

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7276151号  
(P7276151)

(45)発行日 令和5年5月18日(2023.5.18)

(24)登録日 令和5年5月10日(2023.5.10)

(51)国際特許分類	F I	
C 0 8 L 63/00 (2006.01)	C 0 8 L 63/00	C
C 0 8 K 3/22 (2006.01)	C 0 8 K 3/22	
C 0 8 K 3/36 (2006.01)	C 0 8 K 3/36	
C 0 8 G 59/20 (2006.01)	C 0 8 G 59/20	
C 0 8 G 59/62 (2006.01)	C 0 8 G 59/62	

請求項の数 12 (全23頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2019-562938(P2019-562938)	(73)特許権者	000004455 株式会社レゾナック 東京都港区芝大門1丁目13番9号
(86)(22)出願日	平成30年12月10日(2018.12.10)	(74)代理人	110001519 弁理士法人太陽国際特許事務所
(86)国際出願番号	PCT/JP2018/045350	(72)発明者	山浦 格 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内
(87)国際公開番号	WO2019/131097	(72)発明者	田中 実佳 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内
(87)国際公開日	令和1年7月4日(2019.7.4)	(72)発明者	姜 東哲 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内
審査請求日	令和3年10月8日(2021.10.8)	(72)発明者	石橋 健太
(31)優先権主張番号	特願2017-254882(P2017-254882)		
(32)優先日	平成29年12月28日(2017.12.28)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物、エポキシ樹脂硬化物及び電子部品装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ビスフェノールF型エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂と、硬化剤と、  
アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超15質量%以下含む無機充填材と、可塑剤と、  
を含有し、

前記無機充填材の含有率が75体積%～84体積%であり、  
前記ビスフェノールF型エポキシ樹脂及び前記ビフェニル型エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂の含有率が、前記エポキシ樹脂の全量に対して、10質量%以下である、  
ボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項2】

前記無機充填材が、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超10質量%以下含む、請求項1に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項3】

前記硬化剤が、水酸基当量150g/eq以下のフェノール硬化剤を含む、請求項1又は請求項2に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項4】

前記硬化剤が、1分子中に3個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂を含む、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項5】

前記硬化剤が、トリフェニルメタン型フェノール樹脂を含む、請求項1～請求項4のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項6】

前記無機充填材の空隙率が18体積%以下である請求項1～請求項5のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項7】

前記無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が1μm以下の粒子の割合が9体積%以上であり、粒子径が1μmを超え10μm以下の粒子の割合が45体積%以下であり、粒子径が10μmを超え30μm以下の粒子の割合が20体積%以上であり、粒子径が30μmを超える粒子の割合が18体積%以上である、請求項1～請求項6のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項8】

前記無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が1μm以下の粒子の割合が11体積%以上であり、粒子径が1μmを超え10μm以下の粒子の割合が40体積%以下であり、粒子径が10μmを超え30μm以下の粒子の割合が22体積%以上であり、粒子径が30μmを超える粒子の割合が20体積%以上である請求項7に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項9】

前記ビスフェノールF型エポキシ樹脂の含有率が、前記エポキシ樹脂の全量に対して10質量%～75質量%である、請求項1～請求項8のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項10】

前記ビフェニル型エポキシ樹脂の含有率が、前記エポキシ樹脂の全量に対して20質量%～90質量%である、請求項1～請求項9のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項11】

請求項1～請求項10のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物。

【請求項12】

素子と、前記素子を封止している請求項11に記載のエポキシ樹脂硬化物と、を有し、ボールグリッドアレイパッケージの形態を有する、電子部品装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、ボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物、エポキシ樹脂硬化物及び電子部品装置に関する。

【背景技術】

【0002】

電子機器の小型化及び薄型化による高密度実装の要求が、近年、急激に増加している。このため、半導体パッケージは、従来のピン挿入型に代わり、高密度実装に適した表面実装型が主流になっている。表面実装型の半導体パッケージは、プリント基板等に直接はんだ付けすることにより実装される。一般的な実装方法としては、赤外線リフロー法、ペーパーフェーズリフロー法、はんだディップ法等により、半導体パッケージ全体を加熱して実装する方法が挙げられる。

【0003】

近年、実装密度をより高めるため、表面実装型の半導体パッケージの中でも、ボールグ

10

20

30

40

50

リッドアレイ (Ball Grid Array、以下BGAともいう) 等のエリア実装パッケージが広く用いられている。BGAパッケージは、基板の半導体素子搭載面が樹脂組成物で封止された片面樹脂封止型パッケージとなっている。封止用の樹脂組成物としては、成形性、電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性等の諸特性のバランスの観点から、エポキシ樹脂組成物が広く使用されている。

【0004】

一方、近年、電子部品の分野では高速化及び高密度化が進んでおり、それに伴って、電子部品の発熱量が顕著に増大している。また、高温下で作動する電子部品に対する需要も増加している。そのため、電子部品に使用されるプラスチック、特にエポキシ樹脂の硬化物に対しては、熱伝導性の向上が求められている。特にBGAパッケージでは、小型化、高密度化の要求から封止用の樹脂組成物の高い熱伝導性が求められている。BGAパッケージ等において、エポキシ樹脂の硬化物の熱伝導性を向上する方法として、アルミナ等の高熱伝導性の無機充填材を用いる方法、粘度の低い樹脂及び少量の微粒シリカを併用して当該無機充填材の充填量を増やす方法等が報告されている(例えば、特許文献1参照)。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】特許第4188634号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0006】

しかしながら、高熱伝導化を目的としてエポキシ樹脂組成物中のアルミナの充填量を増大させると、流動性が低下して成形性を損なう可能性がある。特許文献1では、アルミナフィラーに微粒シリカを少量混合し、比較的粘度の低い特定のビフェニル型エポキシ樹脂を用いてフィラーの高充填化を図っている。しかしながら、特許文献1の方法では、熱伝導性及び流動性の両立には課題があった。

【0007】

従って、本開示は、流動性に優れ、硬化したときの熱伝導性に優れるBGAパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物、前記エポキシ樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物、及び前記エポキシ樹脂硬化物によって封止された素子を備える電子部品装置を提供することを課題とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記課題を解決するための手段には、以下の実施形態が含まれる。

< 1 > ビスフェノールF型エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂と、硬化剤と、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超15質量%以下含む無機充填材と、可塑剤と、を含有し、前記無機充填材の含有率が75体積%~84体積%である、ボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 2 > 前記エポキシ樹脂がさらにビフェニル型エポキシ樹脂を含む、< 1 >に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

40

< 3 > 前記無機充填材が、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超10質量%以下含む、< 1 >又は< 2 >に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 4 > 前記硬化剤が、水酸基当量150g/eq以下のフェノール硬化剤を含む、< 1 >~< 3 >のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 5 > 前記硬化剤が、1分子中に3個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂を含む、< 1 >~< 4 >のいずれか1項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止

50

用エポキシ樹脂組成物。

< 6 > 前記硬化剤が、トリフェニルメタン型フェノール樹脂を含む、< 1 > ~ < 5 > のいずれか 1 項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 7 > 前記無機充填材の空隙率が 18 体積%以下である < 1 > ~ < 6 > のいずれか 1 項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 8 > 前記無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が 1 μm 以下の粒子の割合が 9 体積%以上であり、粒子径が 1 μm を超え 10 μm 以下の粒子の割合が 45 体積%以下であり、粒子径が 10 μm を超え 30 μm 以下の粒子の割合が 20 体積%以上であり、粒子径が 30 μm を超える粒子の割合が 18 体積%以上である、< 1 > ~ < 7 > のいずれか 1 項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

10

< 9 > 前記無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が 1 μm 以下の粒子の割合が 11 体積%以上であり、粒子径が 1 μm を超え 10 μm 以下の粒子の割合が 40 体積%以下であり、粒子径が 10 μm を超え 30 μm 以下の粒子の割合が 22 体積%以上であり、粒子径が 30 μm を超える粒子の割合が 20 体積%以上である < 8 > に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物。

< 10 > < 1 > ~ < 9 > のいずれか 1 項に記載のボールグリッドアレイパッケージ封止用エポキシ樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物。

< 11 > 素子と、前記素子を封止している < 10 > に記載のエポキシ樹脂硬化物と、を有し、ボールグリッドアレイパッケージの形態を有する、電子部品装置。

20

【発明の効果】

【0009】

本開示によれば、流動性に優れ、硬化したときの熱伝導性に優れる BGA パッケージ封止用エポキシ樹脂組成物、前記エポキシ樹脂組成物を硬化してなるエポキシ樹脂硬化物、及び前記エポキシ樹脂硬化物によって封止された素子を備える電子部品装置が提供される。

【発明を実施するための形態】

【0010】

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

30

【0011】

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

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

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

本開示において各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、各成分の含有率又は含有量は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率又は含有量を意味する。

40

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

【0012】

< BGA パッケージ封止用エポキシ樹脂組成物 >

本開示の BGA パッケージ封止用エポキシ樹脂組成物（以下、単にエポキシ樹脂組成物ともいう）は、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂と、硬化剤と、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミ

50

ナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超15質量%以下含む無機充填材と、可塑剤と、を含有し、前記無機充填材の含有率が75体積%～84体積%である。

【0013】

本開示のエポキシ樹脂組成物は、流動性に優れ、硬化したときの熱伝導性に優れる。その理由は明らかではないが、以下のように考えることができる。一般的に、エポキシ樹脂組成物においてアルミナ粒子の充填率を高めると、高熱伝導率が得られる。しかしながら、アルミナ粒子の高充填に伴い、組成物の流動性が低下し、ワイヤ流れ等の原因となる。一方、本開示のエポキシ樹脂組成物は、ビスフェノールF型エポキシ樹脂及び可塑剤を含有することで、組成物としたときにアルミナ粒子を高割合で含む場合でも、流動性を担保しやすいと考えられる。さらに、これにより、無機充填材をより高充填として、硬化したときの熱伝導性をより向上することが可能になると考えられる。

10

【0014】

本開示のエポキシ樹脂組成物は、BGAパッケージの封止に用いられる。BGAパッケージとは、パッケージの基板に複数の金属バンプが格子状に配列した半導体パッケージをいう。BGAパッケージは、裏面に金属バンプを形成した基板のおもて面に素子を搭載し、バンプ又はワイヤボンディングにより素子と基板に形成された配線を接続した後、素子を封止して作製する。外径寸法を素子の寸法と同程度にまで縮小化したCSP(Chip Size Package)等も、BGAパッケージの一形態である。

【0015】

[エポキシ樹脂]

本開示のエポキシ樹脂組成物は、ビスフェノールF型エポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂を含有する。エポキシ樹脂組成物は、ビスフェノールF型エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を含有していてもよい。

20

【0016】

(ビスフェノールF型エポキシ樹脂)

本開示においてビスフェノールF型エポキシ樹脂とは、置換又は非置換のビスフェノールFのジグリシジルエーテルをいう。ビスフェノールF型エポキシ樹脂は、1種単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

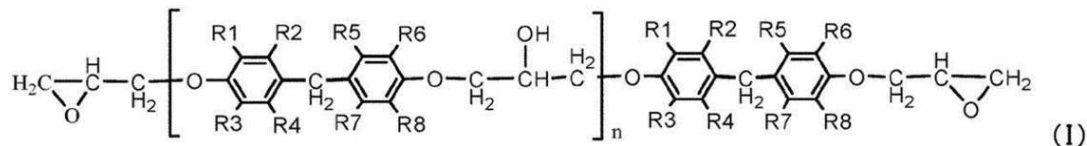
【0017】

ビスフェノールF型エポキシ樹脂としては、例えば、下記一般式(I)で示されるエポキシ樹脂が挙げられる。

30

【0018】

【化1】



【0019】

一般式(I)中、R1～R8は水素原子又は炭素数1～18の置換若しくは非置換の1価の有機基を表し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。nは平均値であり、0～10の数を示す。

40

【0020】

上記一般式(I)で示されるビスフェノールF型エポキシ樹脂は、ビスフェノールF化合物にエピクロロヒドリンを公知の方法で反応させることによって得ることができる。

【0021】

一般式(I)中、R1～R8としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、t-ブチル基等の炭素数1～18のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等の炭素数1～18のアルケニル基、アリール基などが挙げられ、水素原子又はメチル基であることが好ましい。

50

## 【 0 0 2 2 】

一般式 ( I ) 中、 $n$  は平均値であり、 $0 \sim 10$  の数を表し、 $0 \sim 4$  の数であることが好ましい。 $n$  が  $10$  以下であると樹脂成分の溶融粘度が高くなりすぎず、エポキシ樹脂組成物の溶融成形時の粘度が低下し、充填不良、ボンディングワイヤ ( 素子とリードを接続する金線 ) の変形等の発生が抑制される傾向にある。

## 【 0 0 2 3 】

ビスフェノール F 型エポキシ樹脂としては、例えば、 $4, 4'$ -メチレンビス (  $2, 6$ -ジメチルフェノール ) のジグリシジルエーテルを主成分とするエポキシ樹脂、 $4, 4'$ -メチレンビス (  $2, 3, 6$ -トリメチルフェノール ) のジグリシジルエーテルを主成分とするエポキシ樹脂、 $4, 4'$ -メチレンビスフェノールのジグリシジルエーテルを主成分とするエポキシ樹脂等が挙げられる。中でも  $4, 4'$ -メチレンビス (  $2, 6$ -ジメチルフェノール ) のジグリシジルエーテルを主成分とするエポキシ樹脂が好ましい。ビスフェノール F 型エポキシ樹脂としては、市販品として Y S L V - 8 0 X Y ( 新日鐵住金化学株式会社、商品名 ) 等が入手可能である。

10

## 【 0 0 2 4 】

ビスフェノール F 型エポキシ樹脂の含有率は特に制限されず、エポキシ樹脂全量中  $10$  質量%以上であることが好ましく、 $20$  質量%以上であることがより好ましく、 $25$  質量%以上であることが更に好ましい。ビスフェノール F 型エポキシ樹脂の含有率は、 $100$  質量%以下であってもよく、 $75$  質量%以下であってもよく、 $50$  質量%以下であってもよい。

20

## 【 0 0 2 5 】

ビスフェノール F 型エポキシ樹脂のエポキシ当量は特に制限されない。成形性、耐リフロー性及び電気的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂のエポキシ当量は、 $100 \text{ g / eq} \sim 1000 \text{ g / eq}$  であることが好ましく、 $150 \text{ g / eq} \sim 500 \text{ g / eq}$  であることがより好ましい。エポキシ樹脂のエポキシ当量は、J I S K 7 2 3 6 : 2 0 0 9 に準じた方法で測定される値とする。以下同様である。

## 【 0 0 2 6 】

ビスフェノール F 型エポキシ樹脂が固体である場合、その軟化点又は融点は特に制限されない。ビスフェノール F 型エポキシ樹脂の軟化点又は融点は、成形性と耐リフロー性の観点からは  $40 \sim 180$  であることが好ましく、エポキシ樹脂組成物の調製の際の取扱い性の観点からは  $50 \sim 130$  であることがより好ましい。エポキシ樹脂の融点は示差走査熱量測定 ( D S C ) で測定される値とし、エポキシ樹脂の軟化点は J I S K 7 2 3 4 : 1 9 8 6 に準じた方法 ( 環球法 ) で測定される値とする。以下同様である。

30

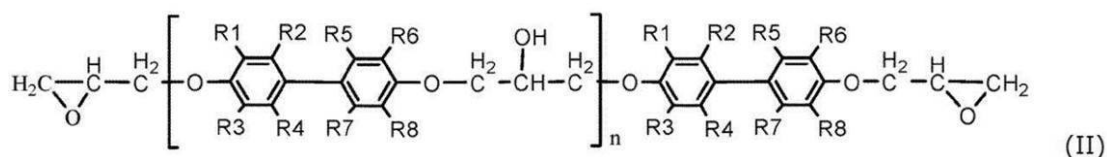
## 【 0 0 2 7 】

( ビフェニル型エポキシ樹脂 )

エポキシ樹脂組成物は、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂に加えて、ビフェニル型エポキシ樹脂を含有してもよい。ビフェニル型エポキシ樹脂は、ビフェニル骨格を有するエポキシ樹脂であれば特に限定されない。例えば下記一般式 ( I I ) で示されるエポキシ樹脂等が挙げられる。

## 【 0 0 2 8 】

【 化 2 】



40

## 【 0 0 2 9 】

一般式 ( I I ) 中、 $R_1 \sim R_8$  は水素原子又は炭素数  $1 \sim 18$  の置換若しくは非置換の一価の有機基を表し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 $n$  は平均値であり、 $0 \sim 10$  の数を示す。

50

## 【 0 0 3 0 】

上記一般式 ( I I ) で示されるビフェニル型エポキシ樹脂は、ビフェノール化合物にエピクロロヒドリンを公知の方法で反応させることによって得ることができる。

## 【 0 0 3 1 】

一般式 ( I I ) 中、R 1 ~ R 8 としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、t - ブチル基等の炭素数 1 ~ 1 8 のアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基等の炭素数 1 ~ 1 8 のアルケニル基、アリール基などが挙げられ、水素原子又はメチル基であることが好ましい。

## 【 0 0 3 2 】

一般式 ( I I ) 中、n は平均値であり、0 ~ 1 0 の数を表し、0 ~ 4 の数であることが好ましい。 10

## 【 0 0 3 3 】

ビフェニル型エポキシ樹脂としては、例えば、4, 4' - ビス ( 2, 3 - エポキシプロポキシ ) ビフェニル又は 4, 4' - ビス ( 2, 3 - エポキシプロポキシ ) - 3, 3', 5, 5' - テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂、エピクロロヒドリンと 4, 4' - ビフェノール又は 4, 4' - ( 3, 3', 5, 5' - テトラメチル ) ビフェノールとを反応させて得られるエポキシ樹脂等が挙げられる。中でも 4, 4' - ビス ( 2, 3 - エポキシプロポキシ ) - 3, 3', 5, 5' - テトラメチルビフェニルを主成分とするエポキシ樹脂が好ましい。ビフェニル型エポキシ樹脂としては、市販品として Y X - 4 0 0 0 ( 三菱ケミカル株式会社、商品名 )、Y L - 6 1 2 1 H ( 三菱ケミカル株式会社、商品名 ) 等が入手可能である。 20

## 【 0 0 3 4 】

エポキシ樹脂がビフェニル型エポキシ樹脂を含む場合、ビフェニル型エポキシ樹脂の含有率は特に制限されず、エポキシ樹脂全量中 2 0 質量 % 以上であることが好ましく、3 0 質量 % 以上であることがより好ましく、5 0 質量 % 以上であることがさらに好ましい。ビフェニル型エポキシ樹脂の含有率は、1 0 0 質量 % 未満であってもよく、9 0 質量 % 以下であってもよく、8 0 質量 % 以下であってもよく、1 0 質量 % 以下であってもよい。

## 【 0 0 3 5 】

ビフェニル型エポキシ樹脂のエポキシ当量は特に制限されない。成形性、耐リフロー性及び電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、ビフェニル型エポキシ樹脂のエポキシ当量は、1 0 0 g / e q ~ 1 0 0 0 g / e q であることが好ましく、1 5 0 g / e q ~ 5 0 0 g / e q であることがより好ましい。 30

## 【 0 0 3 6 】

ビフェニル型エポキシ樹脂が固体である場合、その軟化点又は融点は特に制限されない。エポキシ樹脂の軟化点又は融点は、成形性と耐リフロー性の観点からは 4 0 ~ 1 8 0 であることが好ましく、エポキシ樹脂組成物の調製の際の取扱い性の観点からは 5 0 ~ 1 3 0 であることがより好ましい。

## 【 0 0 3 7 】

( その他のエポキシ樹脂 )

エポキシ樹脂組成物は、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂 ( 「 その他のエポキシ樹脂 」 ともいう ) を含有していてもよい。「 その他のエポキシ樹脂 」 は特に制限されず、1 分子中に 2 個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂であることが好ましい。1 分子中に 2 個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂としては、スチルベン型エポキシ樹脂、硫黄原子含有エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、サリチルアルデヒド型エポキシ樹脂、ナフトール類とフェノール類との共重合型エポキシ樹脂、アラルキル型エポキシ樹脂、ジフェニルメタン型エポキシ樹脂 ( ビスフェノール F 型エポキシ樹脂を除く )、及びトリフェニルメタン型エポキシ樹脂等が挙げられる。「 その他のエポキシ樹脂 」 は、1 種単独で用いても 2 種以上を組み合わせ用いてもよい。 40

## 【 0 0 3 8 】

「その他のエポキシ樹脂」の含有率は特に制限されず、エポキシ樹脂全量に対して30質量%以下であることが好ましく、20質量%以下であることがより好ましく、10質量%以下であることが更に好ましく、5質量%以下であることが特に好ましい。

【0039】

「その他のエポキシ樹脂」のエポキシ当量は特に制限されない。成形性、耐リフロー性及び電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、「その他のエポキシ樹脂」のエポキシ当量は、100g/eq～1000g/eqであることが好ましく、150g/eq～500g/eqであることがより好ましい。

【0040】

「その他のエポキシ樹脂」が固体である場合、その軟化点又は融点は特に制限されない。成形性と耐リフロー性の観点からは、「その他のエポキシ樹脂」の軟化点又は融点は40～180であることが好ましく、エポキシ樹脂組成物の調製の際の取扱い性の観点からは50～130であることがより好ましい。

10

【0041】

エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂の総含有率は、強度、流動性、耐熱性、成形性等の観点から0.5質量%～50質量%であることが好ましく、2質量%～30質量%であることがより好ましい。

【0042】

エポキシ樹脂は、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂を含むことが好ましく、1分子中に3個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂（多官能エポキシ樹脂ともいう）を含んでもよい。後述のように、エポキシ樹脂組成物が硬化促進剤として有機リン化合物を含有する場合、実装時のパッケージの反りを制御する観点から、エポキシ樹脂の全質量に対する多官能エポキシ樹脂の含有率は10質量%以下であることが好ましく、5質量%以下であることがより好ましく、1質量%以下であることが更に好ましく、実質的に0質量%であることが特に好ましい。「実質的に0質量%」の含有率とは、多官能エポキシ樹脂の、実装時のパッケージの反りに対する影響が観察されない程度の含有率をいう。

20

【0043】

[硬化剤]

本開示のエポキシ樹脂組成物は、硬化剤を含有する。硬化剤は、エポキシ樹脂と反応しうるものであれば特に制限されない。耐熱性向上の観点から、硬化剤は、1分子中に2個以上のフェノール性水酸基を有する化合物（以下、フェノール硬化剤ともいう）が好ましい。フェノール硬化剤は、低分子のフェノール化合物であっても、低分子のフェノール化合物を高分子化したフェノール樹脂であってもよい。熱伝導性の観点からは、フェノール硬化剤はフェノール樹脂であることが好ましい。硬化剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

30

【0044】

フェノール硬化剤は、1分子中に2個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂を含むことが好ましく、1分子中に3個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂（多官能フェノール樹脂ともいう）を含むことがより好ましい。

40

【0045】

フェノール樹脂としては、特に制限されず、ビフェニレン型フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、ベンズアルデヒド型フェノール樹脂とアラルキル型フェノール樹脂との共重合樹脂、パラキシレン変性フェノール樹脂、トリフェニルメタン型フェノール樹脂等が挙げられる。中でも、成形性の観点からはトリフェニルメタン型フェノール樹脂が好ましい。流動性の観点からは、パラキシレン変性フェノール樹脂が好ましい。

【0046】

パラキシレン変性フェノール樹脂としては、パラキシレン骨格を有する化合物を原料として得られるフェノール樹脂であれば特に制限されない。例えば、下記一般式(XV)で

50

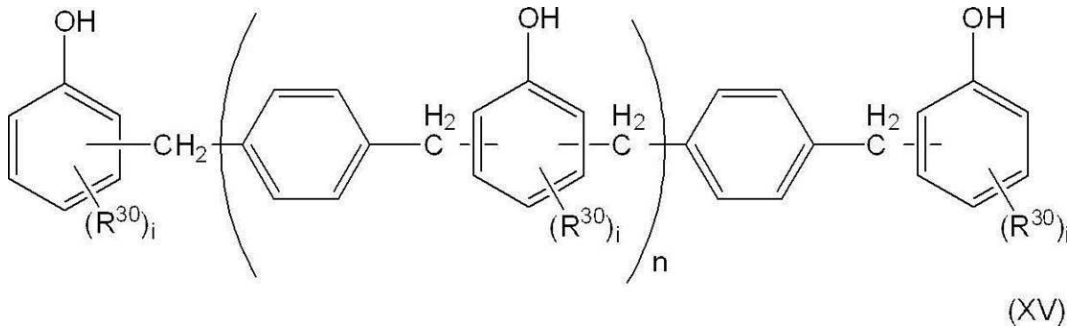
表されるフェノール樹脂であることが好ましい。

【0047】

下記一般式(XV)で表されるフェノール樹脂の中でも、XL-225(三井化学株式会社、商品名)、XLC(三井化学株式会社、商品名)、MEH-7800(明和化成株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

【0048】

【化3】



10

【0049】

式(XV)中、 $R^{30}$ は炭素数1~18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 $i$ はそれぞれ独立に0~3の整数を示す。 $n$ は平均値であり、0~10の数である。なお、式(XV)において、芳香環上に存在する水素原子は非表示としている。

20

【0050】

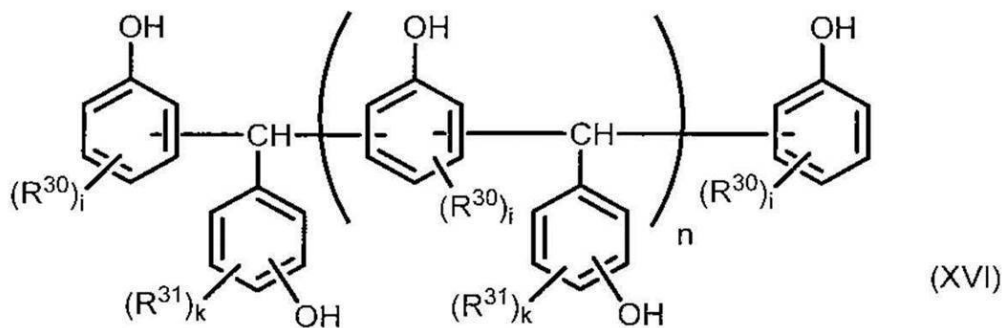
トリフェニルメタン型フェノール樹脂としては、トリフェニルメタン骨格を有する化合物を原料として得られるフェノール樹脂であれば特に制限されない。例えば、下記一般式(XVI)で表されるフェノール樹脂が好ましい。

【0051】

下記一般式(XVI)で表されるフェノール樹脂の中でも、 $i$ が0であり、 $k$ が0であるMEH-7500(明和化成株式会社、商品名)等が市販品として入手可能である。

【0052】

【化4】



30

【0053】

式(XVI)中、 $R^{30}$ 及び $R^{31}$ は炭素数1~18の1価の有機基を示し、それぞれ全てが同一でも異なってもよい。 $i$ はそれぞれ独立に0~3の整数であり、 $k$ はそれぞれ独立に0~4の整数である。 $n$ は平均値であり、0~10の数である。なお、式(XVI)において、芳香環上に存在する水素原子は非表示としている。

【0054】

硬化剤の水酸基当量は、特に制限されず、500g/eq以下であることが好ましく、400g/eq以下であることがより好ましく、300g/eq以下であることが更に好ましい。硬化剤の水酸基当量の下限は、50g/eq以上であることが好ましく、60g

50

/eq 以上であることがより好ましく、70 g / eq 以上であることが更に好ましい。硬化剤の水酸基当量の範囲は、50 g / eq ~ 500 g / eq であることが好ましく、50 g / eq ~ 400 g / eq であることがより好ましく、50 g / eq ~ 300 g / eq であることが更に好ましい。

#### 【0055】

中でも、硬化剤は水酸基当量150 g / eq 以下のフェノール硬化剤（以下、「特定フェノール硬化剤」ともいう）を含むことが好ましい。硬化剤が特定フェノール硬化剤を含むと、アルミナ粒子を含む無機充填材を含む場合にも、成形性の低下が抑えられる傾向にある。これは、硬化するときの架橋密度が上がり硬化性が向上することが一因と考えられる。また、硬化剤が特定フェノール硬化剤を含むと、硬化物の熱伝導性がより向上する傾向にある。この理由は明らかではないが、架橋点間分子量が比較的小さいことが熱伝導性に寄与していると推測される。特定フェノール硬化剤の水酸基当量は、50 g / eq ~ 150 g / eq であることが好ましく、50 g / eq ~ 120 g / eq であることがより好ましく、60 g / eq ~ 110 eq であることが更に好ましく、70 g / eq ~ 110 g / eq であることが特に好ましい。

10

#### 【0056】

フェノール硬化剤の水酸基当量は、JIS K 0070 : 1992 に準じた方法により測定される値とする。

#### 【0057】

フェノール硬化剤が固体である場合、その融点又は軟化点は特に制限されない。フェノール硬化剤の融点又は軟化点は、50 ~ 250 であることが好ましく、65 ~ 200 であることがより好ましく、80 ~ 170 であることが更に好ましい。

20

#### 【0058】

フェノール硬化剤の融点又は軟化点は、エポキシ樹脂の融点又は軟化点と同様にして測定される値とする。

#### 【0059】

エポキシ樹脂組成物における、エポキシ樹脂と硬化剤との含有比率は、エポキシ樹脂のエポキシ基の当量数に対する硬化剤の官能基の当量数の比率（硬化剤の官能基の当量数 / エポキシ基の当量数）が0.5 ~ 2.0 の範囲となるように設定されることが好ましく、0.7 ~ 1.5 となるように設定されることがより好ましく、0.8 ~ 1.3 となるように設定されることが更に好ましい。前記比率が0.5 以上であると、エポキシ樹脂の硬化が充分となり、硬化物の耐熱性、耐湿性、及び電気特性に優れる傾向にある。また、前記比率が2.0 以下であると、硬化樹脂中に残存する硬化剤の官能基の量が抑えられ、電気特性及び耐湿性に優れる傾向にある。

30

#### 【0060】

##### [無機充填材]

本開示のエポキシ樹脂組成物は、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超15質量%以下含む無機充填材を含有する。無機充填材の含有率は組成物の全体積に対して75体積% ~ 84体積%である。無機充填材は、アルミナ粒子とシリカ粒子以外の無機充填材を含んでもよく、アルミナ粒子とシリカ粒子のみを含んでもよく、アルミナ粒子のみを含んでもよい。シリカ粒子としては、球状シリカ、結晶シリカ等が挙げられる。

40

#### 【0061】

無機充填材の平均粒子径は、特に制限されない。無機充填材の平均粒子径は、例えば、0.1 μm ~ 80 μm であることが好ましく、0.3 μm ~ 50 μm であることがより好ましい。本開示において、無機充填材の平均粒子径は、無機充填材としてアルミナ粒子が単独で用いられている場合にはアルミナ粒子の平均粒子径をいい、無機充填材としてアルミナ粒子とその他の無機充填材とが併用されている場合には無機充填材全体としての平均粒子径をいう。無機充填材の平均粒子径が0.1 μm 以上であると、エポキシ樹脂組成物の粘度の上昇を抑えやすい傾向にある。無機充填材の平均粒子径が80 μm 以下であると

50

、エポキシ樹脂組成物と無機充填材との混合性が向上し、硬化によって得られるパッケージの状態がより均質化して特性のばらつきが抑えられる傾向にあり、更に狭い領域への充填性が向上する傾向にある。なお、無機充填材の粒子径の分布は、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 80\ \mu\text{m}$ の範囲内に最大値を有することが好ましい。

【0062】

中でも、アルミナ粒子の平均粒子径は、例えば、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 80\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.3\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ であることがより好ましい。アルミナ粒子の平均粒子径が $0.1\ \mu\text{m}$ 以上であると、エポキシ樹脂組成物の粘度の上昇を抑えやすい傾向にある。アルミナ粒子の平均粒子径が $80\ \mu\text{m}$ 以下であると、エポキシ樹脂組成物とアルミナ粒子との混合性が向上し、硬化によって得られるパッケージの状態がより均質化して特性のばらつきが抑えられる傾向にあり、更に狭い領域への充填性が向上する傾向にある。

10

【0063】

特に、高熱伝導性の観点からは、アルミナ粒子の平均粒子径は $1\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $2\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ であることがより好ましい。中でも、アルミナ粒子の平均粒子径が $10\ \mu\text{m}$ 以上であると、熱伝導性に優れる傾向にある。これは、熱伝導パスが形成されやすいためであると考えられる。

【0064】

また、無機充填材がシリカ粒子を含む場合、シリカ粒子の平均粒子径は、例えば、 $0.1\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.3\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $0.5\ \mu\text{m} \sim 20\ \mu\text{m}$ であることが更に好ましい。中でも、シリカ粒子の平均粒子径が $10\ \mu\text{m}$ 以上であると、硬化したときのパッケージの反りを抑制できる傾向にある。シリカ粒子の平均粒子径が $50\ \mu\text{m}$ 以下であると、流動性が向上する傾向にある。

20

【0065】

本開示において無機充填材の平均粒子径は、乾式の粒度分布計を使用して、又は、水若しくは有機溶媒中に無機充填材を分散したスラリーの状態にて湿式の粒度分布測定装置を使用して測定できる。特に $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を含む場合は、湿式の粒度分布計を使用して測定することが好ましい。具体的には、無機充填材の濃度を約 $0.01$ 質量%に調整した水スラリーをバース超音波洗浄機で5分間処理し、レーザー回折式粒度測定装置(LA-960、株式会社堀場製作所)を用いて検出された全粒子の平均値より求めることができる。本開示において平均粒子径とは、体積基準の粒度分布において小径側からの累積が $50\%$ となるときの粒子径( $D_{50}$ )を表す。

30

【0066】

一実施形態において、熱伝導性の観点から、平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 以上のアルミナ粒子と平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 未満のアルミナ粒子とを組み合わせる用いることが好ましい。例えば、平均粒子径が $1\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ のアルミナ粒子と平均粒子径が $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $1\ \mu\text{m}$ 未満のアルミナ粒子を組み合わせる用いることが好ましく、平均粒子径が $5\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ のアルミナ粒子と平均粒子径が $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $1\ \mu\text{m}$ 未満のアルミナ粒子とを組み合わせる用いることがより好ましく、平均粒子径が $5\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ のアルミナ粒子と平均粒子径が $0.3\ \mu\text{m}$ 以上 $1\ \mu\text{m}$ 未満のアルミナ粒子とを組み合わせる用いることが更に好ましい。

40

また、無機充填材がさらにシリカ粒子を含む場合には、流動性の観点からは、平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 以下のシリカ粒子を組み合わせる用いることが好ましい。例えば、平均粒子径が $0.1\ \mu\text{m} \sim 1\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子を組み合わせる用いることが好ましく、平均粒子径が $0.2\ \mu\text{m} \sim 1\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子を組み合わせる用いることがより好ましく、平均粒子径が $0.3\ \mu\text{m} \sim 1\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子を組み合わせる用いることが更に好ましい。

エポキシ樹脂組成物が上記のように組み合わせた無機充填材を含有することは、例えば無機充填材の体積基準の粒度分布(頻度分布)を求めることで確認することができる。

【0067】

平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 以上のアルミナ粒子と、平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$ 未満のアルミナ粒子とを組み合わせる用いる場合の混合割合は特に制限されない。例えば、平均粒子径が $1\ \mu\text{m}$

50

以下のアルミナ粒子の割合が、アルミナ粒子全量に対して5質量%～20質量%となるように配合することが好ましく、10質量%～15質量%となるように配合することがより好ましい。

【0068】

エポキシ樹脂組成物の流動性の観点から、無機充填材の粒子形状は球形が好ましく、無機充填材の粒度分布は広範囲に分布したものが好ましい。例えば、無機充填材の70質量%以上を球状粒子とし、この球状粒子の粒子径は0.1 $\mu$ m～80 $\mu$ mという広範囲に分布したものとすることが好ましい。このような無機充填材は、大きさが異なる粒子が混在することで最密充填構造を形成しやすいため、無機充填材の含有率を増加させてもエポキシ樹脂組成物の粘度上昇が抑えられ、流動性に優れるエポキシ樹脂組成物が得られる傾向

10

【0069】

無機充填材の含有率は、組成物の全体積に対して75体積%～84体積%であり、熱伝導性、流動性等の特性バランスの観点から、76体積%～84体積%であることが好ましく、77体積%～83体積%であることがより好ましい。

また、無機充填材の含有率は、熱伝導性、流動性等の特性バランスの観点から、組成物の全質量に対して、90質量%～96質量%であることが好ましく、91質量%～95質量%であることがより好ましく、92質量%～94質量%であることが更に好ましい。

【0070】

無機充填材は、アルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超15質量%以下含む。熱伝導性と流動性の観点から、無機充填材はアルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超10質量%以下含むことが好ましい。例えば、無機充填材はアルミナ粒子を含みシリカ粒子を含まないか、アルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して0質量%超5質量%以下含むものとしてもよい。また、無機充填材はアルミナ粒子を含みさらにシリカ粒子をアルミナ粒子とシリカ粒子の合計量に対して5質量%～10質量%含むものとしてもよい。アルミナ粒子にシリカ粒子を併用すると流動性が向上する傾向にある。この理由は明らかではないが、アルミナ粒子間の接触面積が減少し、アルミナ粒子間の摩擦が低減されるためであると推測される。

20

30

【0071】

アルミナ粒子とシリカ粒子以外の無機充填材としては、特に制限されず、ガラス、炭酸カルシウム、ケイ酸ジルコニウム、酸化マグネシウム、ケイ酸カルシウム、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、炭化ケイ素、工業用ダイヤモンド、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア、タルク、クレー、マイカ等の無機物の粒子、これらの粒子を球形化したビーズなどが挙げられる。その他、難燃効果のある無機充填材を使用してもよい。難燃効果のある無機充填材としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、マグネシウムと亜鉛との複合水酸化物等の複合金属水酸化物、ホウ酸亜鉛などの粒子が挙げられる。アルミナ粒子とシリカ粒子以外の無機充填材は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

40

【0072】

無機充填材の全体積に対する、アルミナ粒子とシリカ粒子以外の無機充填材の含有率は、20体積%以下であることが好ましく、10体積%以下であることがより好ましく、5体積%以下であることが更に好ましく、2体積%以下であることが特に好ましい。

【0073】

無機充填材の空隙率は特に制限されず、18体積%以下であることが好ましく、16体積%以下であることがより好ましく、15体積%以下であることが更に好ましく、14体積%以下であることが特に好ましい。無機充填材の空隙率は7体積%以上であってもよい。無機充填材が1種類の場合には、無機充填材の空隙率は1種類の無機充填材についての空隙率を意味し、無機充填材が2種類以上の場合には、無機充填材の空隙率は2種類以上

50

の無機充填材の混合物についての空隙率を意味する。

【0074】

無機充填材の空隙率は、無機充填材の嵩体積に占める空隙の割合（（空隙 / 無機充填材の嵩体積）× 100（%））を表す値である。無機充填材の重さが同じであれば、空隙率が小さくなるに従い無機充填材の嵩体積は小さくなる。エポキシ樹脂組成物に含まれる無機充填材の嵩体積が小さくなると、エポキシ樹脂組成物に含まれる無機充填材の含有量が同じであっても、エポキシ樹脂組成物の体積から無機充填材の嵩体積を差し引いて得られる値は大きくなる。以下、この値を「余剰樹脂の量」と称することがある。無機充填材の空隙率が小さくなる（すなわち、余剰樹脂の量が大きくなる）と、エポキシ樹脂組成物の硬化性、流動性、成形性及び硬化物としたときの熱伝導性が向上する傾向にある。この理由は明確ではないが、余剰樹脂の量が増加することでエポキシ樹脂組成物の粘度が低減して流動性が向上すると考えられる。また、余剰樹脂の量が増加することで、エポキシ樹脂組成物の混練時の分散性が良くなり、硬化性、成形性及び硬化物としたときの熱伝導性が向上すると推測される。

10

【0075】

無機充填材の空隙率は、下記方法により測定された値をいう。

エポキシ樹脂組成物をろつぼに入れ、800 で4時間放置し、灰化させる。得られた灰分の粒度分布を、レーザー回折式粒度分布計（例えば、株式会社堀場製作所、LA920）を用いてアルミナの屈折率を適用して測定する。粒度分布から下記の大内山の式を用いて、空隙率 を算出する。なお、大内山の式に関しては、下記文献に詳しい。

20

N. Ouchiya and T. Tanaka, Ind. Eng. Chem. Fundam., 19, 338 (1980)

N. Ouchiya and T. Tanaka, Ind. Eng. Chem. Fundam., 20, 66 (1981)

N. Ouchiya and T. Tanaka, Ind. Eng. Chem. Fundam., 23, 490 (1984)

【0076】

【数1】

$$\phi_m = \frac{\sum_{i=1}^p D_i^3 f_i}{\sum_{i=1}^p \left[ (D_i \sim \bar{D})^3 + \frac{1}{n} \left\{ (D_i + \bar{D})^3 - (D_i \sim \bar{D})^3 \right\} \right] f_i}$$

30

$$\varepsilon = 1 - \phi_m$$

【0077】

【数2】

$$f_i = \left( w_i / D_i^3 \right) / \sum_{i=1}^m \left( w_i / D_i^3 \right)$$

40

【0078】

【数3】

50

$$\bar{D} = \frac{\sum_{i=1}^p (D_i f_i)}{\sum_{i=1}^p f_i}$$

$$D_i \sim \bar{D} = \{ 0 : D_i \leq \bar{D}, D_i - \bar{D} : D_i > \bar{D} \}$$

【 0 0 7 9 】

【 数 4 】

$$n = 1 + \frac{4}{13} \bar{D} \frac{\sum_{i=1}^p (7 - 8\varepsilon_{0i})(D_i + \bar{D})^2 \left(1 - \frac{3}{8} \frac{\bar{D}}{D_i + \bar{D}}\right) f_i}{\sum_{i=1}^p \{D_i^3 - (D_i \sim \bar{D})^3\} f_i}$$

10

【 0 0 8 0 】

【 数 5 】

20

 $\Phi_m$  : 最大充填分率 $D_i$  : 粒子径 $f_i$  : 各粒子径の粒子の個数比 $\varepsilon$  : 空隙率 $\bar{D}$  : 平均粒子径 $w_i$  : 各粒子径の粒子の質量比 $\varepsilon_{0i}$  : 単一粒子径のときの空隙率

【 0 0 8 1 】

無機充填材の粒度分布は特に制限されない。例えば、無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 9 体積% 以上であり、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  を超え  $10 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 4.5 体積% 以下であり、粒子径が  $10 \mu\text{m}$  を超え  $30 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 2.0 体積% 以上であり、粒子径が  $30 \mu\text{m}$  を超える粒子の割合は 1.8 体積% 以上であることが好ましい。このような特定の粒度分布を示す無機充填材を含有すると、硬化性、流動性及び成形性に優れ、硬化物としたときの熱伝導性に優れる傾向にある。

30

無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 1.1 体積% 以上であり、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  を超え  $10 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 4.0 体積% 以下であり、粒子径が  $10 \mu\text{m}$  を超え  $30 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 2.2 体積% 以上であり、粒子径が  $30 \mu\text{m}$  を超える粒子の割合は 2.0 体積% 以上であることがより好ましい。

無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 1.2 体積% 以上であり、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  を超え  $10 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 3.0 体積% 以下であり、粒子径が  $10 \mu\text{m}$  を超え  $30 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 2.4 体積% 以上であり、粒子径が  $30 \mu\text{m}$  を超える粒子の割合は 3.0 体積% 以上であることが更に好ましい。

40

無機充填材の体積基準の粒度分布における、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 2.0 体積% 以下であり、粒子径が  $1 \mu\text{m}$  を超え  $10 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 1.5 体積% 以上であり、粒子径が  $10 \mu\text{m}$  を超え  $30 \mu\text{m}$  以下の粒子の割合は 3.5 体積% 以下であり、粒子径が  $30 \mu\text{m}$  を超える粒子の割合は 4.5 体積% 以下であってもよい。

【 0 0 8 2 】

無機充填材の体積基準の粒度分布は、以下の方法により測定することができる。

溶媒（純水）に、測定対象の無機充填材を 1 質量% ~ 5 質量% の範囲内で界面活性剤 1

50

質量% ~ 8 質量%とともに添加し、110Wの超音波洗浄機で30秒~5分間振動し、無機充填材を分散する。分散液の約3mL程度を測定セルに注入して25で測定する。測定装置は、レーザー回折式粒度分布計(例えば、株式会社堀場製作所、LA920)を用い、体積基準の粒度分布を測定する。平均粒子径は、体積基準の粒度分布において小径側からの累積が50%となる時の粒子径(D50%)として求められる。なお、屈折率はアルミナ粒子の屈折率を用いる。無機充填材がアルミナ粒子とその他の無機充填材の混合物である場合においては、屈折率はアルミナ粒子の屈折率を用いるものとする。

#### 【0083】

無機充填材の粒度分布を調整する方法は特に制限されない。例えば、平均粒子径が0.5μm程度の小粒径の無機充填材と、平均粒子径が2μm程度の中粒径の無機充填材と、平均粒子径が45μm程度の大粒径の無機充填材とを適宜組み合わせることで上記に例示した体積基準の粒度分布を示す無機充填材を調製してもよい。

#### 【0084】

##### [可塑剤]

エポキシ樹脂組成物は、可塑剤を含有する。エポキシ樹脂組成物が可塑剤を含有すると、アルミナ粒子を含む無機充填材を高充填としても、ワイヤ流れ等の発生を抑制できる傾向にある。この理由は、高温弾性率の低下及び流動性の向上に起因するものと推測される。可塑剤としては、トリフェニルホスフィンオキシド、リン酸エステル等の有機リン化合物、シリコン、これらの変性化合物などが挙げられる。また、可塑剤としてインデンスチレン共重合体も好適に用いられる。中でも、可塑剤は有機リン化合物を含むことが好ましく、トリフェニルホスフィンオキシドを含むことがより好ましい。可塑剤の含有率は、エポキシ樹脂に対して0.001質量%~30質量%であることが好ましく、5質量%~20質量%であることがより好ましく、5質量%~15質量%であることが更に好ましい。可塑剤は1種を単独で用いても2種以上組み合わせることもよい。

#### 【0085】

##### [硬化促進剤]

本開示のエポキシ樹脂組成物は、必要に応じて硬化促進剤を含有してもよい。硬化促進剤としては、封止用エポキシ樹脂組成物に一般に用いられるものを適宜選択して使用することができる。硬化促進剤としては、例えば、有機リン化合物、イミダゾール化合物、第3級アミン、及び第4級アンモニウム塩が挙げられる。中でも、有機リン化合物が好ましい。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ることもよい。

#### 【0086】

有機リン化合物としては、トリブチルホスフィン、フェニルホスフィン、ジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリパラトリルホスフィン等の有機ホスフィン類、及びこれらのホスフィン類に無水マレイン酸、ベンゾキノ、ジアゾフェニルメタン等の結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有するリン化合物(例えば、トリフェニルホスフィンとベンゾキノの付加物、及びトリパラトリルホスフィンとベンゾキノの付加物);テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィンテトラフェニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート、トリフェニルホスホニウム-トリフェニルボランなどが挙げられる。硬化促進剤として有機リン化合物を用いると、エポキシ樹脂組成物を用いて封止された電子部品装置において高い信頼性が得られる傾向にある。この理由は明らかではないが、以下のように考えることができる。一般的に、エポキシ樹脂組成物がアルミナ粒子を含有する場合、硬化性が低下することから、硬化促進剤の使用量を増やす傾向にある。しかしながら、硬化促進剤を増量すると、エポキシ樹脂の原料であるエピクロヒドリンに由来する塩素と硬化促進剤との反応により発生する塩素イオンの量が増加し、電子部品装置の信頼性を低下させる場合がある。一方、有機リン化合物は反応性が高すぎないことから、硬化促進剤として有機リン化合物を使用すると、塩素との反応が抑えられるため、塩素イオンの発生も抑えられ、信頼性の低下を抑制することができると考えられる。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 8 7 】

エポキシ樹脂組成物が硬化促進剤を含有する場合、硬化促進剤の含有率は特に制限されず、例えば、エポキシ樹脂及び硬化剤の総量に対して 1 . 0 質量% ~ 1 0 質量% であることが好ましく、1 . 5 質量% ~ 7 質量% であることがより好ましく、1 . 8 質量% ~ 6 質量% であることが更に好ましい。

## 【 0 0 8 8 】

## 〔有機溶剤〕

本開示のエポキシ樹脂組成物は、有機溶剤を含有してもよい。エポキシ樹脂組成物が有機溶剤を含有すると、組成物の粘度が低下し、混練性及び流動性が向上する傾向にある。有機溶剤は特に制限されず、例えば、沸点が 5 0 ~ 1 0 0 である有機溶剤（以下、特定有機溶剤ともいう）を含有してもよい。

10

## 【 0 0 8 9 】

特定有機溶剤は特に制限されず、例えば、沸点が 5 0 ~ 1 0 0 であり、好ましくはエポキシ樹脂組成物中の成分と非反応性のものを適宜選択して使用することができる。特定有機溶剤としては、アルコール系溶剤、エーテル系溶剤、ケトン系溶剤、エステル系溶剤等が挙げられる。中でもアルコール系溶剤が好ましく、メタノール（沸点 6 4 . 7 ） 、エタノール（沸点 7 8 . 3 7 ） 、プロパノール（沸点 9 7 ） 及びイソプロパノール（沸点 8 2 . 6 ） がより好ましい。特定有機溶剤は、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。なお、特定有機溶剤としては、エポキシ樹脂組成物を調製する際に添加されるものであってもよく、エポキシ樹脂組成物を調製する際の混練過程の反応で発生するものであってもよい。なお、本開示において特定有機溶剤の沸点は、常圧にて測定される特定有機溶剤の沸点を指す。

20

## 【 0 0 9 0 】

エポキシ樹脂組成物中の特定有機溶剤の含有率は、特に制限されない。特定有機溶剤の含有率は、例えば、エポキシ樹脂組成物の全質量に対して 0 . 1 質量% ~ 1 0 質量% であることが好ましく、熱伝導性をより向上させる観点から、0 . 3 質量% ~ 4 . 0 質量% であることがより好ましく、0 . 3 質量% ~ 3 . 0 質量% であることが更に好ましく、0 . 3 質量% ~ 2 . 5 質量% であることが特に好ましい。特定有機溶剤の含有率が 0 . 3 質量% 以上であると、流動性の向上効果がより高まる傾向にある。特定有機溶剤の含有率が 3 . 0 質量% 以下であると、エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂を硬化するときボイドの発生がより抑制され、絶縁信頼性の低下がより抑制される傾向にある。

30

## 【 0 0 9 1 】

特定有機溶剤中のアルコール系溶剤の含有率は、特に限定されない。アルコール系溶剤の含有率は、例えば、特定有機溶剤の全質量に対して 5 0 質量% 以上であることが好ましく、7 0 質量% 以上であることがより好ましく、9 0 質量% 以上であることが更に好ましく、9 5 質量% 以上であることが特に好ましい。また、エポキシ樹脂組成物は、アルコール系溶剤以外の特定有機溶剤を実質的に含有していなくてもよい。

## 【 0 0 9 2 】

## 〔添加剤〕

エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて陰イオン交換体、離型剤、難燃剤、カップリング剤、応力緩和剤、着色剤等の添加剤を含有してもよい。

40

## 【 0 0 9 3 】

## （陰イオン交換体）

エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて陰イオン交換体を含有してもよい。特に、エポキシ樹脂組成物を封止材料として用いる場合には、封止される素子を備える電子部品装置の耐湿性及び高温放置特性を向上させる観点から、陰イオン交換体を含有することが好ましい。

## 【 0 0 9 4 】

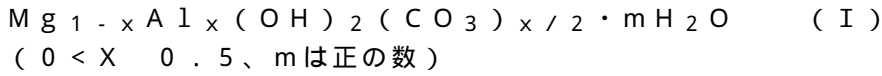
陰イオン交換体は特に制限されず、従来から当該技術分野において一般的に使用されるものから選択できる。例えば、ハイドロタルサイト化合物、並びにマグネシウム、アルミ

50

ニウム、チタン、ジルコニウム及びビスマスから選ばれる元素の含水酸化物が挙げられる。

【0095】

陰イオン交換体は特に制限されず、従来から当該技術分野において一般に使用されるものから選択できる。陰イオン交換体としては、例えば、下記式(I)で示される組成のハイドロタルサイト化合物、並びにマグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ビスマス及びアンチモンからなる群より選ばれる元素の含水酸化物が挙げられる。陰イオン交換体は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。



【0096】

ハイドロタルサイト化合物は、ハロゲンイオン等の陰イオンを構造中の $\text{CO}_3$ と置換することで捕捉し、結晶構造の中に取り込まれたハロゲンイオンは約350以上で結晶構造が破壊するまで脱離しない性質を持つ化合物である。このような性質を有するハイドロタルサイトとしては、天然物として産出される $\text{Mg}_6\text{Al}_2(\text{OH})_{16}\text{CO}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、合成品として $\text{Mg}_{4.3}\text{Al}_2(\text{OH})_{12.6}\text{CO}_3 \cdot m\text{H}_2\text{O}$ 等が挙げられる。

【0097】

エポキシ樹脂組成物が硬化剤としてフェノール硬化剤を含有する場合、フェノール硬化剤の影響でエポキシ樹脂組成物は酸性を示す(例えば、純水を使用した硬化物の抽出液が $\text{pH}3 \sim 5$ となる)。この場合、例えば、両性金属であるアルミニウムは、エポキシ樹脂組成物によって腐食されやすい環境となるが、酸を吸着する作用も持つハイドロタルサイト化合物をエポキシ樹脂組成物が含有することで、アルミニウムの腐食が抑制される傾向にある。

【0098】

また、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ビスマス及びアンチモンからなる群より選ばれる少なくとも1種の元素の含水酸化物も、ハロゲンイオン等の陰イオンを水酸化物イオンと置換することで捕捉することができる。更にこれらのイオン交換体は酸性側で優れたイオン交換能を示す。従って、これらのイオン交換体をエポキシ樹脂組成物が含有することで、ハイドロタルサイト化合物を含有する場合と同様に、アルミニウムの腐食が抑制される傾向にある。含水酸化物としては、 $\text{MgO} \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{ZrO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Bi}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Sb}_2\text{O}_5 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 等が挙げられる。

【0099】

エポキシ樹脂組成物が陰イオン交換体を含有する場合、陰イオン交換体の含有率は、ハロゲンイオン等の陰イオンを捕捉できる十分な量であれば特に制限はない。エポキシ樹脂組成物が陰イオン交換体を含有する場合、陰イオン交換体の含有率は、例えば、0.1質量%~30質量%であることが好ましく、1.0質量%~5質量%であることがより好ましい。

【0100】

(離型剤)

エポキシ樹脂組成物は、成形工程において金型に対する良好な離型性を発揮させる観点から、必要に応じて離型剤を含有してもよい。離型剤の種類は特に制限されず、当該技術分野において公知の離型剤が挙げられる。具体的に、離型剤としては、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸等の高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、酸化ポリエチレン、非酸化ポリエチレン等のポリオレフィン系ワックスなどが挙げられる。中でも、カルナバワックス及びポリオレフィン系ワックスが好ましい。離型剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0101】

ポリオレフィン系ワックスとしては、市販品を用いてもよく、例えば、ヘキスト社のH4、PE、PEDシリーズ等の数平均分子量が500~10000程度の低分子量ポリエチレンなどが挙げられる。

10

20

30

40

50

## 【 0 1 0 2 】

エポキシ樹脂組成物がポリオレフィン系ワックスを含有する場合、ポリオレフィン系ワックスの含有率は、エポキシ樹脂に対して 0.01 質量% ~ 10 質量%であることが好ましく、0.10 質量% ~ 5 質量%であることがより好ましい。ポリオレフィン系ワックスの含有率が 0.01 質量%以上であると十分な離型性が得られる傾向にあり、10 質量%以下であると十分な接着性が得られる傾向にある。

また、エポキシ樹脂組成物がポリオレフィン系ワックス以外のその他の離型剤を含有する場合、又はエポキシ樹脂組成物がポリオレフィン系ワックス及びその他の離型剤を含有する場合、ポリオレフィン系ワックス以外のその他の離型剤の含有率は、エポキシ樹脂に対して 0.1 質量% ~ 10 質量%であることが好ましく、0.5 質量% ~ 3 質量%であることがより好ましい。

10

## 【 0 1 0 3 】

(難燃剤)

エポキシ樹脂組成物は、難燃性を付与する観点から、必要に応じて難燃剤を含有してもよい。難燃剤は特に制限されず、例えば、ハロゲン原子、アンチモン原子、窒素原子又はリン原子を含む公知の有機化合物及び無機化合物、金属水酸化物、並びにアセナフチレンが挙げられる。難燃剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

## 【 0 1 0 4 】

エポキシ樹脂組成物が難燃剤を含有する場合、難燃剤の含有率は、難燃効果が得られる量であれば特に制限はない。エポキシ樹脂組成物が難燃剤を含有する場合、難燃剤の含有率は、エポキシ樹脂に対して、1 質量% ~ 30 質量%であることが好ましく、2 質量% ~ 15 質量%であることがより好ましい。

20

## 【 0 1 0 5 】

(カップリング剤)

エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて、樹脂成分と無機充填材との接着性を高める観点から、カップリング剤を含有してもよい。カップリング剤の種類は、特に制限されない。カップリング剤としては、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、メタクリルシラン、アクリルシラン、ビニルシラン等の各種シラン化合物、チタン化合物、アルミニウムキレート化合物、アルミニウム及びジルコニウム含有化合物などが挙げられる。カップリング剤は、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。

30

## 【 0 1 0 6 】

エポキシ樹脂組成物がカップリング剤を含有する場合、カップリング剤の含有率は、無機充填材に対して 0.05 質量% ~ 5.0 質量%であることが好ましく、0.10 質量% ~ 2.5 質量%であることがより好ましい。カップリング剤の含有率が 0.05 質量%以上であるとフレームとの接着性が向上する傾向にあり、5.0 質量%以下であるとパッケージの成形性に優れる傾向にある。

## 【 0 1 0 7 】

(応力緩和剤)

エポキシ樹脂組成物は、パッケージの反り変形量及びパッケージクラックを低減させる観点から、必要に応じて、シリコンオイル、シリコンゴム粒子等の応力緩和剤を含有してもよい。使用可能な応力緩和剤としては、当該技術分野で一般に用いられる可とう剤(応力緩和剤)を適宜選択して使用することができる。

40

## 【 0 1 0 8 】

応力緩和剤として具体的には、シリコン、ポリスチレン、ポリオレフィン、ポリウレタン、ポリエステル、ポリエーテル、ポリアミド、ポリブタジエン等の熱可塑性エラストマー; NR(天然ゴム)、NBR(アクリロニトリル-ブタジエンゴム)、アクリルゴム、ウレタンゴム、シリコンパウダー等のゴム粒子; メタクリル酸メチル-スチレン-ブタジエン共重合体(MBS)、メタクリル酸メチル-シリコン共重合体、メタクリル酸メチル-アクリル酸ブチル共重合体等のコア-シェル構造を有するゴム粒子などが挙げら

50

れる。中でも、シリコーンを含有するシリコーン系応力緩和剤が好ましい。シリコーン系応力緩和剤としては、エポキシ基を有するもの、アミノ基を有するもの、これらをポリエーテル変性したものが挙げられる。応力緩和剤は、1種を単独で用いても2種以上組み合わせ用いてもよい。

#### 【0109】

(着色剤)

エポキシ樹脂組成物は、カーボンブラック、繊維状カーボン、有機染料、有機着色剤、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の着色剤を含有してもよい。エポキシ樹脂組成物が着色剤を含有する場合、着色剤の含有率は、無機充填材に対して0.05質量%~5.0質量%であることが好ましく、0.10質量%~2.5質量%であることがより好ましい。

10

#### 【0110】

[エポキシ樹脂組成物の調製方法]

エポキシ樹脂組成物の調製には、各種成分を分散混合できるのであれば、いずれの手法を用いてもよい。一般的な手法として、各種成分をミキサー等によって充分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって熔融混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。より具体的には、エポキシ樹脂組成物は、例えば、上述した成分を混合して攪拌し、予め70~140に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練した後、冷却し、粉碎する等の方法によって得ることができる。エポキシ樹脂組成物は、パッケージの成形条件に合うような寸法及び質量でタブレット化してもよい。エポキシ樹脂組成物をタブレット化することで、取り扱いが容易になる。

20

#### 【0111】

[エポキシ樹脂組成物の流動性]

本開示のエポキシ樹脂組成物は、以下の方法で流動性を測定したときに、100cm以上の流動距離を示すことが好ましい。EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いてエポキシ樹脂組成物を成形し、エポキシ樹脂組成物の成形物の流動距離(cm)を測定する。エポキシ樹脂組成物の成形は、トランスファー成形機を用い、金型温度180、成形圧力6.9MPa、硬化時間120秒の条件下で行うものとする。

#### 【0112】

<エポキシ樹脂硬化物>

本開示のエポキシ樹脂硬化物は、上述したエポキシ樹脂組成物を硬化してなる。本開示のエポキシ樹脂硬化物は、上述したエポキシ樹脂組成物を硬化して得られることから、熱伝導性に優れる傾向にある。

30

#### 【0113】

[エポキシ樹脂硬化物の熱伝導率]

エポキシ樹脂硬化物の熱伝導率は特に制限されず、4W/(m・K)以上であることが好ましい。本開示においてエポキシ樹脂硬化物の熱伝導率は以下のように測定したときの値とする。エポキシ樹脂組成物を用いて、金型温度180、成形圧力7MPa、硬化時間300秒間の条件でトランスファー成形を行い、金型形状のエポキシ樹脂硬化物を得る。得られたエポキシ樹脂硬化物の比重をアルキメデス法により測定し、比熱をDSC(例えば、Perkin Elmer社、DSC Pyris 1)で測定する。また、得られた硬化物の熱拡散率を、熱拡散率測定装置(例えば、NETZSCH社、LFA 467)を用いてレーザーフラッシュ法により測定する。得られた比重、比熱、及び熱拡散率を用いてエポキシ樹脂硬化物の熱伝導率を算出する。

40

#### 【0114】

<電子部品装置>

本開示の電子部品装置は、素子と、前記素子を封止している本開示のエポキシ樹脂組成物の硬化物と、を有し、BGAパッケージの形態を有する。BGAパッケージは、裏面に金属パンプを形成した基板のおもて面に素子を搭載し、パンプ又はワイヤボンディングにより素子と基板に形成された配線を接続した後、素子を封止して作製される。基板としては、ガラス-エポキシ基板、プリント配線版等が挙げられる。素子としては、能動素子、

50

受動素子等が挙げられる。能動素子としては、半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等が挙げられる。受動素子としては、コンデンサ、抵抗体、コイル等が挙げられる。

【0115】

本開示の電子部品装置において、素子をエポキシ樹脂硬化物で封止する方法は、特に制限されず、当技術分野において公知の方法を適用することが可能である。例えば、低圧トランスファー成形法が一般的であるが、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】

【0116】

以下、上記実施形態の一例を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0117】

(エポキシ樹脂組成物の調製)

下記に示す成分を表1に示す配合割合で混合し、実施例と比較例のエポキシ樹脂組成物を調製した。表1中、成分の配合量は特段の記載がない場合は質量部を表し、「-」は成分が配合されていないことを示す。

【0118】

- ・エポキシ樹脂1・・・ビフェニル型エポキシ樹脂(三菱ケミカル株式会社、商品名「YX-4000」)
- ・エポキシ樹脂2・・・ビスフェノールF型エポキシ樹脂(新日鐵住金化学株式会社、商品名「YSLV-80XY」)
- ・硬化剤...多官能フェノール樹脂(エア・ウォーター株式会社、商品名「HE910」、水酸基当量105g/eqのトリフェニルメタン型フェノール樹脂)
- ・硬化促進剤...リン系硬化促進剤(有機リン化合物)

【0119】

無機充填材として、以下を用意した。

- ・無機充填材1：アルミナ-シリカ混合フィラー(シリカ含有率：10質量%)、体積平均粒子径：10 $\mu$ m
- ・無機充填材2：アルミナフィラー、体積平均粒子径：10 $\mu$ m
- ・無機充填材3：アルミナフィラー、体積平均粒子径：0.8 $\mu$ m
- ・無機充填材4：シリカフィラー、体積平均粒子径：0.8 $\mu$ m

【0120】

可塑剤として、以下を用意した。

- ・可塑剤1：有機ホスフィンオキシド
- ・可塑剤2：インデン-スチレン共重合体(日塗化学株式会社、NH-100S)

【0121】

その他、各種添加剤として、以下を用意した。

- ・カップリング剤：アニリノシラン(N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、信越化学工業株式会社、商品名：KBM-573)
- ・着色剤：カーボンブラック(三菱ケミカル株式会社、商品名：MA-100)
- ・離型剤：モンタン酸エステル(株式会社セラリカNODA)

【0122】

10

20

30

40

50

【表 1】

配合名	実施例								比較例		
	1	2	3	4	5	6	7	8	1	2	
エポキシ樹脂	エポキシ樹脂 1	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5
	エポキシ樹脂 2	26.5	26.5	26.5	26.5	26.5	26.5	26.5	30.5	30.5	30.5
硬化剤		54.2	54.2	54.2	54.2	54.2	54.2	54.2	54.2	54.2	54.2
硬化促進剤	リン系硬化促進剤	3	3	3	3	3	3	3	2.9	3	3
カップリング剤	KBM-573	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
離型剤	モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
着色剤	カーボンブラック	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4
可塑剤	可塑剤 1	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	可塑剤 2	-	-	-	-	-	-	10	-	-	-
無機充填材	組成物中の無機充填材の含有率 (体積%)	75	84	75	84	75	84	84	75	74	84
	無機充填材 1	1490	2608	-	-	-	-	-	-	1434	-
	無機充填材 2	-	-	1550	2711	1635	2873	2711	1642	-	2569
	無機充填材 3	201	352	201	352	200	352	352	201	191	334
無機充填材 4	14	24	54	94	-	-	94	-	-	89	
アルミナとシリカの合計量に対するシリカ含有率 (質量%)	9.6	9.5	3.0	3.0	0	0	3.0	0	8.8	3.0	

## 【 0 1 2 3 】

(流動性の評価)

エポキシ樹脂組成物の流動性の評価は、スパイラルフロー試験により行った。

具体的には、EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いてエポキシ樹脂組成物を成形し、エポキシ樹脂組成物の成形物の流動距離 (cm) を測定した。エポキシ樹脂組成物の成形は、トランスファー成形機を用い、金型温度 180、成形圧力 6.9 MPa、硬化時間 120 秒の条件下で行った。また、流動性は 100 cm 以上を A とし、100 cm 未満を B とした。

## 【 0 1 2 4 】

10

20

30

40

50

## (熱伝導率の評価)

エポキシ樹脂組成物を硬化したときの熱伝導率の評価は、下記により行った。具体的には、調製したエポキシ樹脂組成物を用いて、金型温度180、成形圧力7MPa、硬化時間300秒間の条件でトランスファー成形を行い、金型形状の硬化物を得た。得られた硬化物をアルキメデス法により測定した比重は3.00~3.40であった。得られた硬化物の比熱をDSC(Perkin Elmer社、DSC Pyris 1)で測定した。また硬化物の熱拡散率を熱拡散率測定装置(NETZSCH社、LFA 467)を用いてレーザーフラッシュ法により測定した。得られた比重、比熱、及び熱拡散率を用いてエポキシ樹脂硬化物の熱伝導率を算出した。熱伝導率は4W/(m・K)以上をAとし、4W/(m・K)未満をBとした。

10

【0125】

【表2】

	実施例								比較例	
	1	2	3	4	5	6	7	8	1	2
流動性	A	A	A	A	A	A	A	A	A	B
熱伝導率	A	A	A	A	A	A	A	A	B	A

【0126】

なお、実施例6における組成物中の無機充填材の含有率を85質量%に変更して混練を実施したところ、混練物を得ることができなかった。

20

【0127】

表2からわかるように、エポキシ樹脂2、硬化剤、無機充填材、及び可塑剤を含有し、無機充填材の含有率が75体積%~84体積%であり、アルミナ粒子及びシリカ粒子の合計量に対するシリカ粒子の割合が0質量%~15質量%以下の範囲内である実施例1~8では、流動性、及び熱伝導率のいずれの評価も良好であった。

【0128】

日本国特許出願第2017-254882号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。

本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書中に援用されて取り込まれる。

30

40

50

## フロントページの続き

## (51)国際特許分類

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)*

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内

(72)発明者 児玉 拓也

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内

(72)発明者 堀 慧地

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内

審査官 尾立 信広

(56)参考文献 特開2017-203132(JP, A)

特開2017-190425(JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4

C 0 8 K 3 / 0 0 - 1 3 / 0 8

C 0 8 G 5 9 / 0 0 - 5 9 / 7 2

H 0 1 L 2 3 / 2 8 - 2 3 / 3 0