戊二烯型萘酚樹脂；環

戊二烯改質酚樹脂；多環芳香環改質酚樹脂；聯苯型酚樹脂；使所述酚性化合物與苯甲醛、水楊醛等芳香族醛化合物於酸性觸媒下縮合或共縮合而獲得的三苯基甲烷型酚樹脂；將該些的兩種以上共聚合而獲得的酚樹脂等。該些酚硬化劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0055】 硬化劑的官能基當量（於分子中具有酚性羥基的硬化劑中，為羥基當量）並無特別限制。就成形性、耐回焊性、電可靠性等各種特性平衡的觀點而言，較佳為 70 g/eq~1000 g/eq，更佳為 80 g/eq~500 g/eq。

【0056】 硬化劑的官能基當量（於分子中具有酚性羥基的硬化劑中，為羥基當量）例如亦可為藉由依據 JIS K 0070：1992 的方法而測定的值。

【0057】 於硬化劑為固體的情況下，硬化劑的軟化點或熔點並無特別限制。就成形性與耐回焊性的觀點而言，較佳為 40°C~180°C，就環氧樹脂組成物的製造時的操作性的觀點而言，更佳為 50°C~130°C。

【0058】 硬化劑的熔點或軟化點設為與環氧樹脂的熔點或軟化點同樣地測定的值。

【0059】 環氧樹脂與硬化劑的當量比、即硬化劑中的官能基數相對於環氧樹脂中的環氧基數的比（硬化劑中的官能基數/環氧樹脂中的環氧基數）並無特別限制。就將各自的未反應成分抑制得少的觀點而言，較佳為設定為 0.5~2.0 的範圍，更佳為設定為 0.6~

1.3 的範圍。就成形性與耐回焊性的觀點而言，進而佳為設定為 0.8 ~ 1.2 的範圍。

【0060】 [硬化促進劑]

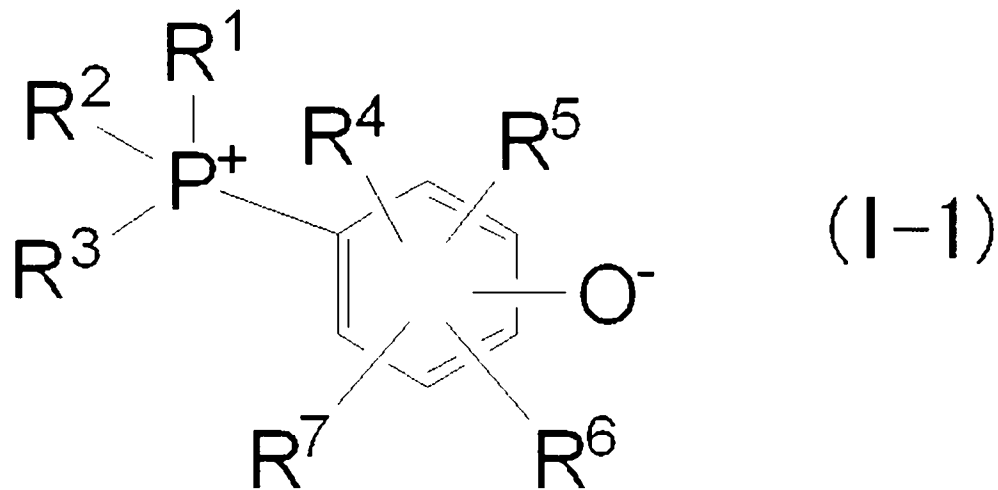
環氧樹脂組成物亦可包含硬化促進劑。硬化促進劑的種類並無特別限制，可根據環氧樹脂的種類、環氧樹脂組成物的所期望的特性等選擇。

【0061】 就硬化性及黏度的觀點而言，硬化促進劑較佳為含有磷化合物。作為磷化合物，具體而言，可列舉：三苯基磷、二苯基(對甲苯)磷、三(烷基苯基)磷、三(烷氧基苯基)磷、三(烷基·烷氧基苯基)磷、三(二烷基苯基)磷、三(三烷基苯基)磷、三(四烷基苯基)磷、三(二烷氧基苯基)磷、三(三烷氧基苯基)磷、三(四烷氧基苯基)磷、三烷基磷、二烷基芳基磷、烷基二芳基磷等三級磷；馬來酸酐、1,4-苯醌、2,5-甲苯醌、1,4-萘醌、2,3-二甲基苯醌、2,6-二甲基苯醌、2,3-二甲氧基-5-甲基-1,4-苯醌、2,3-二甲氧基-1,4-苯醌、苯基-1,4-苯醌等醌化合物、重氮苯基甲烷等具有 π 鍵的化合物加成而形成的具有分子內極化的化合物；於使所述三級磷或所述磷化合物與 4-溴苯酚、3-溴苯酚、2-溴苯酚、4-氯苯酚、3-氯苯酚、2-氯苯酚、4-碘苯酚、3-碘苯酚、2-碘苯酚、4-溴-2-甲基苯酚、4-溴-3-甲基苯酚、4-溴-2,6-二甲基苯酚、4-溴-3,5-二甲基苯酚、4-溴-2,6-二-第三丁基苯酚、4-氯-1-萘酚、1-溴-2-萘酚、6-溴-2-萘酚、4-溴-4'-羥基聯苯等鹵化酚化合物反應後經過脫鹵化氫的步驟而獲得的具有分子內極化的化合物；四苯基磷等四取代磷、四-對甲苯硼

酸鹽等不存在與硼原子鍵結的苯基的四取代磷及四取代硼酸鹽；四取代磷與自酚化合物脫離質子後的陰離子的鹽、四取代磷與自羧酸化合物脫離質子後的陰離子的鹽等。

【0062】 所述磷化合物中，較佳為下述通式 (I-1) 所表示的化合物 (以下，亦稱為特定硬化促進劑)。

【0063】 [化 9]



【0064】 式 (I-1) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地為碳數 1~18 的烴基， $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構， $R^4 \sim R^7$ 分別獨立地為氫原子、烴基或碳數 1~18 的一價有機基， $R^4 \sim R^7$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構。

【0065】 作為通式 (I-1) 的 $R^1 \sim R^3$ 所記載的「碳數 1~18 的烴基」包含碳數為 1~18 的脂肪族烴基及碳數為 6~18 的芳香族烴基。

【0066】 就黏度的觀點而言，碳數 1~18 的脂肪族烴基較佳為碳

數 1~8，更佳為 2~6，進而佳為 4~6。

【0067】 碳數 1~18 的脂肪族烴基可為碳數 1~18 的直鏈或分支狀的脂肪族烴基，亦可為碳數 3~18 的脂環式烴基。就容易製造的觀點而言，較佳為直鏈或分支狀的脂肪族烴基。

【0068】 作為碳數 1~18 的直鏈或分支狀的脂肪族烴基，具體而言，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、辛基、癸基、十二烷基等烷基、烯丙基、乙烯基等。直鏈或分支狀的脂肪族烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。直鏈或分支狀的脂肪族烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代基可相同亦可不同。於直鏈或分支狀的脂肪族烴基具有取代基的情況下，脂肪族烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 1~18。就硬化性的觀點而言，較佳為未經取代的烷基，更佳為碳數 1~8 的未經取代的烷基，進而佳為正丁基、異丁基、正戊基、正己基及正辛基。

【0069】 作為碳數 3~18 的脂環式烴基，具體而言，可列舉：環戊基、環己基、環庚基等環烷基、環戊烯基、環己烯基等環烯基等。脂環式烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲基、乙基、丁基、第三丁基等烷基、甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。脂環式烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代

基可相同亦可不同。於脂環式烴基具有取代基的情況下，脂環式烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 3~18。於脂環式烴基具有取代基的情況下，取代基的位置並無特別限定。就硬化性的觀點而言，較佳為未經取代的環烷基，更佳為碳數 4~10 的未經取代的環烷基，進而佳為環己基、環戊基及環庚基。

【0070】 碳數為 6~18 的芳香族烴基較佳為碳數 6~14，更佳為 6~10。芳香族烴基可具有取代基，亦可不具有取代基。作為取代基，可列舉：甲基、乙基、丁基、第三丁基等烷基、甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基等烷氧基、苯基、萘基等芳基、羥基、胺基、鹵素原子等。芳香族烴基可具有兩個以上的取代基，此時的取代基可相同亦可不同。於芳香族烴基具有取代基的情況下，芳香族烴基與取代基中所含的碳數的合計較佳為 6~18。於芳香族烴基具有取代基的情況下，取代基的位置並無特別限定。

【0071】 作為碳數為 6~18 的芳香族烴基，具體而言，可列舉：苯基、1-萘基、2-萘基、甲苯基、二甲基苯基、乙基苯基、丁基苯基、第三丁基苯基、甲氧基苯基、乙氧基苯基、丁氧基苯基、第三丁氧基苯基。該些芳香族烴基中的取代基的位置可為鄰位、間位及對位中的任一種。就黏度的觀點而言，較佳為未經取代且碳數為 6~12 或包含取代基的碳數為 6~12 的芳基，更佳為未經取代且碳數為 6~10 或包含取代基的碳數為 6~10 的芳基，進而佳為苯基、對甲苯基及對甲氧基苯基。

【0072】 作為通式 (I-1) 的 $R^1 \sim R^3$ 所記載的用語「 $R^1 \sim R^3$ 中的

兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構」是指 $R^1 \sim R^3$ 中的兩個或三個鍵結，整體成為一個二價或三價烴基的情況。作為此時的 $R^1 \sim R^3$ 的例子，可列舉：可與磷原子鍵結而形成環狀結構的伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基等伸烷基、伸乙炔基、伸丙炔基、伸丁炔基等伸烯基、亞甲基伸苯基等伸芳烷基、伸苯基、伸萘基、伸蒽基等伸芳基等、可與磷原子鍵結而形成環狀結構的取代基。該些取代基亦可進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代。

【0073】 作為所述通式 (I-1) 中的 $R^4 \sim R^7$ 所記載的「碳數 1~18 的一價有機基」是指包含碳數為 1~18 且可經取代亦可未經取代的脂肪族烴基、芳香族烴基、脂肪族烴氧基、芳香族烴氧基、醯基、烴氧基羰基、以及醯氧基。

【0074】 作為所述脂肪族烴基及芳香族烴基的例子，可列舉作為 $R^1 \sim R^3$ 所表示的脂肪族烴基及芳香族烴基的例子於上文敘述者。

【0075】 作為所述脂肪族烴氧基，可列舉：甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、2-丁氧基、第三丁氧基、環丙氧基、環己氧基、環戊氧基、烯丙氧基、乙烯氧基等所述脂肪族烴基上鍵結有氧原子的結構的氧基；該些脂肪族烴氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代的基等。

【0076】 作為所述芳香族烴氧基，可列舉：苯氧基、甲基苯氧基、乙基苯氧基、甲氧基苯氧基、丁氧基苯氧基、苯氧基苯氧基等所述芳香族烴基上鍵結有氧原子的結構的氧基；該些芳香族烴氧基

進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0077】 作為所述醯基，可列舉：甲醯基、乙醯基、乙基羰基、丁醯基、環己基羰基、烯丙基羰基等脂肪族烴羰基、苯基羰基、甲基苯基羰基等芳香族烴羰基等；該些脂肪族烴羰基或芳香族烴羰基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0078】 作為所述烴氧基羰基，可列舉：甲氧基羰基、乙氧基羰基、丁氧基羰基、烯丙氧基羰基、環己基氧基羰基等脂肪族烴氧基羰基、苯氧基羰基、甲基苯氧基羰基等芳香族烴氧基羰基、該些脂肪族烴羰氧基或芳香族烴羰氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0079】 作為所述醯氧基，可列舉：甲基羰氧基、乙基羰氧基、丁基羰氧基、烯丙基羰氧基、環己基羰氧基等脂肪族烴羰氧基、苯基羰氧基、甲基苯基羰氧基等芳香族烴羰氧基、該些脂肪族烴羰氧基或芳香族烴羰氧基進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、鹵素原子等取代的基等。

【0080】 作為所述通式 (I-1) 的 $R^4 \sim R^7$ 所記載的用語「兩個以上的 $R^4 \sim R^7$ 可相互鍵結而形成環狀結構」是指兩個～四個 $R^4 \sim R^7$ 鍵結，作為整體可形成一個二價～四價的有機基。作為此時的 $R^4 \sim R^7$ ，可列舉：伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基等伸烷基、伸乙炔基、伸丙炔基、伸丁炔基等伸烯基、亞甲基伸苯基

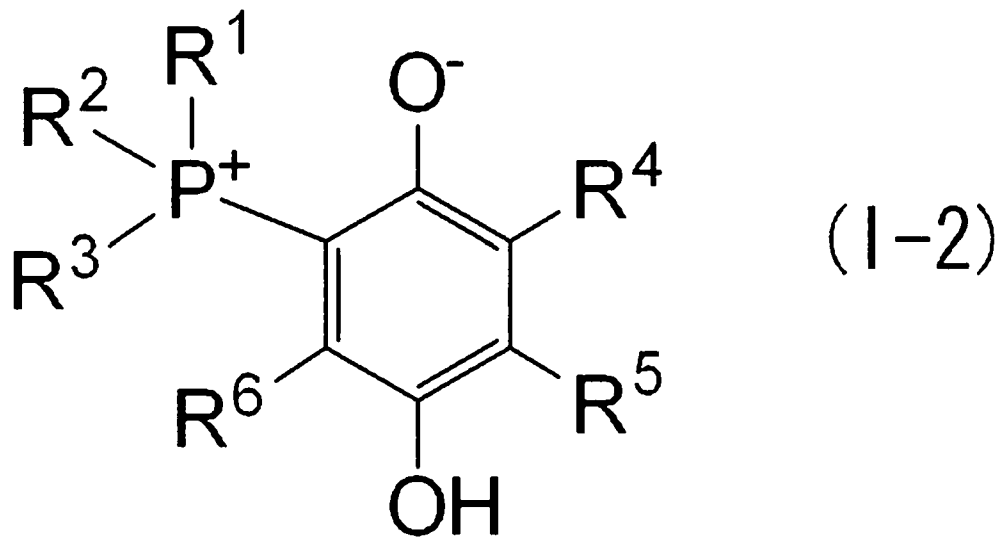
等伸芳烷基、伸苯基、伸萘基、伸蒽基等伸芳基等可形成環狀結構的取代基、該些的氧基或雙氧基等。該些取代基亦可進而經烷基、烷氧基、芳基、芳氧基、胺基、羥基、鹵素原子等取代。

【0081】 作為所述通式 (I-1) 的 $R^4 \sim R^7$ ，並無特別限定。例如較佳為分別獨立地選自氫原子、羥基、經取代或未經取代的烷基、經取代或未經取代的芳基、經取代或未經取代的烷氧基、或經取代或未經取代的芳氧基。其中，就原料的獲取容易性的觀點而言，較佳為氫原子、羥基、未經取代或經選自由烷基及烷氧基所組成的群組中的至少一種取代的芳基、或者鏈狀或環狀的烷基。作為未經取代或經選自由烷基及烷氧基所組成的群組中的至少一種取代的芳基，可列舉：苯基、對甲苯基、間甲苯基、鄰甲苯基、對甲氧基苯基等。作為鏈狀或環狀的烷基，可列舉：甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、2-丁基、第三丁基、辛基、環己基等。就硬化性的觀點而言，較佳為 $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子的情況、或者 $R^4 \sim R^7$ 中的至少一個為羥基、其餘全部為氫原子的情況。

【0082】 於通式 (I-1) 中，更佳為 $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上為碳數 1~18 的烷基或碳數 3~18 的環烷基， $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子或至少一個為羥基，其餘全部為氫原子。進而佳為 $R^1 \sim R^3$ 中的全部為碳數 1~18 的烷基或碳數 3~18 的環烷基， $R^4 \sim R^7$ 全部為氫原子或至少一個為羥基，其餘全部為氫原子。

【0083】 就快速硬化性的觀點而言，特定硬化促進劑較佳為下述通式 (I-2) 所表示的化合物。

【0084】 [化 10]



【0085】 式 (I-2) 中， $R^1 \sim R^3$ 分別獨立地為碳數 1~18 的烴基， $R^1 \sim R^3$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構， $R^4 \sim R^6$ 分別獨立地為氫原子或碳數 1~18 的一價有機基， $R^4 \sim R^6$ 中的兩個以上可相互鍵結而形成環狀結構。

【0086】 通式 (I-2) 中的 $R^1 \sim R^6$ 的具體例分別與通式 (I-1) 中的 $R^1 \sim R^6$ 的具體例相同，較佳範圍亦相同。

【0087】 作為特定硬化促進劑的具體例，可列舉：三苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三正丁基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三環己基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、二環己基苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、環己基二苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三異丁基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物、三環戊基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物等。

【0088】 特定硬化促進劑例如可作為第三磷化合物與醜化合物的加成物而獲得。

作為第三磷化合物，具體而言，可列舉：三苯基磷、三丁基磷、二丁基苯基磷、丁基二苯基磷、乙基二苯基磷、三(4-甲基苯基)磷、三(4-乙基苯基)磷、三(4-丙基苯基)磷、三(4-丁基苯基)磷、三(異丙基苯基)磷、三(第三丁基苯基)磷、三(2,4-二甲基苯基)磷、三(2,6-二甲基苯基)磷、三(2,4,6-三甲基苯基)磷、三(2,6-二甲基-4-乙氧基苯基)磷、三(4-甲氧基苯基)磷、三(4-乙氧基苯基)磷等。就成形性的觀點而言，較佳為三苯基磷及三丁基磷。

【0089】 作為醜化合物，具體而言，可列舉：鄰苯醌、對苯醌、聯苯醌、1,4-萘醌、蒽醌等。就耐濕性與保存穩定性的觀點而言，較佳為對苯醌。

【0090】 環氧樹脂組成物亦可包含磷化合物以外的硬化促進劑。

作為磷化合物以外的硬化促進劑，具體而言，可列舉：1,5-二氮雜雙環[4.3.0]壬烯-5（1,5-Diazabicyclo[4.3.0]nonene-5，DBN）、1,8-二氮雜雙環[5.4.0]十一烯-7（1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undecene-7，DBU）等二氮雜雙環烯烴、2-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-十七烷基咪唑等環狀脒化合物；所述環狀脒化合物的衍生物；所述環狀脒化合物或其衍生物的苯酚酚醛清漆鹽；於該些化合物上加成馬來酸酐、1,4-苯醌、2,5-甲苯醌、1,4-萘醌、2,3-二甲基苯醌、2,6-二甲基苯醌、2,3-二甲氧基-5-甲基-1,4-苯醌、2,3-二甲氧基-1,4-苯醌、苯基

-1,4-苯醌等醌化合物、重氮苯基甲烷等具有 π 鍵的化合物而形成的具有分子內極化的化合物；DBU 的四苯基硼酸鹽、DBN 的四苯基硼酸鹽、2-乙基-4-甲基咪唑的四苯基硼酸鹽、N-甲基嗎啉的四苯基硼酸鹽等環狀脒鎊化合物；吡啶、三乙胺、三乙二胺、苄基二甲基胺、三乙醇胺、二甲基胺基乙醇、三(二甲基胺基甲基)苯酚等三級胺化合物；所述三級胺化合物的衍生物；乙酸四正丁基銨、磷酸四正丁基銨、乙酸四乙基銨、苯甲酸四正己基銨、氫氧化四丙基銨等銨鹽化合物等。

【0091】 於環氧樹脂組成物含有特定硬化促進劑作為硬化促進劑的情況下，特定硬化促進劑的含有率較佳為硬化促進劑整體的 30 質量%以上，更佳為 50 質量%以上，進而佳為 70 質量%以上。特定硬化促進劑的含有率只要為硬化促進劑整體的 100 質量%以下即可。

【0092】 於環氧樹脂組成物包含硬化促進劑的情況下，硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.1 質量份～30 質量份，更佳為 1 質量份～15 質量份。若硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 0.1 質量份以上，則有短時間內良好地硬化的傾向。若硬化促進劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 30 質量份以下，則有硬化速度不會過快而可獲得良好的成形品的傾向。

【0093】 [無機填充材]

環氧樹脂組成物包含無機填充材。

無機填充材的種類並無特別限制。具體而言，可列舉：熔融

二氧化矽、晶體二氧化矽、玻璃、氧化鋁、碳酸鈣、矽酸鋯、矽酸鈣、氮化矽、氮化鋁、氮化硼、氧化鈹、氧化鋯、鋯石、鎂橄欖石、塊滑石、尖晶石、富鋁紅柱石、氧化鈦、滑石、黏土、雲母等無機材料。亦可使用具有阻燃效果的無機填充材。作為具有阻燃效果的無機填充材，可列舉：氫氧化鋁、氫氧化鎂、鎂與鋅的複合氫氧化物等複合金屬氫氧化物、硼酸鋅等。其中，就線膨脹係數減低的觀點而言，較佳為熔融二氧化矽，就高熱傳導性的觀點而言，較佳為氧化鋁。無機填充材可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。作為無機填充材的狀態，可列舉：粉末、將粉末球形化的顆粒、纖維等。

【0094】 再者，所謂「將兩種以上的無機填充材組合而使用」，例如可列舉：將成分相同、平均粒子徑不同的無機填充材使用兩種以上的情況；將平均粒子徑相同、成分不同的無機填充材使用兩種以上的情況以及將平均粒子徑及種類不同的無機填充材使用兩種以上的情況。

【0095】 另外，無機填充材的含有率相對於環氧樹脂組成物整體而為 87.0 質量%以上，就電子零件裝置的翹曲的抑制及黏度的觀點而言，較佳為 88.0 質量%~95.0 質量%，更佳為 89.0 質量%~94.0 質量%，進而佳為 90.0 質量%~93.0 質量%，可為 91.0 質量%~93.0 質量%。

【0096】 於無機填充材包含氧化鋁的情況下，氧化鋁的含有率較佳為無機填充材整體的 40 質量%~80 質量%，更佳為 50 質量%~

80 質量%，進而佳為 60 質量%～75 質量%。

【0097】 無機填充材的平均粒子徑並無特別限制。例如，體積平均粒子徑較佳為 0.2 μm ～80 μm ，更佳為 0.5 μm ～70 μm 。若體積平均粒子徑為 0.2 μm 以上，則有可進一步抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 80 μm 以下，則有對狹小的縫隙的填充性進一步提高的傾向。無機填充材的體積平均粒子徑可藉由雷射繞射散射法粒度分佈測定裝置以體積平均粒子徑（D50）的形式測定。

【0098】 環氧樹脂組成物或其硬化物中的無機填充材的體積平均粒子徑可利用公知的方法來進行測定。例如，使用有機溶劑、硝酸、王水等自環氧樹脂組成物或硬化物中萃取無機填充材，利用超音波分散機等充分地分散而製備分散液。可使用該分散液，並根據利用雷射繞射散射法粒度分佈測定裝置而測定的體積基準的粒度分佈來測定無機填充材的體積平均粒子徑。或者，可將硬化物埋入至透明的環氧樹脂等中，進行研磨而獲得剖面，根據利用掃描式電子顯微鏡觀察所獲得的剖面而獲得的體積基準的粒度分佈來測定無機填充材的體積平均粒子徑。進而，亦可藉由如下方式來測定：使用聚焦離子束（Focused Ion Beam，FIB）裝置（聚焦離子束掃描式電子顯微鏡（Scanning Electron Microscope，SEM））等連續進行硬化物的二維的剖面觀察，並進行三維結構分析。

【0099】 無機填充材的最大粒子徑（亦稱為割點（cutpoint））並

無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，無機填充材的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0100】 就環氧樹脂組成物的混練性的觀點而言，關於無機填充材的粒子形狀，球形優於角形，且較佳為無機填充材的粒度分佈以廣範圍進行分佈。

【0101】 於獲得高熱傳導性的硬化物的情況下，無機填充材較佳為包含氧化鋁，更佳為包含氧化鋁作為主成分。無機填充材包含氧化鋁時的氧化鋁的平均粒子徑並無特別限制。例如氧化鋁的體積平均粒子徑較佳為 0.2 μm ~ 80 μm ，更佳為 0.5 μm ~ 70 μm 。若體積平均粒子徑為 0.2 μm 以上，則有可抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 80 μm 以下，則有對狹小的縫隙的填充性提高的傾向。

【0102】 氧化鋁的最大粒子徑並無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，氧化鋁的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0103】 於較佳的一實施形態中，亦可將體積平均粒子徑為 0.1 μm ~ 2.0 μm 、較佳為 0.2 μm ~ 1.5 μm 、更佳為 0.3 μm ~ 1.0 μm 的氧化鋁、與體積平均粒子徑超過 2.0 μm 且為 75 μm 以下、較佳為 5.0 μm ~ 55 μm 、更佳為 8.0 μm ~ 20 μm 的氧化鋁併用。藉由併用平均粒子徑不同的兩種以上的氧化鋁，有可使填充性適宜的傾向。

【0104】 氧化鋁的形狀並無特別限制。就環氧樹脂組成物的混練

性的觀點而言，氧化鋁的粒子形狀較佳為球形。

【0105】 於無機填充材包含氧化鋁的情況下，無機填充材較佳為除了氧化鋁以外包含二氧化矽。若無機填充材包含二氧化矽，則有黏度下降，可提高混練性及流動性的傾向，特別是，藉由併用微細的二氧化矽，有可抑制製成硬化物時的毛邊的產生的傾向。特別是，無機填充材較佳為包含微粒二氧化矽、例如體積平均粒子徑為 $0.01\ \mu\text{m} \sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、更佳為 $0.1\ \mu\text{m} \sim 1.5\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 1.0\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。就彈性係數的減低、線膨脹係數的減低的觀點而言，無機填充材較佳為包含大粒子徑二氧化矽。

作為大粒徑二氧化矽，可列舉體積平均粒子徑較佳為超過 $2.0\ \mu\text{m}$ 且為 $75\ \mu\text{m}$ 以下、更佳為 $5.0\ \mu\text{m} \sim 55\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $8.0\ \mu\text{m} \sim 20\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。

【0106】 就耐回焊性、抑制黏度的上升等的觀點而言，無機填充材較佳為包含二氧化矽，亦可包含二氧化矽作為主成分。無機填充材包含二氧化矽時的二氧化矽的平均粒子徑並無特別限制。例如二氧化矽的體積平均粒子徑較佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 80\ \mu\text{m}$ ，更佳為 $0.5\ \mu\text{m} \sim 70\ \mu\text{m}$ 。若體積平均粒子徑為 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上，則有可抑制環氧樹脂組成物的黏度的上升的傾向。若體積平均粒子徑為 $80\ \mu\text{m}$ 以下，則有對狹小的縫隙的填充性提高的傾向。另外，無機填充材較佳為包含微粒二氧化矽、例如體積平均粒子徑為 $0.01\ \mu\text{m} \sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、更佳為 $0.1\ \mu\text{m} \sim 1.5\ \mu\text{m}$ 、進而佳為 $0.2\ \mu\text{m} \sim 1.0\ \mu\text{m}$ 的二氧化矽。若無機填充材包含微粒二氧化矽，則有對狹部的填充性提高，

可抑制製成硬化物時的毛邊的產生的傾向。

【0107】 二氧化矽的最大粒子徑並無特別限制。就對狹小的縫隙的填充性的觀點而言，二氧化矽的最大粒子徑較佳為 150 μm 以下，更佳為 75 μm 以下，進而佳為 55 μm 以下。

【0108】 二氧化矽的形狀並無特別限制。就環氧樹脂組成物的混練性的觀點而言，二氧化矽的粒子形狀較佳為球形。

【0109】 於無機填充材包含二氧化矽的情況下，二氧化矽的含有率並無特別限定，相對於無機填充材的整體而可為 70 質量%~100 質量%，亦可為 80 質量%~100 質量%，亦可為 90 質量%~100 質量%。另外，將二氧化矽與氧化鋁併用時的二氧化矽的含有率相對於無機填充材的整體而可為 20 質量%~60 質量%，亦可為 20 質量%~50 質量%，亦可為 25 質量%~40 質量%。

【0110】 [各種添加劑]

環氧樹脂組成物除了所述成分以外，亦可包含以下例示的偶合劑、離子交換體、脫模劑、阻燃劑、著色劑、應力緩和劑等各種添加劑。環氧樹脂組成物除了以下例示的添加劑以外，亦可視需要包含於本技術領域中周知的各種添加劑中。

【0111】 (偶合劑)

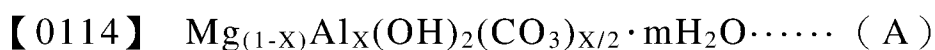
於環氧樹脂組成物包含無機填充材的情況下，為了提高樹脂成分與無機填充材的接著性，亦可包含偶合劑。作為偶合劑，可列舉：環氧基矽烷、巰基矽烷、胺基矽烷、烷基矽烷、醯脲矽烷、乙烯基矽烷等矽烷系化合物、鈦系化合物、鋁螯合物化合物、鋁/

鋳系化合物等公知的偶合劑。

【0112】 於環氧樹脂組成物包含偶合劑的情況下，偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而較佳為 0.05 質量份～5 質量份，更佳為 0.1 質量份～2.5 質量份。若偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而為 0.05 質量份以上，則有與框架（frame）的接著性進一步提高的傾向。若偶合劑的量相對於無機填充材 100 質量份而為 5 質量份以下，則有封裝的成形性進一步提高的傾向。

【0113】 （離子交換體）

環氧樹脂組成物亦可包含離子交換體。特別是，於將環氧樹脂組成物用作密封用成形材料的情況下，就使包括進行了密封的元件的電子零件裝置的耐濕性及高溫放置特性提高的觀點而言，較佳為包含離子交換體。離子交換體並無特別限制，可使用現有公知者。具體而言，可列舉水滑石化合物、以及含有選自由鎂、鋁、鈦、鋯及鈹所組成的群組中的至少一種元素的氫氧化物等。離子交換體可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。其中，較佳為下述通式（A）所表示的水滑石。



（ $0 < x \leq 0.5$ ， m 為正數）

【0115】 於環氧樹脂組成物包含離子交換體的情況下，離子交換體的含量只要為對於捕捉鹵素離子等離子而言充分的量，則並無特別限制。例如相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.1 質量份～30 質量份，更佳為 1 質量份～15 質量份。

【0116】（脫模劑）

就獲得成形時的與模具的良好的脫模性的觀點而言，環氧樹脂組成物亦可包含脫模劑。脫模劑並無特別限制，可使用現有公知者。具體而言，可列舉：棕櫚蠟（carnauba wax）、二十八酸、硬脂酸等高級脂肪酸、高級脂肪酸金屬鹽、二十八酸酯等酯系蠟、氧化聚乙烯、非氧化聚乙烯等聚烯烴系蠟等。脫模劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0117】 於環氧樹脂組成物包含脫模劑的情況下，所述脫模劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 0.01 質量份～15 質量份，更佳為 0.1 質量份～10 質量份。若脫模劑的量相對於樹脂成分 100 質量份而為 0.01 質量份以上，則有可充分獲得脫模性的傾向。若為 15 質量份以下，則有可獲得更良好的接著性的傾向。

【0118】 其中，環氧樹脂組成物包含脫模劑，脫模劑的含有率相對於環氧樹脂組成物的總質量而較佳為超過 0 質量%且為 2 質量%以下，更佳為超過 0 質量%且為 1.5 質量%以下，進而佳為超過 0 質量%且為 1.2 質量%以下。藉由以所述含有率含有脫模劑，與含有比所述含有率多的情況相比，有可抑制使外觀、接著力及雷射打印性顯著下降的傾向。另外，根據本揭示的環氧樹脂組成物，有即便脫模劑的含有率為所述範圍內亦可維持良好的脫模性的傾向。

【0119】（阻燃劑）

環氧樹脂組成物亦可包含阻燃劑。阻燃劑並無特別限制，可

使用現有公知者。具體而言，可列舉包含鹵素原子、銻原子、氮原子或磷原子的有機化合物或無機化合物、金屬氫氧化物等。阻燃劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0120】 於環氧樹脂組成物包含阻燃劑的情況下，阻燃劑的量只要為對於獲得所需的阻燃效果而言充分的量，則並無特別限制。例如相對於樹脂成分 100 質量份而較佳為 1 質量份～300 質量份，更佳為 2 質量份～150 質量份。

【0121】 （著色劑）

環氧樹脂組成物亦可更包含著色劑。作為著色劑，可列舉：碳黑、有機染料、有機顏料、氧化鈦、鉛丹、氧化鐵等公知的著色劑。著色劑的含量可根據目的等適宜選擇。著色劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。

【0122】 （應力緩和劑）

環氧樹脂組成物亦可包含矽油、矽酮橡膠粒子等應力緩和劑。藉由包含應力緩和劑，可進一步減低封裝的翹曲變形及封裝裂紋的產生。作為應力緩和劑，可列舉通常使用的公知的應力緩和劑（可撓劑）。具體而言，可列舉：矽酮系、苯乙烯系、烯烴系、胺基甲酸酯系、聚酯系、聚醚系、聚醯胺系、聚丁二烯系等熱塑性彈性體，天然橡膠（natural rubber，NR）、丙烯腈-丁二烯橡膠（acrylonitrile butadiene rubber，NBR）、丙烯酸橡膠、胺基甲酸酯橡膠、矽酮粉末等橡膠粒子，甲基丙烯酸甲酯-苯乙烯-丁二烯共聚物（Methacrylate methyl styrene butadiene，MBS）、甲基丙烯酸甲

酯-矽酮共聚物、甲基丙烯酸甲酯-丙烯酸丁酯共聚物等具有核-殼結構的橡膠粒子等。應力緩和劑可單獨使用一種，亦可將兩種以上組合而使用。其中，較佳為矽酮系應力緩和劑。作為矽酮系應力緩和劑，可列舉：具有環氧基者、具有胺基者、將該些進行聚醚改質而成者等。

【0123】（環氧樹脂組成物的製備方法）

環氧樹脂組成物的製備方法並無特別限制。作為通常的方法，可列舉如下方法：於藉由混合機等將規定調配量的成分充分混合後，藉由研磨輥、擠出機等來進行熔融混練，進行冷卻並加以粉碎。更具體而言，例如可列舉如下方法：將規定量的所述成分均勻地攪拌並加以混合，利用預先加熱為 $70^{\circ}\text{C}\sim 140^{\circ}\text{C}$ 的捏合機、輥、擠壓機等進行混練並加以冷卻，進行粉碎。

進而，利用孔徑 2.0 mm 的篩子對藉由粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物進行篩選，回收通過了篩子的粉碎物，藉此可獲得最大粒徑為 2.0 mm 以下的環氧樹脂組成物。藉由對所使用的篩子的孔徑進行變更，可調節環氧樹脂組成物的最大粒徑。

【0124】〈電子零件裝置〉

作為本揭示的一實施形態的電子零件裝置包括：元件；以及將所述元件密封的所述環氧樹脂組成物的硬化物。

作為電子零件裝置，可列舉利用環氧樹脂組成物對如下元件部進行密封而得者，所述元件部是於引線框架、已配線的輸送膠帶、配線板、玻璃、矽晶圓、有機基板等支撐構件上搭載元件（半

導體晶片、電晶體、二極體、閘流體等主動元件、電容器、電阻體、線圈等被動元件等)而獲得。

更具體而言，可列舉：雙列直插式封裝 (Dual Inline Package, DIP)、塑膠引線晶片載體 (Plastic Leaded Chip Carrier, PLCC)、四面扁平封裝 (Quad Flat Package, QFP)、小外型封裝 (Small Outline Package, SOP)、小外型 J-引線封裝 (Small Outline J-lead package, SOJ)、薄小外型封裝 (Thin Small Outline Package, TSOP)、薄型四面扁平封裝 (Thin Quad Flat Package, TQFP) 等通常的樹脂密封型 IC，其具有於將元件固定於引線框架上且以打線接合、凸塊等連接接合墊等元件的端子部與引線部後，使用環氧樹脂組成物進行密封的結構；載帶封裝 (Tape Carrier Package, TCP)，其具有利用環氧樹脂組成物對以凸塊連接於載帶上的元件進行密封的結構；基板覆晶 (Chip On Board, COB) 模組、混合 IC、多晶模組等，其具有利用環氧樹脂組成物對以打線接合、倒裝晶片接合、焊料等連接於支撐構件上所形成的配線上的元件進行密封的結構；球柵陣列 (Ball Grid Array, BGA)、晶片尺寸封裝 (Chip Size Package, CSP)、多晶片封裝 (Multi Chip Package, MCP) 等，其具有於背面形成配線板連接用端子的支撐構件的表面上搭載元件，並藉由凸塊或打線接合將元件與支撐構件上形成的配線連接後，利用環氧樹脂組成物密封元件的結構。另外，於印刷配線板中亦可適宜地使用環氧樹脂組成物。

[實施例]

【0125】 以下，藉由實施例對本發明進行具體說明，但本發明並不限定於該些實施例。

【0126】 〔環氧樹脂組成物的製備〕

將下述材料以表 1 中記載的組成混合，於混練溫度 100°C 的條件下使用雙軸混練機進行混練，藉此分別製備環氧樹脂組成物。利用孔徑 1.0 mm 的篩子對將所述環氧樹脂組成物粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物進行篩選，回收通過了篩子的粉碎物，藉此獲得最大粒徑為 1.0 mm 以下的各實施例及比較例的環氧樹脂組成物。

再者，以下的表中的「-」是指未調配此成分。

【0127】 （環氧樹脂）

環氧樹脂 1：具有聯苯骨架的環氧樹脂（環氧當量：196 g/eq、相當於其他環氧樹脂）

環氧樹脂 2：多個萘環藉由醚基而鍵結且於末端的兩個萘環上分別鍵結一個縮水甘油醚基的環氧樹脂（環氧當量：250 g/eq、相當於特定環氧樹脂）

環氧樹脂 3：雙酚 S 的二縮水甘油醚即含硫原子的環氧樹脂（環氧當量：245 g/eq、相當於其他環氧樹脂）

【0128】 （硬化劑）

·硬化劑：三苯基甲烷型酚樹脂（羥基當量 104 g/eq）

（硬化促進劑）

·硬化促進劑：三苯基磷與 1,4-苯醌的加成反應產物

(偶合劑)

·偶合劑 1：3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷

·偶合劑 2：3-巰基丙基三甲氧基矽烷

(離子捕捉劑)

·氫氧化鎂鋁-碳酸酯-水合物

(添加劑)

·脫模劑：二十八酸酯蠟

·著色劑：碳黑

(應力緩和劑)

·應力緩和劑 1：具有環氧基的矽酮系應力緩和劑

·應力緩和劑 2：包含下述結構單元的應力緩和劑

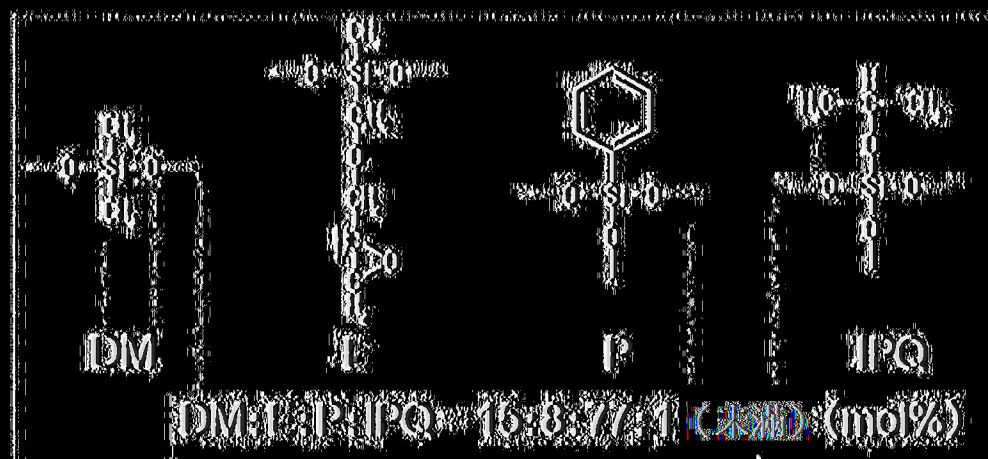
(無機填充材)

·無機填充材 1：微粒子二氧化矽 (平均粒子徑 0.5 μm)

·無機填充材 2：大粒子二氧化矽 (平均粒子徑 10 μm)

·無機填充材 3：氧化鋁/二氧化矽=體積比 9/1 的混合物 (平均粒子徑：10 μm)

【0129】 [化 11]



〔0130〕〔環氧樹脂組成物的評價〕

藉由以下的特性試驗對實施例及比較例中製備的環氧樹脂組成物的特性進行評價。將結果示於表 1 中。

〔0131〕（1）旋流（Spiral Flow，SF）

使用依據 JEMMI-1-66 的旋流測定用模具，於模具溫度 150°C、成形壓力 6.9 MPa、硬化時間 180 秒的條件下將環氧樹脂組成物成形，並求出流動距離（cm）。

〔0132〕（2）凝膠時間（Gel Time，GT）

環氧樹脂組成物的凝膠時間是使用固拉斯特米特（curelasmeter）（JSR 交易（trading）股份有限公司），於試樣量 1.5 ml、160°C 的條件下進行測定。將所獲得的圖表的轉矩開始上升的時間設為凝膠時間（秒）。

〔0133〕（3）玻璃轉移溫度（T_g）、CTB1（α1）及 CTB2（α2）

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，

獲得 4 mm×4 mm×20 mm 的成形物。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化，使用熱機械分析裝置(耐馳(NETZSCH) 公司、TMA4000SE)來測定線膨脹係數 (CTE)。測定溫度範圍設為 30°C~260°C，升溫速度設為 10°C/分鐘。

將 40°C~80°C的範圍內的 CTE 的平均值設為 α_1 ，將 230°C~250°C的 CTE 的平均值設為 α_2 。

將 40°C~80°C的範圍內的 CTE 的切線與 230°C~250°C下的 CTE 的切線的交點設為玻璃轉移溫度 (T_g)。

【0134】 (4) 室溫彈性係數及高溫彈性係數

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，獲得長度 50 mm×寬度 5 mm×厚度 2 mm 的成形物。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化而獲得硬化物。其後，使用黏彈性測定裝置 RSA-3 (TA 儀器 (TA Instrument) 公司)，於三點彎曲模式、升溫速度 10°C/min、頻率 1 Hz 的條件下測定彈性係數。根據測定結果，分別求出室溫 (25°C) 下的彈性係數 (室溫彈性係數) 及 260°C 下的彈性係數 (高溫彈性係數)。

【0135】 (5) 熱時硬度

藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下將環氧樹脂組成物成形，使用蕭氏 D 型硬度計 (上島製作所股份有限公司製造、HD-1120 (D 型)) 對 175°C 下的熱時硬度進行測定。

【0136】 (6) 140°C下的黏度

對環氧樹脂組成物進行加熱而使其熔融，使用流變儀 AR2000 (TA 儀器 (TA Instrument) 製造)，於 40 mm 的平行板上且於剪切速度：32.5/sec 的條件下對 140°C 下的黏度進行測定。

【0137】 (7) 成形收縮率

使用環氧樹脂組成物，並藉由轉注成形機而於模具溫度 175°C、硬化時間 90 秒、成形壓力 6.9 MPa 的條件下進行成形，獲得成形物（相當於後硬化前的硬化物）。使所獲得的成形物於 175°C、6 小時的條件下完全硬化而獲得硬化物（相當於後硬化後的硬化物）。基於以下的式來求出後硬化前後的成形收縮率。

成形收縮率 (%) = { (後硬化前的硬化物的長度 - 後硬化後的硬化物的長度) / (後硬化前的硬化物的長度) } × 100

所述硬化物的長度是呈矩形的硬化物的任意一邊的長度。

【0138】 (8) 熱傳導率

使用環氧樹脂組成物，並藉由壓縮成形機而於模具溫度 175°C ~ 180°C、成形壓力 7 MPa、硬化時間 150 秒的條件下將半導體元件密封，製作熱傳導率評價用試驗片。繼而，藉由氙閃光 (Xe-flash) 法來對試驗片的熱傳導率進行測定。

【0139】 [表 1]

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	比較例 1	比較例 2
環氧樹脂 1	60	70	60	70	80	60
環氧樹脂 2	20	10	20	10	0	20
環氧樹脂 3	20	20	20	20	20	20
硬化劑	50.7	49.3	49.3	49.3	49.3	49.3
硬化促進劑	2	2	1.7	1.7	1.7	2.0
偶合劑 1	10	10	10	10	10	10
偶合劑 2	2	2	2	2	2	2
脫模劑	1	1	1	1	1	1
離子捕捉劑	10	10	10	10	10	10
著色劑	5	5	5	5	5	5
應力緩和劑 1	15					
應力緩和劑 2		15	15	15	15	15
無機填充材 1	147.0	133.0	133.0	133.0	133.0	87.00
無機填充材 2	442.0	386.0	386.0	386.0	386.0	260.00
無機填充材 3	1526.0	1401.0	1401.0	1401.0	1401.0	898.00
合計	2310.7	2114.3	2114.0	2114.0	2114.0	1439.3
無機填充材的含有率 (體積%)	80.5	80.5	79.0	79.0	79.0	71.0
無機填充材的含有率 (質量%)	91.5	91.5	90.8	90.8	90.8	86.5
SF (cm)	160	180	170	170	180	250
GT (sec)	60	77	73	75	75	60
Tg (°C)	160	165	150	150	145	160
$\alpha 1$ (ppm/°C)	10	10	11	11	13	18
$\alpha 2$ (ppm/°C)	34	35	38	40	42	50
室溫彈性係數 (GPa)	38	36	36	35	35	25
高溫彈性係數 (GPa)	0.8	1	0.8	0.7	0.6	0.5
熱時硬度@175°C	81	81	80	80	80	80
黏度@140°C (Pa·s)	110	68	61	60	75	40
成形收縮率 (%)	0.1	0.12	0.14	0.16	0.16	0.3
熱傳導率 (W/m·K)	3	3	2.8	2.8	2.8	1.5

【0140】 如表 1 所示，藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物，與使用比較例 1 及比較例 2 的環氧樹脂組成物的情況相比，有 $\alpha 1$ 及 $\alpha 2$ 的值小且成形收縮率的值亦低的傾向。因此，藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物來製造電子零件裝置，可抑制電子零件裝置中的翹曲。

【0141】 〔溶解性的評價〕

以表 1 中記載的實施例 1 的組成來製備環氧樹脂組成物。將所製備的環氧樹脂組成物粉碎而獲得的粒子狀的環氧樹脂組成物設為比較例 3 的環氧樹脂組成物。比較例 3 的環氧樹脂組成物未利用篩子進行篩選而組成物的最大粒徑超過 2.0 mm。使用最大粒徑為 1.0 mm 以下的實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物與比較例 3 的環氧樹脂組成物，如以下般對熔解性進行評價。

首先，將鋁製的杯（ $\Phi 5.5$ cm）配置於加熱板上後，於杯內在水平方向上分別平鋪實施例 1～實施例 4 及比較例 3 的環氧樹脂組成物 5 g。其後，將平鋪有環氧樹脂組成物的杯於 175°C 下加熱 3 分鐘，對加熱後的環氧樹脂組成物的外觀進行確認，並對環氧樹脂組成物的熔解狀況進行確認。實施例 1～實施例 4 中，與比較例 3 相比，均勻性高且整體熔解，而且基本上未確認到熔解殘留。藉此，推測藉由使用實施例 1～實施例 4 的環氧樹脂組成物而可抑制導線偏移。

【0142】 於 2021 年 9 月 2 日提出申請的日本專利申請案 2021-143465 的揭示的全部內容藉由參照而併入至本說明書中。

本說明書中所記載的所有文獻、專利申請案及技術規格是與具體且分別記載各文獻、專利申請案及技術規格藉由參照而併入的情況相同程度地，藉由參照而併入至本說明書中。