



(10) 申请公布号 CN 117795002 A

(43) 申请公布日 2024.03.29

(21) 申请号 202280052503.6

(22) 申请日 2022.08.05

(30) 优先权数据

2021-186626 2021.11.16 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.01.26

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2022/030151 2022.08.05

(87) PCT国际申请的公布数据

W02023/089878 JA 2023.05.25

(71) 申请人 纳美仕有限公司

地址 日本新潟县

(72) 发明人 铃木真 酒井洋介 上村刚

(74) 专利代理机构 北京信慧永光知识产权代理
有限责任公司 11290

专利代理师 孙雪 张淑珍

(51) Int.Cl.

G08L 63/00 (2006.01)

H01L 23/31 (2006.01)

H01L 23/29 (2006.01)

G08K 3/36 (2006.01)

G08K 3/28 (2006.01)

G08G 59/18 (2006.01)

权利要求书2页 说明书15页

(54) 发明名称

环氧树脂组合物、液状压缩模制材料、顶部
封装材料以及半导体装置

(57) 摘要

[技术问题] 本发明提供一种环氧树脂组合物,所述环氧树脂组合物的注入性和固化物的热传导性优异,并且也能够用于制造操作可靠性也高的半导体装置。[技术手段] 一种环氧树脂组合物,其特征在于,所述环氧树脂组合物是含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、(C)固化催化剂、(D)填料的环氧树脂组合物,所述(D)填料含有(D-1)氮化铝填料,所述(D-1)氮化铝填料的平均粒径为 $10.0\ \mu\text{m}$ 以下, (D-1)氮化铝填料的铈含量为20ppb以下,所述(D-1)氮化铝填料相对于所述(D)填料的总量的配合比例为70质量%以上。

1. 一种环氧树脂组合物,其特征在于,所述环氧树脂组合物是含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、(C)固化催化剂、(D)填料的环氧树脂组合物,
所述(D)填料含有(D-1)氮化铝填料,
所述(D-1)氮化铝填料的平均粒径为 $10.0\mu\text{m}$ 以下,
所述(D-1)氮化铝填料的铀含量为 20ppb 以下,
所述(D-1)氮化铝填料相对于所述(D)填料的总量的配合比例为 $70\text{质量}\%$ 以上。
2. 如权利要求1所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述环氧树脂组合物的固化物的 α 射线量为 $0.100\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下。
3. 如权利要求1或2所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述环氧树脂组合物的固化物的 α 射线量为 $0.005\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下。
4. 如权利要求1-3中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述环氧树脂组合物的固化物的热导率为 $1.5\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$ 以上。
5. 如权利要求1-4中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
在 25°C 下的粘度为 $500.0\text{Pa} \cdot \text{s}$ 以下。
6. 如权利要求1-5中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述(D-1)氮化铝填料的平均粒径为 $7.5\mu\text{m}$ 以下。
7. 如权利要求1-6中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
相对于所述环氧树脂组合物的合计质量 100质量份 ,所述(D)填料的配合量为 50.0质量份 - 90.0质量份 。
8. 如权利要求1-7中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述(D)填料进一步含有(D-2)二氧化硅填料,
所述(D-2)二氧化硅填料的平均粒径为 5nm - 120nm ,
所述(D-2)二氧化硅填料的铀含量为 20ppb 以下。
9. 如权利要求8所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
相对于所述环氧树脂组合物,所述(D-1)氮化铝填料和所述(D-2)二氧化硅填料的合计配合比例为 $60.0\text{质量}\%$ - $85.0\text{质量}\%$ 。
10. 如权利要求1-9中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述(D)填料的形状为不规则形状。
11. 如权利要求1-10中任一项所述的环氧树脂组合物,其特征在于,
所述(B)固化剂为选自于由酚系固化剂、胺系固化剂以及酸酐系固化剂所组成的组中的任一种以上。
12. 如权利要求11所述的环氧树脂组合物,其中,
所述(B)固化剂至少含有所述酚系固化剂,并且所述酚系固化剂相对于所述树脂组合物的含有比例为 $1\text{质量}\%$ - $5\text{质量}\%$ 。
13. 一种液状压缩模制材料,其特征在于,含有权利要求1-12中任一项所述的环氧树脂组合物。
14. 一种顶部包封材料,其特征在于,含有权利要求1-12中任一项所述的环氧树脂组合物。
15. 一种半导体装置,其特征在于,具备由权利要求13所述的液状压缩模制材料的固化

物构成的密封材料。

16. 一种半导体装置, 其特征在于, 具备由权利要求14所述的顶部包封材料的固化物构成的密封材料。

环氧树脂组合物、液状压缩模制材料、顶部包封材料以及半导体装置

技术领域

[0001] 本发明涉及环氧树脂组合物、液状压缩模制材料(コンプレッションモールド材)、顶部包封材料(グラブトップ材)以及半导体装置。

背景技术

[0002] 构成半导体装置的集成电路等半导体元件大多由密封材料密封。存在多种用于进行半导体元件的密封的成型方法。其中,近年来,更适合于制造相对大型的成型品的压缩成型在半导体元件的密封上被采用的机会增加。这是由于晶圆级芯片尺寸封装技术(伴随着将电路形成完成后的未被切分为芯片的晶圆直接密封的技术)的普及不断发展等。

[0003] 通过压缩成型进行半导体元件的密封所使用的以往的固化性树脂组合物主要是颗粒状等固体形态的树脂组合物。但是最近,伴随着新型压缩成型技术的开发,使用液状固化性树脂组合物(以下,存在将通过压缩成型进行密封所使用的这样的液状固化性树脂组合物称为“液状压缩模制材料”或“LCM(Liquid Compression Molding)材料”的情况)。从电特性、耐湿性、耐热性、机械特性以及粘接性等诸特性的平衡的观点出发,液状环氧树脂组合物经常被用作液状压缩模制材料。

[0004] 另外,半导体装置的进一步的高性能化逐年发展。例如,使用半导体装置的智能手机或个人电脑这样的电子设备的轻薄短小化以及高性能化显著。因此,将半导体装置产生的热向外部有效地散热的的需求提高。作为提高半导体装置的散热性的方法,提出了在环氧树脂组合物中添加导热性优异的各种填料的技术(例如,专利文献1-专利文献5)。

[0005] 此外,对使用了易受 α 射线影响的半导体装置的器件中的误操作进行抑制也很重要。作为抑制这样的误操作的方法,提出了以下技术:将添加于环氧树脂组合物中的填料中所含的铀等 α 射线产生元素的含量限制在规定的值以下。另外,还提出了以下技术:将环氧树脂组合物的固化物中的 α 射线的量限制在规定的值以下(例如,专利文献5-专利文献10)。

现有技术文献

专利文献

- [0006] 专利文献1:国际公开第2018/181737号
专利文献2:国际公开第2018/181600号
专利文献3:日本特开2017-039802号公报
专利文献4:日本特开2011-079973号公报
专利文献5:日本特开2016-023219号公报
专利文献6:日本特开2005-248087号公报
专利文献7:日本特开2011-236118号公报
专利文献8:日本特开2014-005359号公报
专利文献9:日本特开2017-195319号公报
专利文献10:日本特开2017-110146号公报

发明内容

发明所要解决的技术问题

[0007] 一方面,近年来,需要下述环氧树脂组合物:除了对环氧树脂组合物所要求的基本特性、即对密封部位的优异的注入性之外,所述环氧树脂组合物还能够用于制造固化物的热传导性优异、并且操作可靠性也高的半导体装置。但是,在专利文献1-专利文献10等所例示的现有技术中,这3个特性不能被均衡地兼顾。

[0008] 本发明是鉴于上述情况而完成的发明。即,本发明的技术问题在于:提供环氧树脂组合物、使用了该环氧树脂组合物的液状压缩模制材料和顶部包封材料、以及使用这些材料制造的半导体装置,其中,所述环氧树脂组合物的注入性和固化物的热传导性优异,并且也能够用于制造操作可靠性也高的半导体装置。

解决技术问题的技术手段

[0009] 上述技术问题通过以下的本发明来实现。即:

本发明的环氧树脂组合物是含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、(C)固化催化剂、(D)填料的环氧树脂组合物。该环氧树脂组合物的特征在于,所述(D)填料含有(D-1)氮化铝填料,并且所述(D-1)氮化铝填料相对于所述(D)填料的总量的配合比例为70质量%以上。在此,(D-1)氮化铝填料的平均粒径为10.0 μm 以下。另外,(D-1)氮化铝填料的铀含量为20ppb以下。

[0010] 本发明的环氧树脂组合物一个实施方式中,所述环氧树脂组合物的固化物的 α 射线量优选为0.100count/cm²·h以下。

[0011] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述环氧树脂组合物的固化物的 α 射线量优选为0.005count/cm²·h以下。

[0012] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述环氧树脂组合物的固化物的热导率优选为1.5W/m·K以上。

[0013] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,在25℃下的粘度优选为500.0Pa·s以下。

[0014] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述(D-1)氮化铝填料的平均粒径优选为7.5 μm 以下。

[0015] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,相对于所述环氧树脂组合物的合计质量100质量份,所述(D)填料的配合量优选为50.0质量份-90.0质量份。

[0016] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述(D)填料优选进一步含有(D-2)二氧化硅填料。在此,所述(D-2)二氧化硅填料的平均粒径为5nm-120nm。另外,(D-2)二氧化硅填料的铀含量为20ppb以下。

[0017] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,相对于所述环氧树脂组合物,所述(D-1)氮化铝填料和所述(D-2)二氧化硅填料的合计配合比例优选为60.0质量%-85.0质量%。

[0018] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述(D)填料的形状优选为不规则形状。

[0019] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述(B)固化剂优选为选自于由酚系固化剂、胺系固化剂以及酸酐系固化剂所组成的组中的任一种以上。

[0020] 本发明的环氧树脂组合物的其它实施方式中,所述(B)固化剂优选至少含有所述酚系固化剂,并且所述酚系固化剂相对于所述环氧树脂组合物的含有比例为1质量%-5质量%。

[0021] 本发明的液状压缩模制材料的特征在于,含有本发明的环氧树脂组合物。

[0022] 本发明的顶部包封材料的特征在于,含有本发明的环氧树脂组合物。

[0023] 本发明的第一半导体装置的特征在于,具备由本发明的液状压缩模制材料的固化物构成的密封材料。

[0024] 本发明的第二半导体装置的特征在于,具备由本发明的顶部包封材料的固化物构成的密封材料。

有益效果

[0025] 本发明可以提供一种环氧树脂组合物,所述环氧树脂组合物的注入性和固化物的热传导性优异,并且也能够用于制造操作可靠性也高的半导体装置。另外,本发明可以提供使用该环氧树脂的液状压缩模制材料以及顶部包封材料。进一步地,本发明可以提供使用这些材料制造的半导体装置。

具体实施方式

[0026] 本实施方式的环氧树脂组合物是含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、(C)固化催化剂、(D)填料的树脂组合物。此处,本实施方式的环氧树脂组合物中,特征在于,(D)填料含有(i)平均粒径为 $10.0\mu\text{m}$ 以下且(ii)铀含量为20ppb以下的(D-1)氮化铝填料,并且(D-1)氮化铝填料相对于(D)填料的总量的配合比例为70质量%以上。

[0027] 另外,在以下的说明中,存在将满足条件(i)和(ii)的氮化铝填料简称为“氮化铝填料”的情况。另外,将不满足条件(i)和(ii)的至少一者的氮化铝填料称为“其它氮化铝填料”,将由氮化铝以外的材质构成的填料称为“由其它材质构成的填料”,将满足条件(i)和(ii)的氮化铝填料以外的填料,换言之,将“其它氮化铝填料”和“由其它材质构成的填料”这两者的总称称为“其它填料”。

[0028] 本实施方式的环氧树脂组合物中,作为填料使用的氮化铝填料具有高的热传导率。因此,环氧树脂组合物的固化物(即,在半导体装置中密封半导体元件的密封材料)的热传导性优异。因此,半导体装置的散热性也优异。在此基础上,氮化铝填料的平均粒径为 $10.0\mu\text{m}$ 以下,因此,环氧树脂组合物注入性也优异。

[0029] 本实施方式的环氧树脂组合物中,相对于用作填料的氮化铝填料总量,作为 α 射线的产生源的铀的含量为20ppb以下。另外,在构成本实施方式的环氧树脂组合物的成分中,对于填料以外的各成分,通常实质上不能含有作为 α 射线的产生源的铀等杂质。在此,本实施方式的环氧树脂组合物中,铀的含量为20ppb以下的氮化铝填料相对于填料的总量的配合比例为70质量%以上。即,填料的大部分由 α 射线量小的氮化铝填料占据。其结果为,也能够大幅度抑制本实施方式的环氧树脂组合物的固化物的 α 射线量。因此,在使用本实施方式的环氧树脂组合物而制作的半导体装置中,操作可靠性高。

[0030] 另外,由于上述理由,本实施方式的环氧树脂组合物中,可以非常容易地使固化物的 α 射线量为 $0.100\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下。另外,固化物的 α 射线量优选为 $0.020\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下,更优选为 $0.010\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下,进一步优选为 $0.005\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 以下。固化物的 α 射

线量越接近 $0\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 越好。但是,难以将作为杂质的铀等 α 射线产生源从配合于环氧树脂组合物的(D)填料中完全地除去。因此,实际使用上的固化物的 α 射线量的下限值为 $0.001\text{count}/\text{cm}^2 \cdot \text{h}$ 或其以上即可。

[0031] 相对于填料的总量,铀的含量为20ppb以下的氮化铝填料的配合比例可以从70质量%-100质量%的范围内适当选择。但是,作为填料,在将铀含量为20ppb以下的氮化铝填料与其它填料组合使用的情况下,其它填料的铀含量也越小越好。具体地,其它填料的铀含量优选为100ppb以下,更优选为20ppb以下。

[0032] 以下,对构成本实施方式的环氧树脂组合物的各成分进行说明。

[0033] (A) 环氧树脂

作为本实施方式的环氧树脂组合物所使用的环氧树脂,只要是通常作为半导体密封用而使用的各种环氧树脂即可,没有特别限定。作为环氧树脂,特别地,从耐热循环性等观点出发,优选为多官能型环氧树脂。另外,作为配合于环氧树脂组合物中的环氧树脂,可以仅使用1种环氧树脂,也可以并用2种以上的环氧树脂。在使用1种环氧树脂的情况下,使用在常温下为液状的环氧树脂。在混合使用2种以上的环氧树脂的情况下,只要在混合后的状态下在常温下为液状,则各个种类的环氧树脂在常温下也可以为固态。作为环氧树脂的具体示例,可以举出分子内具有至少1个环氧基团且分子中不具有芳香环的脂肪族环氧树脂化合物,以及分子内具有至少1个环氧基团且分子中具有芳香环的芳香族环氧树脂化合物。环氧树脂只要是通常作为半导体密封用而使用的各种环氧树脂即可,没有特别限定。环氧树脂只要是通常作为半导体密封用而使用的各种环氧树脂即可,没有特别限定。

[0034] 作为脂肪族环氧树脂化合物,例如可以举出烷基醇缩水甘油醚[丁基缩水甘油醚、2-乙基己基缩水甘油醚等]、烯基醇缩水甘油醚[乙烯基缩水甘油醚、烯丙基缩水甘油醚等]等分子内具有1个环氧基团的单官能脂肪族环氧树脂化合物;亚烷基二醇二缩水甘油醚(アルキレングリコールジグリシジルエーテル)、聚(亚烷基二醇)二缩水甘油醚(ポリ(アルキレングリコール)ジグリシジルエーテル)、亚烯基二醇二缩水甘油醚(アルケニレングリコールジグリシジルエーテル)等分子内具有2个环氧基团的双官能脂肪族环氧树脂化合物;三羟甲基丙烷、季戊四醇、二季戊四醇等三官能以上的醇的多缩水甘油醚[三羟甲基丙烷三缩水甘油醚、季戊四醇(三或四)缩水甘油醚、二季戊四醇(三、四、五或六)缩水甘油醚等]等分子内具有3个以上环氧基团的多官能脂肪族环氧树脂化合物等。

[0035] 作为双官能脂肪族环氧树脂化合物的更具体的示例,可以举出乙二醇二缩水甘油醚、丙二醇二缩水甘油醚、1,3-丙二醇二缩水甘油醚、2-甲基-1,3-丙二醇二缩水甘油醚、2-丁基-2-乙基-1,3-丙二醇二缩水甘油醚、1,4-丁二醇二缩水甘油醚(四亚甲基二醇二缩水甘油醚)、新戊二醇二缩水甘油醚、3-甲基-2,4-戊二醇二缩水甘油醚、2,4-戊二醇二缩水甘油醚、1,5-戊二醇二缩水甘油醚(五亚甲基二醇二缩水甘油醚)、3-甲基-1,5-戊二醇二缩水甘油醚、2-甲基-2,4-戊二醇二缩水甘油醚、2,4-二乙基-1,5-戊二醇二缩水甘油醚、1,6-己二醇二缩水甘油醚(六亚甲基二醇二缩水甘油醚)、1,7-庚二醇二缩水甘油醚、3,5-庚二醇二缩水甘油醚、1,8-辛二醇二缩水甘油醚、2-甲基-1,8-辛二醇二缩水甘油醚、1,9-壬二醇二缩水甘油醚等亚烷基二醇二缩水甘油醚(烷二醇二缩水甘油醚);二乙二醇二缩水甘油醚、三乙二醇二缩水甘油醚、四乙二醇二缩水甘油醚、二丙二醇二缩水甘油醚、聚乙二醇二缩水甘油醚、聚丙二醇二缩水甘油醚、聚(乙二醇/丙二醇)二缩水甘油醚、二(四亚甲基二

醇)二缩水甘油醚、三(四亚甲基二醇)二缩水甘油醚、聚四亚甲基二醇二缩水甘油醚、二(五亚甲基二醇)二缩水甘油醚、三(五亚甲基二醇)二缩水甘油醚、聚五亚甲基二醇二缩水甘油醚、二(六亚甲基二醇)二缩水甘油醚、三(六亚甲基二醇)二缩水甘油醚、聚六亚甲基二醇二缩水甘油醚等聚亚烷基二醇二缩水甘油醚(也包括低聚亚烷基二醇二缩水甘油醚)等。

[0036] 作为芳香族环氧树脂化合物的示例,例如可以举出双酚A、双酚F、双酚AD、双酚S、邻苯二酚、间苯二酚等酚类的缩水甘油醚,对羟基苯甲酸等羟基羧酸的缩水甘油醚酯,苯甲酸、邻苯二甲酸、对苯二甲酸等羧酸的单缩水甘油酯或多缩水甘油酯,二缩水甘油基苯胺、二缩水甘油基甲苯胺、三缩水甘油基-对氨基苯酚、四缩水甘油基-间苯二甲胺等缩水甘油基胺型环氧化合物,萘酚的缩水甘油酯、 β -羟基萘甲酸等的缩水甘油醚酯等具有萘骨架的环氧化合物等。另外,也可以使用将苯酚、邻苯二酚、间苯二酚等酚类酚醛化而得的酚醛化合物。其中,优选缩水甘油基胺型环氧化合物。

[0037] (B) 固化剂

作为本实施方式环氧树脂组合物中使用的固化剂,只要是通常使用的各种固化剂即可,没有特别限定。作为固化剂的示例,可以举出胺系固化剂、酸酐系固化剂、酚系固化剂等。另外,作为配合于环氧树脂组合物中的固化剂,可以仅使用1种固化剂,也可以并用2种以上的固化剂。固化剂的配合量优选为与环氧树脂的化学计量学上的当量比(固化剂当量/环氧基团当量)为0.01-1.00的量。更优选的当量比为0.05-0.50的量。进一步优选的当量比为0.08-0.30的量。另外,相对于从环氧树脂组合物中除去填料(固态成分)的液状成分,固化剂的配合比例优选为1质量%-100质量%,更优选为5质量%-15质量%。

[0038] 作为胺系固化剂的具体示例,可以举出三亚乙基四胺、四亚乙基五胺、间二甲苯二胺、三甲基六亚甲基二胺、2-甲基五亚甲基二胺等脂肪族多胺,异佛尔酮二胺、1,3-双氨基甲基环己烷、双(4-氨基环己基)甲烷、降冰片烯二胺、1,2-二氨基环己烷等脂环式多胺;N-氨基乙基哌嗪、1,4-双(2-氨基-2-甲基丙基)哌嗪等哌嗪型多胺;二乙基甲苯二胺、二甲硫基甲苯二胺、4,4'-二氨基-3,3'-二乙基二苯基甲烷、双(甲硫基)甲苯二胺、二氨基二苯基甲烷、间苯二胺、二氨基二苯砜、二乙基甲苯二胺、三亚甲基双(4-氨基苯甲酸酯)(トリメチレンビス(4-アミノベンゾエート))、聚四亚甲基醚二醇-二-对氨基苯甲酸酯(ポリテトラメチレンオキシド-ジ-p-アミノベンゾエート)等芳香族多胺类。另外,作为市售品,可以举出エピキュア-W、エピキュア-Z(油化シェルエポキシ株式会社,商品名)、jERキュア(注册商标)-W、jERキュア(注册商标)-Z(三菱ケミカル株式会社,商品名)、カヤハードA-A、カヤハードA-B、カヤハードA-S(日本化薬株式会社,商品名)、トートアミンHM-205(新日鉄住金化学株式会社,商品名)、アデカハードナーEH-101(株式会社ADEKA,商品名)、エポシクQ-640、エポシクQ-643(三井化学株式会社,商品名)、DETDA80(Lonza公司,商品名)、トートアミンHM-205(新日鉄住金化学株式会社,商品名)等。

[0039] 作为酸酐系固化剂具体示例,可以举例示出甲基四氢邻苯二甲酸酐、甲基六氢邻苯二甲酸酐、甲基四氢邻苯二甲酸酐等烷基化四氢邻苯二甲酸酐,六氢邻苯二甲酸酐、甲基降冰片烯二酸酐(メチルハイシク酸無水物)、被烯基取代的琥珀酸酐、甲基纳迪克酸酐(メチルナジック酸無水物)、戊二酸酐等。

[0040] 作为酚系固化剂具体示例,是指具有酚性羟基的单体、低聚物、聚合物全体,例如可以举出苯酚酚醛清漆树脂及其烷基化物或烯丙基化物、甲酚酚醛清漆树脂、苯酚芳烷

基(包括亚苯基、联苯骨架)树脂、萘酚芳烷基树脂、三苯酚甲烷树脂、二环戊二烯型酚醛树脂等。

[0041] 其中,酚系固化剂是适合的。本实施方式的环氧树脂组合物中,作为固化剂,在至少使用酚系固化剂的情况下,酚系固化剂相对于环氧树脂组合物的含有比例优选为1质量%-5质量%,更优选为1.5质量%-4质量%。在酚系固化剂的含有比例小于1质量%的情况下,存在半导体元件或基板与环氧树脂组合物的密合性容易降低的情况。另外,在酚系固化剂的含有比例超过5质量%的情况下,环氧树脂组合物的粘度变高,因此存在注入性容易劣化的情况。

[0042] (C) 固化催化剂

作为本实施方式的环氧树脂组合物中使用的固化催化剂,只要是通常使用的各种固化催化剂即可,没有特别限定。作为固化催化剂的示例,可以举出咪唑化合物等含氮杂环系固化催化剂(包括与环氧树脂或异氰酸酯树脂加成或微胶囊化的类型)、叔胺系固化催化剂、磷化合物系固化催化剂等。特别地,从耐热循环性的观点出发,优选含氮杂环系固化催化剂。另外,作为配合于环氧树脂组合物中的固化催化剂,可以仅使用1种固化催化剂,也可以并用2种以上的固化催化剂。没有特别限制。相对于环氧树脂组合物100质量份,优选的固化催化剂的配合量为1质量%-15质量%,更优选的配合量为2质量%-10质量%。

[0043] 作为含氮杂环系固化催化剂的具体示例,例如可以举出2-甲基咪唑、2-十一烷基咪唑、2-十七烷基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-苯基-4,5-二羟基甲基咪唑、2-苯基-4-甲基-5-羟基甲基咪唑、1-氰基乙基-2-十一烷基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-咪唑、2-苯基咪唑、1-苄基-2-苯基咪唑、苯并咪唑、2,4-二氨基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-s-三嗪、2-苯基-4,5-二羟基甲基咪唑、2,3-二氢-1H-吡咯并[1,2-a]苯并咪唑等咪唑化合物。在该情况下,具体地,可以举出2MZ、2P4MZ、2E4MZ(均为四国化成工业公司制造,商品名)等。另外,作为咪唑化合物以外的含氮杂环系固化催化剂,可以举出二氮杂双环十一烯(DBU)、DBU-苯酚盐、DBU-辛酸盐、DBU-对甲苯磺酸盐、DBU-甲酸盐、DBU-邻苯二甲酸盐、DBU-苯酚酚醛清漆树脂盐、DBU系四苯基硼酸盐、二氮杂双环壬烯(DBN)、DBN-苯酚酚醛清漆树脂盐、二氮杂双环辛烷、吡唑、噁唑、噻唑、咪唑啉、吡嗪、吗啉、噻嗪、吡啶、异吡啶、嘌呤、喹啉、异喹啉、喹喔啉、噌啉、蝶啶等。

[0044] 另外,关于咪唑化合物,也可以使用被称为微胶囊型咪唑或环氧加成型咪唑的胶囊化咪唑。即,可以使用咪唑系潜在性固化剂,所述咪唑系潜在性固化剂是通过异氰酸酯化合物对用尿素或异氰酸酯化合物进行了加成的咪唑化合物的表面进行封端而胶囊化的咪唑系潜在性固化剂。或者,可以使用咪唑系潜在性固化剂,所述咪唑系潜在性固化剂是通过异氰酸酯化合物对用环氧化合物进行了加成的咪唑化合物的表面进行封端而胶囊化的咪唑系潜在性固化剂。具体地,例如可举出ノバキュアHX3941HP、ノバキュアHXA3042HP、ノバキュアHXA3922HP、ノバキュアHXA3792、ノバキュアHX3748、ノバキュアHX3721、ノバキュアHX3722、ノバキュアHX3088、ノバキュアHX3741、ノバキュアHX3742、ノバキュアHX3613(均为旭化成ケミカルズ公司制造,商品名)等、アミキュアPN-23J、アミキュアPN-40J(均为味の素ファインテクノ株式会社制造,商品名)、フジキュアFXR-1121富士化成工业株式会社制造,商品名)。

[0045] (D) 填料

作为本实施方式的环氧树脂组合物所使用的填料,至少使用(i)平均粒径为10.0 μ m以下且(ii)铀含量为20ppb以下的氮化铝填料。另外,作为填料,也可以仅使用满足条件(i)和(ii)的氮化铝填料。但是,根据需要也可以组合使用满足条件(i)和(ii)的氮化铝填料和其它填料。

[0046] 在组合使用氮化铝填料和其它填料(特别是由其它材质构成的填料)的情况下,从确保固化物的热传导性的观点出发,氮化铝填料相对于填料总量的配合比例优选为70质量%-99.9质量%,更优选为80质量%-95质量%。另外,在固化物的热传导性的基础上,从吸湿性·线膨胀系数的降低、强度提高以及焊料耐热性的观点出发,相对于环氧树脂组合物总量,本实施方式的环氧树脂组合物中的氮化铝填料的含有率优选为50.0质量%-90质量%,更优选52质量%-80质量%,进一步优选55质量%-70质量%。

[0047] 用于环氧树脂组合物的各种填料通常是出于提高半导体装置中密封的部位的耐湿性或耐热循环性的目的而添加的。另一方面,与通常使用较多的由其它的填料用材质(例如氧化铝、碳化硅、氮化硅、二氧化硅等)构成的填料相比,满足用于本实施方式的环氧树脂组合物的条件(i)和(ii)的氮化铝填料具有高的热传导率。因此,通过使用满足条件(i)和(ii)的氮化铝填料作为填料,也能够实现固化物的优异的热传导性。由此,在将本实施方式的环氧树脂组合物的固化物用作密封材料而制造的半导体装置中,密封部位的散热性容易提高,和/或容易进行半导体装置的热设计。

[0048] 另外,本实施方式的环氧树脂组合物所用的氮化铝填料的平均粒径为10.0 μ m以下。因此,关于本实施方式的环氧树脂组合物,其注入性也优异。因此,在使用本实施方式的环氧树脂组合物制造半导体装置时,成为密封对象的部位的注入性优异。另外,氮化铝填料的平均粒径优选为7.5 μ m以下,更优选为6.0 μ m以下。另一方面,平均粒径的下限值没有特别限定。但是,从氮化铝填料的获得性等实际使用上的观点出发,优选的平均粒径的下限值为0.1 μ m以上。更优选的平均粒径的下限值为0.5 μ m以上。另外,在本申请说明书中,平均粒径是使用通过体积平均粒径(D50)粒径测定法得到的粒度分布而算出的。更具体地,算出剩余粒子的累积体积相对于全部粒子的累积体积为50%的粒径(体积平均粒径(D50)),所述剩余粒子的累积体积是从小粒径侧依次从粒度分布减去经分割的粒度范围(通道)内的累积体积的剩余粒子的累积体积。利用激光散射衍射法测定平均粒径。具体地,使用粒度分布测定装置(ベックマン・コールター公司制造,LS13320),以流速:50ml/sec、测定时间:90sec、测定次数1次、粒子条件:指定光学模型、溶剂:纯水、溶剂折射率:1.333测定平均粒径。

[0049] 另一方面,作为氮化铝填料,将金属铝或氧化铝用作原料而制造的填料是适合的。具体地,优选使用通过直接氮化法制造的氮化铝填料,其中,所述直接氮化法通过使作为原料的金属铝进行氮化反应而生成氮化铝。或者,也优选使用通过还原氮化法制造的氮化铝填料,其中,所述还原氮化法在向作为原料的氧化铝中加入碳粉末后,通过使该氧化铝进行氮化反应而生成氮化铝。此处,构成氮化铝填料的铝元素来源于含有铀作为微量成分的矿石(铝土矿)。因此,通过各种制造方法制造的氮化铝填料也含有作为不可避免的杂质的铀。因此,从铀放出 α 射线可能导致使用半导体装置的器件误操作(另外,对于这一点,氧化铝填料也同样)。因此,本实施方式的环氧树脂组合物中,使用将铀含量降低至20ppb以下的氮化铝填料。因此,通过使 α 射线量降低能够提高半导体装置的操作可靠性,其中,所述 α 射线是来自使本实施方式的环氧树脂组合物固化了的固化物(即半导体装置中的密封材料)的 α 射

线。

[0050] 另外,本实施方式的环氧树脂组合物所用的氮化铝填料中的铀含量更优选为10ppb以下,进一步优选为7ppb以下。另外,铀含量的下限值没有特别限定。理想的最优选的下限值为0ppb。但是,实际使用上,优选的下限值为0.5ppb以上,更优选的下限值为0.8ppb以上。另外,本实施方式的环氧树脂组合物中,在氮化铝填料的基础上还并用其它填料的情况下,其它填料的铀含量也优选为20ppb以下,更优选为10ppb以下,进一步优选为7ppb以下。另外,其它填料的铀含量的下限值没有特别限定。理想的最优选的下限值为0ppb,但是,实际使用上,优选的下限值为0.5ppb以上,更优选的下限值为0.8ppb以上。

[0051] 另外,利用ICP-MS法(电感耦合等离子体质谱法)测定填料中的铀含量。在测定时,首先,在特氟隆烧杯中,将作为测定对象的填料粉末1g称取至特氟隆烧杯中。接着,通过添加5ml硝酸和5ml氢氟酸来制备水溶液。接着,将通过用热板加热水溶液而得到的浓缩溶液放入用于测定的容器中。将该用于测定的容器设置于电感耦合等离子体质谱装置中。由此测定铀含量。

[0052] 另外,本实施方式的环氧树脂组合物中,在氮化铝填料的基础上还并用由其它材质构成的填料的情况下,作为其它填料,可以使用1种以上的公知的填料,所述公知的填料为氧化铝填料、碳化硅填料、氮化硅填料、二氧化硅填料等。其中使用平均粒径为5nm-120nm且铀含量为20ppb以下的二氧化硅填料(以下,存在称为“纳米尺寸二氧化硅填料”的情况)是特别适合的。通过并用这样的纳米尺寸二氧化硅填料,容易实现由固化物构成的密封材料的吸湿性、线膨胀系数的降低、强度提高以及焊料耐热性的提高。因此,在焊料回流处理后,也容易抑制基板与环氧树脂组合物的固化物的界面处的剥离的发生。

[0053] 纳米尺寸二氧化硅填料的粒径比氮化铝填料小。因此,容易在大直径的氮化铝填料彼此的间隙中填充小直径的纳米尺寸二氧化硅填料。就结果而言,容易进一步提高环氧树脂组合物中填料的填充率。在此之上,与氮化铝填料的热膨胀系数相比,纳米尺寸二氧化硅填料的热膨胀系数非常小。因此,将氮化铝填料和纳米尺寸二氧化硅填料作为填料组合而配合的环氧树脂组合物的固化物的热膨胀系数也可以进一步降低。因此,就结果而言,容易大幅改善固化物的耐热循环性。

[0054] 另外,在将纳米尺寸二氧化硅填料配合至本实施方式的环氧树脂组合物中的情况下,从吸湿性、线膨胀系数的降低、强度提高以及焊料耐热性的提高的观点出发,相对于环氧树脂组合物总量,纳米尺寸二氧化硅填料的配合比例优选为0.1质量%-25.0质量%,更优选为5.0质量%-25.0质量%,进一步优选为10.0质量%-20.0质量%。通过使纳米尺寸二氧化硅填料的配合比例为0.1质量%以上,容易得到吸湿性、线膨胀系数降低、强度提高以及焊料耐热性提高的效果。另外,通过使配合比例为25.0质量%以下,容易抑制环氧树脂组合物的过度的增粘。另外,纳米尺寸二氧化硅填料的平均粒径(d2)相对于氮化铝填料的平均粒径(d1)的粒径比(d2/d1)优选在1/200~1/5的范围内,更优选在1/100~1/10的范围内,进一步优选在1/20~1/20的范围内。特别地,在纳米尺寸二氧化硅填料的配合比例变大的情况下,通过使粒径比(d2/d1)为1/200以上,容易抑制环氧树脂组合物的过度的增粘。另外,通过使粒径比(d2/d1)为1/5以下,容易在大直径的氮化铝填料彼此的间隙中填充小直径的纳米尺寸二氧化硅填料。因此,容易提高环氧树脂组合物中的填料的填充率。

[0055] 另外,本实施方式的环氧树脂组合物中,氮化铝填料和纳米尺寸二氧化硅填料相

对于环氧树脂组合物总量的合计配合比例优选在60.0质量%-85.0质量%的范围内,更优选在65.5质量%-80.5质量%的范围内。通过使合计配合比例为65.5质量%以上,容易进一步提高固化物的热传导性,通过使合计配合比例为80.5质量%以下,容易抑制环氧树脂组合物的过度的增粘。

[0056] 本实施方式的环氧树脂组合物中配合的氮化铝填料的热导率没有特别限定。但是,从得到热传导率高的固化物的观点出发,优选为145W/m·K以上,更优选为230W/m·K以上。另外,本实施方式的环氧树脂组合物中根据需要配合的纳米尺寸二氧化硅填料的热导率没有特别限定。但是,从与上述同样的观点出发,优选为1.2W/m·K以上。

[0057] 本实施方式的环氧树脂组合物所用的填料的形状没有特别限定。填料的形状可以是球形状、不规则形状、鳞片状等中的任一种。但是,从改善固化物的热传导性的观点出发,优选不规则形状。作为不规则形状的填料的示例,可以举出通过粉碎法制造的填料。

[0058] (E) 其它成分

本实施方式的环氧树脂组合物中,也可以适当配合(A)成分-(D)成分以外的其它成分。作为其它成分没有特别限定。作为其它成分,例如可以举出偶联剂、离子捕获剂、流平剂、抗氧化剂、消泡剂、阻燃剂、着色剂、反应性稀释剂、弹性体等。另外,其它配合剂的配合量根据使用目的适当确定。

[0059] 通过混合、搅拌作为原料的各成分来制备本实施方式的环氧树脂组合物。混合搅拌的方法没有特别限定。可以利用公知的混合搅拌法。例如,可以使用辊磨机等。另外,在被用作原料的(A)环氧树脂为固态的情况下,优选在与其它成分混合前通过进行加热处理等从而将液化的环氧树脂混合。另外,在制备环氧树脂组合物时,也可以一次性混合作为原料的全部成分。或者,也可以向通过混合从作为原料的全部成分中选择的一部分成分而制备的一次混合物中混合剩余的成分。例如,在难以使(D)填料均匀分散于(A)环氧树脂的情况下,可以向混合了(A)环氧树脂和(D)填料而制备的一次混合物中混合剩余的各成分。

[0060] 本实施方式的环氧树脂组合物的注入性优异。因此,容易降低粘度。因此,通常容易使本实施方式的环氧树脂组合物在25℃下的粘度为500Pa·s以下。另外,在25℃下的粘度优选为400Pa·s以下,更优选为300Pa·s以下。另外,在25℃下的粘度的下限值没有特别限定。但是,从处理的观点出发,优选为10Pa·s以上,更优选为20Pa·s以上,进一步优选为40Pa·s以上。另外,使用Brookfield公司制造的HB-DV型粘度计,在25℃下以转速20rpm测定粘度。此时,使用SC4-14主轴。测定范围为50Pa·s-500Pa·s。

[0061] 本实施方式的环氧树脂组合物可广泛适用于半导体元件或LED封装等各种电子部件的树脂密封用途。另外,在使用本实施方式的环氧树脂组合物进行电子部件的树脂密封的情况下,可以利用下述(1)或(2)等公知的成型方法,其中,所述(1)为由通过流路(浇口、流道等)向模具内射出的液状环氧树脂组合物来填充该模具的成型方法(所谓的传递成型),其中,所述模具为预先配置有成为树脂密封对象的部件的模具,所述流路是与模具内的空间连通的用于树脂供给的流路;所述(2)为预先由液状环氧树脂组合物填充模具内并且配置成为树脂密封对象的部件后,进行冲压合模的成型方法(所谓的压缩成型)。压缩成型中不需要用于树脂供给的流路。关于这点,压缩成型具有环氧树脂组合物的使用效率接近100%的特征。因此,近年来,压缩成型被广泛利用。本实施方式的环氧树脂组合物可以适合用于压缩成型的部件(液状压缩模制材料)。另外,本实施方式的环氧树脂组合物可

以适合用作顶部包封材料。

[0062] 另外,在将本实施方式的环氧树脂组合物用作压缩模制材料或顶部包封材料等进行树脂密封的情况下,本实施方式的环氧树脂组合物适合用于半导体装置的制造。该情况下,本实施方式的半导体装置具备由本实施方式的环氧树脂组合物的固化物构成的密封材料。而且,通过该密封材料,至少半导体元件被树脂密封。

实施例

[0063] 以下,举出实施例对本发明进行说明。但是本发明不仅限于以下的实施例。

[0064] 1. 环氧树脂组合物的制备

按照表1-表4所示的配合比率,使用辊磨机混合搅拌原料。由此制备实施例1-实施例16和比较例1-比较例8的环氧树脂组合物。另外,用作原料的(A)成分-(D)成分的详细如下。

[0065] 2. 制备环氧树脂组合物所使用的原料成分

(A) 环氧树脂

• 环氧树脂1(エポゴセーPT(一般等级),聚四亚甲基二醇的二缩水甘油醚,环氧当量440g/eq,四日市合成公司制造)

• 环氧树脂2(jER630,氨基苯酚型液状环氧树脂,环氧当量98g/eq,三菱ケミカル公司制造)

• 环氧树脂3(HP4032D,萘型液状环氧树脂,环氧当量140g/eq、DIC公司制造)

• 环氧树脂4(YDF8170,双酚F型液状环氧树脂,环氧当量158g/eq、日鉄ケミカル&マテリアル公司制造)

• 环氧树脂5(RE410S,双酚A型液状环氧树脂,环氧当量178g/eq、日本化薬公司制造)

[0066] (B) 固化剂

• 固化剂1(MEH-8005,酚系固化剂,羟基当量139g/eq-143g/eq,明和化成公司制造)

• 固化剂2(ETHACURE100PLUS,胺系固化剂,アルベマール公司制造)

• 固化剂3(HN-2200,酸酐系固化剂,昭和電工マテリアルズ公司制造)

[0067] (C) 固化催化剂

• 固化催化剂1(2P4MZ,2-苯基-4-甲基咪唑,四国化成工業公司制造)

• 固化催化剂2(2MZA、2,4-二氨基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-s-三嗪,四国化成工業公司制造)

[0068] (D) 填料

(D-1) 氮化铝填料

• 填料AN1(平均粒径1.0 μm ,铀含量1.0ppb以下,粉碎法)

• 填料AN2(平均粒径5.0 μm ,铀含量5.0ppb以下,溶射法)

(D-2) 二氧化硅填料(二氧化硅纳米填料)

• 填料S1(YA050C-SM1,平均粒径0.05 μm ,アドマテックス公司生产,铀含量3.0ppb以下,湿法)

• 填料S2(YA010C-SM1,平均粒径0.01 μm ,アドマテックス公司生产,铀含量3.0ppb)

以下,湿法)

- 填料S3(YC100C-SM1,平均粒径 $0.10\mu\text{m}$,アドマテックス公司生产,铀含量 3.0ppb

以下,湿法)

(D-3) 其它填料(氧化铝填料)

- 填料A1(A2-SX-G4,平均粒径 $0.3\mu\text{m}$,アドマテックス公司生产,铀含量 5.0ppb 以下,VMC(Vaporized metal combustion)法)

- 填料A2(AZ10-75,平均粒径 $10.5\mu\text{m}$,日鉄ケミカル&マテリアル株式会社,铀含量 400ppb ,溶射法)

[0069] 3. 各种物性值以及特性值的评价

按照以下所示的顺序测定或评价各实施例和比较例的环氧树脂组合物的粘度和注入性,以及各实施例和比较例的环氧树脂组合物的固化物的热导率、 α 射线量和剥离试验结果。结果如表1-表4所示。

[0070] (粘度)

使用ブルックフィールド公司制造的HB-DV型粘度计(型号:HB-DV1)在液温 25°C 、 20rpm 的条件下在制备环氧树脂组合物后立即测定各实施例和比较例的环氧树脂组合物的粘度。

[0071] (注入性)

按照以下的顺序评价各实施例和比较例的环氧树脂组合物的注入性。首先,制造以宽 $25\mu\text{m}$ 、深 $300\mu\text{m}$ 进行半切割(ハーフダイシング)的12英寸硅晶圆。接着,将环氧树脂组合物涂布至该硅晶圆上,使用加温至 120°C 的模具进行压缩成型和固化。将成型、固化处理后的硅晶圆切断,以能够确认半切割部位。然后,通过对其截面的光学显微镜观察,来评价环氧树脂组合物的固化物在宽 $25\mu\text{m}$ 、深 $300\mu\text{m}$ 的半切割部位是否实现了填充。表1~表3所示的注入性的评价基准如下。

A: 固化物完全填充半切割部位,无填料的不均匀。

B: 固化物完全填充半切割部位,或者,即使在固化物可以完全填充半切割部位的情况下,填料在固化物中也不均匀。

[0072] (热导率)

按照以下的顺序测定各实施例和比较例的环氧树脂组合物的固化物的热导率。首先,通过在 150°C 下加热固化环氧树脂组合物60分钟,得到厚 0.7mm 的固化物。通过将该固化物切成长: 10mm ×宽: 10mm ,来准备用于测定的试样。接着,使用热传导测定装置(LFA447 ナノフラッシュ,NETZSCH公司制造)测定该用于测定的试样的热导率。

[0073] (α 射线量)

使用压缩成型机以模具温度 150°C 、成型压力 250kN 、固化时间60分钟使各实施例和比较例的环氧树脂组合物固化,由此形成由固化物构成的试验片(长: 140mm ×宽: 120mm ×厚: 0.2mm)。将得到的试验片在其宽度方向排列6片作为试验样品(表面积的合计为 1008cm^2)。接着,使用该试验样品,使用低水平 α 射线测定装置(住友化学工业(株)制造,LACS-4000M),以施加电压 1.9KV 、PR-10气体(氩气:甲烷=9:1) $100\text{m}/\text{分钟}$ 、有效计数时间 88h 测定从试验样品放射出的 α 射线量。

[0074] (剥离试验)

按照以下顺序实施剥离试验。首先,于FR-4基板(长宽:4cm×4cm,厚:0.75mm)的表面在长宽:3cm×3cm的区域内分别印刷实施例1、实施例2、实施例10、实施例17的环氧树脂组合物,使涂膜厚度为1mm。然后,在150℃下使环氧树脂组合物固化60分钟。由此,在FR-4基板上形成由环氧树脂组合物的固化物构成的固化物层。接着,将形成有固化物层的FR-4基板在温度30℃、湿度60%的条件下放置于恒温恒湿槽192小时。之后立即使基板在加热到260℃的回流焊炉的炉内通过3次。通过这样实施加热处理得到用于评价的样品。对于得到的用于评价的样品,通过用超声波探伤仪(SAT)观察FR-4基板与固化物层的界面是否产生剥离来评价剥离性。结果如表4所示。另外,表4所示的评价结果的评价基准如下。

- A:FR-4基板与固化物层的界面没有发生剥离。
- B:FR-4基板与固化物层的界面发生剥离。

[0075] [表1]

组成 (质量份)	材料种类	平均 粒径	轴含量	制造方法	材料名	实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	实施例5	实施例6	实施例7	实施例8	
(A) 环氧树脂	缩水甘油醚型环氧树脂				环氧树脂1	3.60	3.60	3.60	3.60	5.00	5.00	5.00	3.40	
	氨基酚型环氧树脂				环氧树脂2	42.80	42.80	42.80	41.40	40.60	41.40	41.40	40.80	
	苯型环氧树脂				环氧树脂3									
	双酚F型环氧树脂				环氧树脂4	3.90	3.90	3.60	3.90	3.90	3.90	3.90	3.30	
	双酚A型环氧树脂				环氧树脂5	1.90	1.90	1.90	1.90	2.70	1.90	1.90	1.60	
	(B) 固化剂	酚系固化剂				固化剂1								
		胺系固化剂				固化剂2								
		酸酐系固化剂				固化剂3								
	(C) 固化催化剂	2-甲基咪唑				固化催化剂1	0.60	0.60	0.60	0.60	0.60	1.20	0.60	0.70
		(D-2) 二氧化硅纳米填料	0.45μm	3ppb以下	湿法	填料S1	12.50			12.50	12.50	12.50	17.50	12.50
10nm			3ppb以下	湿法	填料S2		12.50							
100nm			3ppb以下	湿法	填料S3			12.50						
(D) 填料		(D-1) 氯化铝填料	1.0μm	1ppb以下	粉碎法	填料A1	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	66.00
			5.0μm	5ppb以下	溶解法	填料A2								
		(D-3) 氧化铝填料	0.3μm	5ppb以下	VMC法	填料A1								
			10.5μm	40ppb	溶解法	填料A2								
组成 (质量%)		全部成分合计量					100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
		填料合计量 (D)					77.00	77.00	77.00	77.00	77.00	77.00	77.00	80.50
	氯化铝填料合计量 (D-1)					64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	66.00	
比较特性	D-1/D					83.8	83.8	83.8	83.8	83.8	83.8	77.3	84.5	
	(D-1-D-2)/全部成分					77.0	77.0	77.0	77.0	77.0	77.0	77.0	80.5	
	粘度 (Pa·s)					320	460	350	270	360	370	280	460	
注入性					A	A	A	A	A	A	A	A		
热传导率 (W/m·K)					1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.7	2.1		
α射线量 (count/cm ² ·h)					0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.004	0.005		

[0076] [表2]

	材料种类	平均粒径	轴含量	制造方法	材料名	实施例9	实施例10	实施例11	实施例12	实施例13	实施例14	实施例15	实施例16		
组成 (质量份)	(A) 环氧树脂	缩水甘油醚型环氧树脂			环氧树脂1	5.80	3.60	3.60	3.60	3.60	3.60	3.60	3.60		
		氨基酚型环氧树脂			环氧树脂2	18.20	12.80	11.80	11.80	12.80	12.80	12.80	12.50		
		萘型环氧树脂			环氧树脂3			1.00							
		双酚A型环氧树脂			环氧树脂4				1.00						
		双酚A型环氧树脂			环氧树脂5	6.20	3.90	3.90	3.90	3.90	3.90	3.90	3.90	3.90	
	(B) 固化剂	酚系固化剂				固化剂1	3.00	1.90	1.90	1.90	1.90		1.90	1.90	
		胺系固化剂				固化剂2									
		酸酐系固化剂				固化剂3						1.90			
	(C) 固化催化剂	2-甲基-4-甲基咪唑				固化催化剂1							0.80		
		2-甲基咪唑				固化催化剂2	1.30	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	
	(D) 填料	二氧化硅纳米填料 (D-2)	0.05μm	3ppb以下	湿法	填料S1	0.00	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	
			10nm	3ppb以下	湿法	填料S2									
			100nm	3ppb以下	湿法	填料S3									
		(D-1) 氮化铝填料	1.0μm	1ppb以下	粉碎法	填料AN1	65.50		64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	59.80
			5.0μm	5ppb以下	溶解法	填料AN2		64.50							
0.3μm			5ppb以下	VMC法	填料A1									5.00	
全部成分合计量	(D-3) 氧化铝填料	10.5μm	400ppb	溶解法	填料A2										
						100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00		
	填料合计量 (D)					65.50	77.00	77.00	77.00	77.00	77.00	77.00	77.30		
	氮化铝填料合计量 (D-1)					65.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	64.50	59.80		
组成 (质量%)	D-1/D				100.0	83.8	83.8	83.8	83.8	83.8	83.8	83.8	77.4		
	(D-1+D-2)/全部成分				65.5	77.9	77.9	77.9	77.9	77.9	77.9	77.9	72.3		
	粘度 (Pa·s)				240	200	350	340	300	280	280	360	380		
比较特性	注入性				A	A	A	A	A	A	A	A	A		
	热传导率 (W/m·K)				1.5	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.8		
	α射线量 (count/cm ² ·h)				0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005		

[0077] [表3]

	材料种类	平均粒径	轴含量	制造方法	材料名	比较例1	比较例2	比较例3	比较例4	比较例5	比较例6	比较例7	比较例8	
组成 (质量%)	(A) 环氧树脂	缩水甘油醚型环氧树脂			环氧树脂1	3.00	3.10		8.00	1.60	1.60	3.60	3.60	
		氨基酚型环氧树脂			环氧树脂2	9.00	1.70					12.80	12.80	
		萘型环氧树脂			环氧树脂3			2.50						
		双酚F型环氧树脂			环氧树脂4			7.00	2.50	2.60	2.60			
		双酚A型环氧树脂			环氧树脂5							3.90	3.90	
	(B) 固化剂	酚系固化剂				固化剂1	4.50	2.60		4.00			1.90	1.90
		胺系固化剂				固化剂2			5.00					
		酸酐系固化剂				固化剂3					6.80	6.80		
	(C) 固化催化剂	2-苯基-4-甲基咪唑				固化催化剂1								
		2-甲基咪唑				固化催化剂2	0.10	0.20	0.50	0.50	0.80	0.80	0.80	0.80
(D) 填料	(D-2) 二氧化硅纳米填料	0.05 μm	3ppb以下	湿法	填料S1						12.50	12.50	12.50	
		10nm	3ppb以下	湿法	填料S2									
		100nm	3ppb以下	湿法	填料S3									
	(D-1) 氮化铝填料	1.0 μm	1ppb以下	粉碎法	填料AN1	13.00								
		5.0 μm	5ppb以下	溶射法	填料AN2									
	(D-3) 氧化铝填料	0.3 μm	5ppb以下	VMC法	填料A1		8.80							64.50
		10.5 μm	400ppb	溶射法	填料A2	70.00	83.60	85.00	85.00	88.20	75.70	64.50		
组成 (质量%)	全部成分合计量													
	填料合计量 (D)													
	氮化铝填料合计量 (D-1)													
	D-1/D													
	(D-1+D-2)/全部成分													
比较特性	粘度 (Pa·s)													
	注入性													
	热传导率 (W/m·K)													
α射线量 (count/cm ² ·h)														
						0.550	0.800	0.820	0.700	0.800	0.680	0.370	0.005	

[0078] [表4]

组成 (质量%)	材料种类	平均 粒径	铈含量	制造方法	材料名	实施例1	实施例2	实施例10	实施例17	
组成 (质量%)	(A) 环氧树脂	缩水甘油醚型环氧树脂			环氧树脂1	3.60	3.60	3.60	3.60	
		氨基酚型环氧树脂			环氧树脂2	12.80	12.80	12.80	12.80	
		萘型环氧树脂			环氧树脂3					
		双酚F型环氧树脂			环氧树脂4					
		双酚A型环氧树脂			环氧树脂5	3.90	3.90	3.90	3.90	
	(B) 固化剂	酚系固化剂				固化剂1	1.90	1.90	1.90	1.90
		胺系固化剂				固化剂2				
		酸酐系固化剂				固化剂3				
	(C) 固化催化剂	2-苯基-4-甲基咪唑				固化催化剂1	0.80	0.80	0.80	0.80
		2-甲基咪唑				固化催化剂2				
	(D) 填料	(D-2) 二氧化硅纳米填料	0.05μm	3ppb以下	湿法	填料S1	12.50		12.50	
			10nm	3ppb以下	湿法	填料S2		12.50		
			100nm	3ppb以下	湿法	填料S3				
		(D-1) 氮化铝填料	1.0μm	1ppb以下	粉碎法	填料AN1	64.50	64.50		77.00
			5.0μm	5ppb以下	溶射法	填料AN2			64.50	
(D-3) 氧化铝填料		0.3μm	5ppb以下	VMC法	填料A1					
		10.5μm	400ppb	溶射法	填料A2					
全部成分合计量										
填料合计量 (D)										
氮化铝填料合计量 (D-1)										
D-1/D										
(D-1+D-2)/全部成分										
剥离性										
组成 (质量%)	A A A A A A A A A B									