

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007年2月1日 (01.02.2007)

PCT

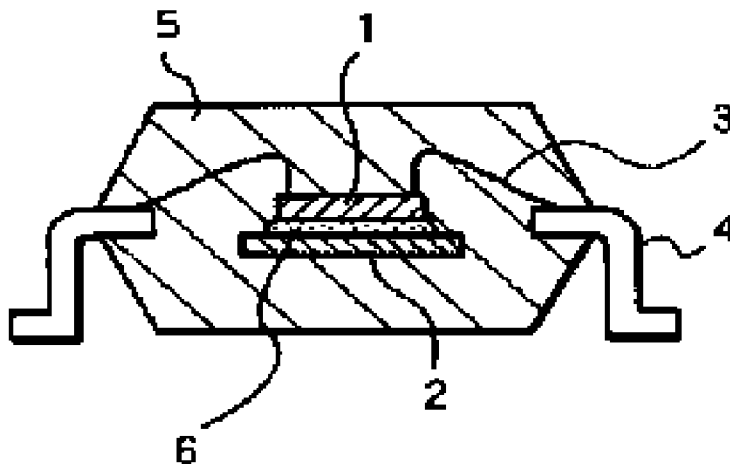
(10) 国際公開番号
WO 2007/013284 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/68 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C08G 59/62 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
- (74) 代理人: 速水 進治 (HAYAMI, Shinji); 〒1500021 東京都渋谷区恵比寿西2-17-16 代官山TKビル1階 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/313654
- (22) 国際出願日: 2006年7月10日 (10.07.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2005-220499 2005年7月29日 (29.07.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友ベークライト株式会社 (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 室谷 和良 (MUROTANI, Kazuyoshi) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: EPOXY RESIN COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: エポキシ樹脂組成物及び半導体装置



(57) Abstract: An epoxy resin composition for semiconductor sealing containing as indispensable components (A) phenol aralkyl epoxy resin having a phenylene skeleton, (B) phenol aralkyl resin having a biphenylene skeleton, (C) hardening accelerator containing an adduct of phosphine compound and quinone compound, (D) compound having two or more adjacent carbon atoms as constituents of an aromatic ring to which hydroxyls are linked respectively, (E) silane coupling agent and (F) inorganic filler, characterized in that the inorganic

filler (F) is contained in an amount of 84 to 92 wt.% based on the total weight of the epoxy resin composition.

(57) 要約: (A) フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、(B) ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂、(C) ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物を含む硬化促進剤、(D) 芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物、(E) シランカップリング剤、及び(F) 無機充填材を必須成分として含むエポキシ樹脂組成物であって、前記(F) 無機充填材を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

WO 2007/013284 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各*PCT*ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

エポキシ樹脂組成物及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いた半導体装置に関するものである。

背景技術

[0002] 従来からダイオード、トランジスタ、集積回路等の電子部品は、主にエポキシ樹脂組成物を用いて封止されている。特に集積回路では、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、及び溶融シリカ、結晶シリカ等の無機充填材を配合した耐熱性、耐湿性に優れたエポキシ樹脂組成物が用いられている。ところが近年、電子機器の小型化、軽量化、高性能化の市場動向において、半導体素子の高集積化が年々進み、また半導体装置の表面実装化が促進されるなかで、半導体素子の封止に用いられているエポキシ樹脂組成物への要求は益々厳しいものとなってきた。特に半導体装置の表面実装化が一般的になってきている現状では、吸湿した半導体装置が半田リフロー処理時に高温にさらされる。更に、環境負荷物質の撤廃の一環として、鉛を含まない半田への代替が進められており、従来の半田に比べ融点が高いため表面実装時のリフロー温度は、従来よりも20℃程度高く、260℃が必要とされる。その為、半導体装置が従来以上に高い温度にさらされることになり、半導体素子やリードフレームとエポキシ樹脂組成物の硬化物との界面に剥離が発生し、半導体装置にクラックを生じる等、半導体装置の信頼性を大きく損なう不良が生じ易くなっている。

[0003] 通常、エポキシ樹脂組成物中には難燃性を付与するために臭素含有有機化合物等のハロゲン系難燃剤、及び三酸化二アンチモン、四酸化二アンチモン等のアンチモン化合物が配合されていることが多いが、環境負荷物質の撤廃の観点から、ハロゲン系難燃剤、アンチモン化合物を使用しないで、難燃性に優れたエポキシ樹脂組成物の開発が要求されている。これらに代わる環境対応の難燃剤としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物等が用いられるようになってきている。しかし、これらは多量に配合しないと難燃性の効果が発現せず、しかも充分

な難燃性が得られる程度に配合量を増やすとエポキシ樹脂組成物の成形時の流動性、硬化性及び硬化物の機械強度が低下、耐半田リフロー性を悪化させる恐れがある。

- [0004] これらの問題に対して、低吸水、可撓性、難燃性を有するレジンを用いて耐半田リフロー性を向上させる方法が提案されている(例えば、特許文献1、2又は3参照。)が、鉛フリー半田を用いた場合にも対応できるようにするために、無機充填材をより高充填化しようとする、流動性が不足するという問題が発生するため、実現が困難であった。

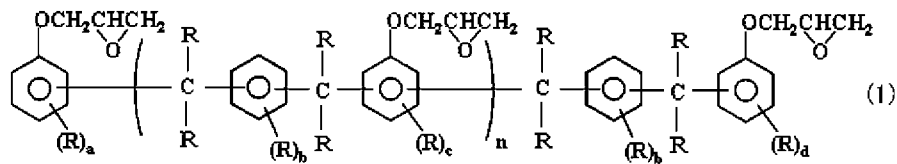
以上のような状況から、難燃性付与剤を使用することなく高い耐燃性を有し、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用樹脂組成物の開発が望まれていた。

- [0005] 特許文献1:特開平1-275618号公報
特許文献2:特開平5-097965号公報
特許文献3:特開平5-097967号公報
発明の開示

- [0006] 本発明は、上記のような問題点を解決するためになされたものであり、その目的とするところは、難燃性付与剤を使用することなく高い耐燃性を有し、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる信頼性の高い半導体装置を提供することにある。

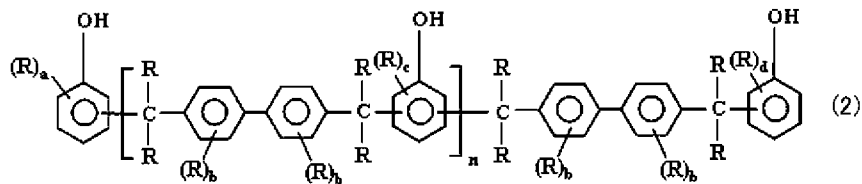
- [0007] 本発明は、
[1] (A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(C)ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物を含む硬化促進剤、(D)芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物、(E)シランカップリング剤、及び(F)無機充填材、を必須成分とし、前記(F)無機充填材を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

- [0008] (化3)



(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0009] (化4)



(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[2] 前記(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である第[1]項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

[3] 前記(C)ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が、トリフェニルホスフィンの1, 4-ベンゾキノン付加物である第[1]項又は第[2]項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

[4] 前記(D)芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物がベンゼン環又はナフタレン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物である第[1]項ないし第[3]項のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

[5] ベンゼン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した前記化合物が、カテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステル、またはこれらの誘導体である、第[4]項に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

[6] ナフタレン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した前記化合物が、1, 2-ジヒドロキシナフタレンもしくは2, 3-ジヒドロキシナフタレン、またはこれらの誘導体である、第[4]項に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物、

[7] 第[1]項ないし第[6]項のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置、
である。

[0010] 本発明に従うと、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL-94のV-0となり、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物、及びこれを用いて半導体素子を封止してなる信頼性の高い半導体装置を高い生産性で得ることができる。このため、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、工業的な樹脂封止型半導体装置、特に鉛フリー半田を使用する表面実装用の樹脂封止型半導体装置の製造に好適に用いることができる。

[0011] 本発明により得られる半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく、難燃グレードがUL-94のV-0となり、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有するため、工業的な樹脂封止型半導体装置、特に鉛フリー半田を使用する表面実装用の樹脂封止型半導体装置の製造に好適に用いることができる。

図面の簡単な説明

[0012] 上述した目的、およびその他の目的、特徴および利点は、以下に述べる好適な実施の形態、およびそれに付随する以下の図面によってさらに明らかになる。

[図1]本発明の実施の形態に係る半導体装置の構成を示す断面図である。

発明を実施するための最良の形態

[0013] 本発明は(A)一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B)一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(C)ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物を含む硬化促進剤、(D)芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合

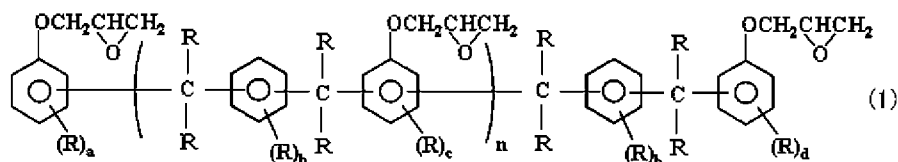
物、(E)シランカップリング剤、及び(F)無機充填材を必須成分とし、前記(F)無機充填材を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことにより、ハロゲン系難燃剤、アンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく難燃グレードがUL-94のV-0となり、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用エポキシ樹脂組成物が得られるものである。

以下、各成分について詳細に説明する。

[0014] 本発明に用いられる一般式(1)で示されるエポキシ樹脂は、樹脂骨格が疎水性を示すので硬化物が低吸湿性を示すと共に、硬化物の架橋点間距離が長くなるため半田リフロー温度での弾性率が低い特長を有し、このため発生する応力が低く密着性にも優れるため、耐半田リフロー性が良好であり好ましい。更に、樹脂骨格に占める芳香族環含有率が高いために、樹脂そのものの難燃性も高い。本発明に用いられる一般式(1)のエポキシ樹脂の軟化点は、35℃以上、60℃以下であり、好ましくは、40℃以上、55℃以下である。一般式(1)のエポキシ樹脂の軟化点が上記範囲内であると、硬化性が良く、かつ流動性に優れるという効果がある。

一般式(1)のRは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数、nは平均値で0又は10以下の正数であるが、これらの内では硬化性の点から式(3)の樹脂等が好ましい。nが上記範囲内であると、樹脂の粘度が増大することによる封止成形時における樹脂組成物の流動性の低下を抑えることができ、より一層の低吸湿化のための無機充填材の高充填化が可能となる。

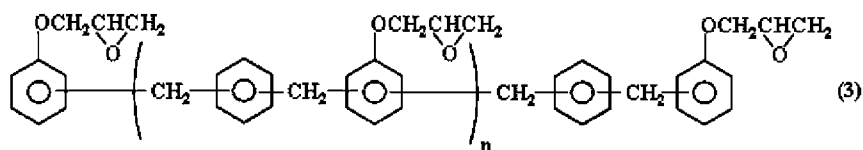
[0015] (化5)



(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0

～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0016] (化6)



(ただし、上記式(3)において、nは平均値で、0又は10以下の正数)

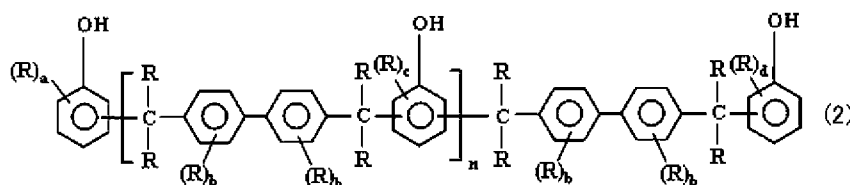
[0017] また本発明では、一般式(1)で示されるエポキシ樹脂を用いることによる特徴を損なわない範囲で、他のエポキシ樹脂と併用することができる。併用することができるエポキシ樹脂としては1分子内にエポキシ基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般であり、その分子量、分子構造を特に限定するものではないが、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂(フェニレン骨格、ビフェニル骨格等を有する)、ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、アルキル変性トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリアジン核含有エポキシ樹脂等が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。他のエポキシ樹脂を併用する場合の配合量としては、全エポキシ樹脂に対して、一般式(1)で示されるエポキシ樹脂が、70重量%以上、100重量%以下であることが好ましい。一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の配合量が上記範囲内であると、良好な低吸湿性、耐半田リフロー性を得ることができる。

[0018] 本発明に用いられる一般式(2)で示されるフェノール樹脂は、フェノール性水酸基間に疎水性で剛直なビフェニレン骨格を有しており、これを用いたエポキシ樹脂組成物の硬化物は低吸湿性を示すと共に、硬化物の架橋点間距離が長くなるためガラス転移温度を超えた高温域での弾性率が低いという特長を有し、このため発生する応力が低く密着性にも優れるため、耐半田リフロー性が良好であり好ましい。またこれらのフェノール樹脂は樹脂骨格に占める芳香族環含有率が高いために、樹脂そのもの

の難燃性も高く、架橋密度が低い割には耐熱性が高いという特徴を有している。

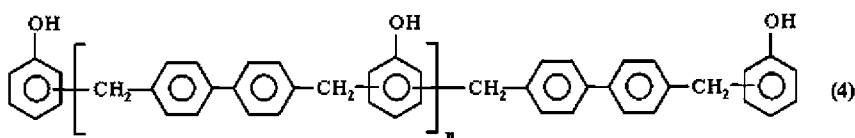
一般式(2)のRは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一であっても異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数、nは平均値で0又は10以下の正数であるが、これらの内では硬化性の点から式(4)の樹脂等が好ましい。nが上記範囲内であると、樹脂の粘度が増大することによる封止成形時における樹脂組成物の流動性の低下を抑えることができ、より一層の低吸湿化のための無機充填材の高充填化が可能となる。

[0019] (化7)



(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

[0020] (化8)



(ただし、上記式(4)において、nは平均値で0又は10以下の正数。)

[0021] 本発明では、一般式(2)で示されるフェノール樹脂を配合することによる特徴を損なわない範囲で、他のフェノール系樹脂を併用することができる。併用することができるフェノール系樹脂としては、1分子内にフェノール性水酸基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般であり、その分子量、分子構造を特に限定するものではないが、例えばフェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、トリフェノールメタン樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂等

が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。他のフェノール系樹脂を併用する場合の配合量としては、全フェノール系樹脂に対して、一般式(2)で示されるフェノール樹脂が70重量%以上、100重量%以下であることが好ましい。一般式(2)で示されるフェノール樹脂の配合量が上記範囲内であると、良好な低吸湿性、耐半田リフロー性を得ることができる。

[0022] 本発明に用いられる全エポキシ樹脂のエポキシ基数と全フェノール系樹脂のフェノール性水酸基数の当量比としては、好ましくは0.5以上、2以下であり、特に0.7以上、1.5以下がより好ましい。上記範囲内であると、耐湿性、硬化性などの低下を抑えることができる。

[0023] 本発明に用いられる一般式(1)で示されるエポキシ樹脂と一般式(2)で示されるフェノール樹脂とは、予め溶融混合して用いることにより分散性を向上させることができる。また、特に一般式(1)で示されるエポキシ樹脂として軟化点が45℃以下のものを使用する場合には、上記のように一般式(2)で示されるフェノール樹脂と予め溶融混合することにより、溶融混合物の軟化点を元の一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点より高くすることができ、原料の取り扱い性を向上させることができる。

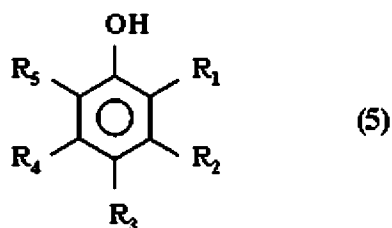
[0024] 本発明で用いられる硬化促進剤として、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が必須である。ホスフィン化合物としては、例えば、トリフェニルホスフィン、トリ-p-トリルホスフィン、ジフェニルシクロヘキシルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、トリブチルホスフィンなどが挙げられる。キノン化合物としては1,4-ベンゾキノ、メチル-1,4-ベンゾキノ、メキシ-1,4-ベンゾキノ、フェニル-1,4-ベンゾキノ、1,4-ナフトキノなどが挙げられる。これらホスフィン化合物とキノン化合物との付加物のうち、トリフェニルホスフィンの1,4-ベンゾキノ付加物が好ましい。ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物の製造方法としては特に制限はないが、例えば、原料として用いられるホスフィン化合物とキノン化合物とを両者が溶解する有機溶媒中で付加反応させて単離すればよい。ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物は、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。

[0025] 本発明で用いられる硬化促進剤として、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物以外の硬化促進剤も、エポキシ基とフェノール性水酸基の反応を促進するもので

あれば特に限定なく併用できるが、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物の配合量は全硬化促進剤に対して50重量%以上であることが好ましい。ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物以外の硬化促進剤としては、例えば、1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7等のジアザビシクロアルケン及びその誘導体、トリブチルアミン、ベンジルジメチルアミン等のアミン系化合物、2-メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物、トリフェニルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン等の有機ホスフィン類、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラ安息香酸ボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラナフトイックアシッドボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラナフトイルオキシボレート、テトラフェニルホスホニウム・テトラナフチルオキシボレート等のテトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート等が挙げられ、これらは1種又は2種類以上を併用してもよい。本発明に用いられる硬化促進剤の配合量は、全エポキシ樹脂組成物の0.01重量%以上、3.00重量%以下である。フェノール樹脂が上記範囲内にあると、良好な硬化特性が得られる。

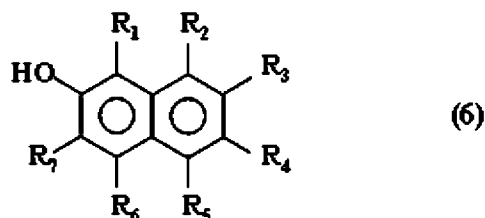
[0026] 本発明に用いられる芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物は、水酸基以外の置換基を有していてもよい。芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物としては、下記一般式(5)で示される単環式化合物又は下記一般式(6)で示される多環式化合物を用いることができる。

[0027] (化9)



(上記一般式(5)において、 R_1 、 R_5 はどちらか一方が水酸基であり、片方が水酸基のとき他方は水素、水酸基又は水酸基以外の置換基。 R_2 、 R_3 、 R_4 は水素、水酸基又は水酸基以外の置換基。)

[0028] (化10)



(上記一般式(6)において、R₁、R₇はどちらか一方が水酸基であり、片方が水酸基のとき他方は水素、水酸基又は水酸基以外の置換基。R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は水素、水酸基又は水酸基以外の置換基。)

[0029] 上記、一般式(5)で示される単環式化合物の具体例として、例えば、カテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステル又はこれらの誘導体が挙げられる。また、上記一般式(6)で示される多環式化合物の具体例として、例えば、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレンおよびこれらの誘導体が挙げられる。そのうち流動性と硬化性の制御のしやすさから、芳香環を構成する2個の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物が好ましい。また、混練工程での揮発を考慮した場合、母核は低揮発性で秤量安定性の高いナフタレン環である化合物とすることがより好ましい。この場合、芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物を、具体的には、例えば、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレンおよびその誘導体等のナフタレン環を有する化合物とすることができる。これらの芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物は2種以上併用してもよい。

[0030] 芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物の配合量は全エポキシ樹脂組成物中0.01重量%以上1重量%以下、好ましくは0.03重量%以上0.8重量%以下、特に好ましくは0.05重量%以上0.5重量%以下である。芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物の配合量が上記範囲内であると、後述するシランカップリング剤との相乗効果により低粘度化と高流動化が図れ、またエポキシ樹脂組成物の硬化が阻害されず、半導体封止樹脂としての性能を維持することができる。

[0031] 本発明に用いられるシランカップリング剤は、エポキシシラン、アミノシラン、ウレイド

シラン、メルカプトシラン等特に限定されず、エポキシ樹脂組成物と無機充填材との間で反応し、エポキシ樹脂組成物と無機充填材の界面強度を向上させるものであればよい。芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物はシランカップリング剤との相乗効果により、粘度特性と流動特性を著しく改善させるため、シランカップリング剤は芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物の効果を充分に得るためにも必須である。これらのシランカップリング剤は単独でも併用してもよい。本発明に用いられるシランカップリング剤の配合量は、全エポキシ樹脂組成物中0.01重量%以上1重量%以下、好ましくは0.05重量%以上0.8以下、特に好ましくは0.1重量%以上0.6重量%以下である。シランカップリング剤の配合量が上記範囲内であると、芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物の効果を充分に発揮することができ、またエポキシ樹脂組成物の硬化物と各種基材との密着性低下による半導体パッケージにおける耐半田リフロー性の低下を抑えることができる。或いは、エポキシ樹脂組成物の吸水性の上昇による半導体パッケージの耐半田リフロー性の低下も抑えることができる。

- [0032] 本発明に用いられる無機充填材の種類については特に制限はなく、一般に封止材料に用いられているものを使用することができる。例えば溶融シリカ、結晶シリカ、2次凝集シリカ、アルミナ、チタンホワイト、水酸化アルミニウム、タルク、クレー、ガラス繊維等が挙げられ、これらは1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。特に溶融シリカが好ましい。溶融シリカは、破碎状、球状のいずれでも使用可能であるが、含有量を高め、且つエポキシ樹脂組成物の溶融粘度の上昇を抑えるためには、球状シリカを主に用いる方がより好ましい。更に球状シリカの含有量を高めるためには、球状シリカの粒度分布をより広くとるよう調整することが望ましい。全無機充填材の含有量は、成形性、信頼性のバランスから全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下であることが必須であり、好ましくは87重量%以上、92重量%以下である。無機充填材の含有量が上記範囲内であると、エポキシ樹脂組成物が低吸湿性、低熱膨張性で良好な耐半田性を発揮することができる。また、エポキシ樹脂組成物の流動性の低下による封止成形時の充填不良等の発生や、エポキシ樹脂組

成物の高粘度化による半導体装置内での金線流れ等の発生を抑えることができる。

[0033] 本発明のエポキシ樹脂組成物は、(A)ないし(F)成分から構成されるが、必要に応じてカーボンブラック、ベンガラ等の着色剤、シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力成分、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸及びその金属塩類もしくはパラフィン等の離型材、酸化ビスマス等水和物等の無機イオン交換体、酸化防止剤等の各種添加剤を適宜配合してもよい。更に、必要に応じて無機充填材をカップリング剤やエポキシ樹脂あるいはフェノール樹脂で予め表面処理して用いてもよく、表面処理の方法としては、溶媒を用いて混合した後に溶媒を除去する方法や、直接無機充填材に添加し、混合機を用いて混合する方法等がある。

[0034] 本発明に用いるエポキシ樹脂組成物は、(A)～(F)成分、その他の添加剤等を、ミキサーを用いて常温混合した後、ロール、ニーダー等の押出機等の混練機で熔融混練し、冷却後粉碎して得ることができる。

本発明のエポキシ樹脂組成物を用いて、半導体素子等の電子部品を封止し、半導体装置を製造するには、トランスファーモールド、コンプレッションモールド、インジェクションモールド等の従来からの成形方法で硬化成形すればよい。

図1は、本発明に係るエポキシ樹脂組成物を用いた半導体装置の、断面構造を示した図である。ダイパッド2上に、ダイボンド材硬化物6を介して半導体素子1が固定されている。半導体素子1の電極パッドとリードフレーム4との間は金線3によって接続されている。半導体素子1は、封止材硬化物5によって封止されている。

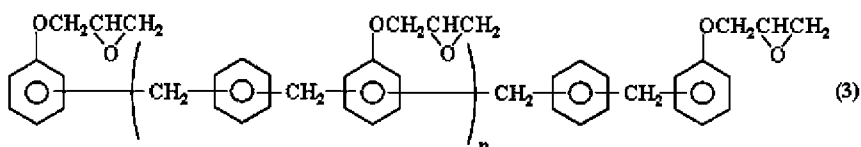
(实施例)

[0035] 以下に本発明の実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。配合割合は重量部とする。

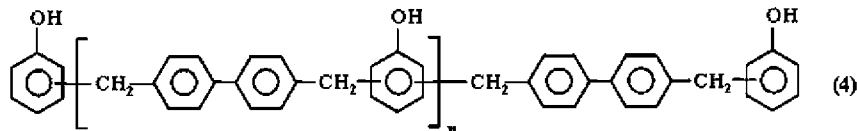
实施例1

[0036] エポキシ樹脂1:式(3)で示されるエポキシ樹脂(軟化点44℃、エポキシ当量234、式(3)においてn=1, 5。)

(化11)



- [0037] フェノール樹脂1:式(4)で示されるフェノール樹脂(軟化点107℃、水酸基当量203、式(4)において $n=0.5$ 。)
4.42重量部
(化12)



- [0038] 硬化促進剤1:トリフェニルホスフィンの1,4-ベンゾキノン付加物

0.20重量部

2,3-ジヒドロキシナフタレン

0.05重量部

シランカップリング剤1:γ-グリシジルプロピルトリメトキシシラン

0.20重量部

溶融球状シリカ(平均粒径 $25\mu\text{m}$)

88.00重量部

カルナバワックス

0.30重量部

カーボンブラック

0.40重量部

をミキサーを用いて混合した後、表面温度が95℃と25℃の2本ロールを用いて混練し、冷却後粉碎してエポキシ樹脂組成物を得た。得られたエポキシ樹脂組成物の特性を以下の方法で評価した。結果を表1に示す。

- [0039] 評価方法

スパイラルフロー:低圧トランスファー成形機を用いて、EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用の金型に、金型温度175℃、注入圧力9.8MPa、硬化時間120秒の条件でエポキシ樹脂組成物を注入し、流動長を測定した。単位はcm。80cm以下であると金線流れやパッケージ未充填などの成形不良が生じる可能性がある。

- [0040] 硬化性(ゲル化時間):175℃の熱盤上にエポキシ樹脂組成物粉末を30gのせ、これを金属ヘラで練り、ゲル化するまでの時間を測定した。一般的なトランスファー成形は50秒以上、120秒以下程度で成形されるため、ゲル化時間が45秒以上の場合

は、成形不良が生じる可能性がある。

[0041] 耐燃性:トランスファー成形機を用いて、成形温度175℃、注入圧力9.8MPa、硬化時間120秒で、試験片(127mm×12.7mm×1.6mm)を成形し、アフターベークとして175℃、8時間加熱処理した後、UL-94垂直燃焼試験に準じて ΣF 、 F_{max} を測定し、耐燃性を判定した。

[0042] 耐半田リフロー性:80pQFP(銅フレーム:14mm×20mm×2mm厚、パッドサイズ:8mm×8mm、チップサイズ:7mm×7mm)を、低圧トランスファー自動成形機を用いて、実施例、比較例記載の封止樹脂で、金型温度175℃、注入圧力9.6MPa、硬化時間90秒で封止成形した後、175℃、4時間後硬化し、各16個のサンプルを別々に85℃、相対湿度60%の環境下で168時間と85℃、相対湿度85%の環境下で168時間処理し、その後、鉛フリー半田を用いた実装を想定し、IRリフロー(260℃)で10秒間処理した。得られた図1に示されるような半導体装置を、超音波探傷装置を用いて観察し、内部クラック及び各種界面剥離の有無を調べた。内部クラック又は各種界面の剥離が1つでも見つかったものは不良とし、不良パッケージの個数がn個であるとき、 $n/16$ と表示した。

[0043] 実施例2～13、比較例1～9

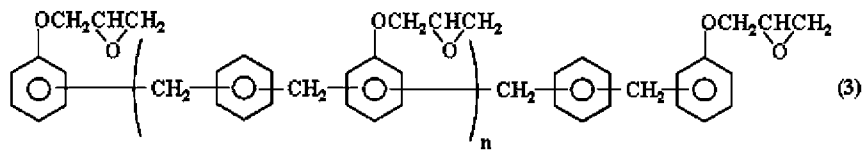
表1、2、3の配合に従い、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を得て、実施例1と同様にして評価した。結果を表1、2、3に示す。

表1～3において、「チップ上剥離」とは、チップ1と封止材硬化物5との界面における剥離をいい、「パッド上剥離」とは、ダイパッド2の上面(チップ搭載面でチップ1周辺部)と封止材硬化物5との界面における剥離をいい、「パッド裏剥離」とは、ダイパッド2の下面(チップ搭載面の反対側)と封止材硬化物5との界面における剥離をいい、「インナーリード上剥離」とは、リードフレーム4のうち封止材で封止された部分と封止材硬化物5との界面における剥離をいう。

実施例1以外で用いた原材料を以下に示す。

[0044] エポキシ樹脂2:式(3)で示されるエポキシ樹脂(軟化点55℃、エポキシ当量236、式(3)において $n=1.9$ 。)

(化13)



エポキシ樹脂3:ビフェニル型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、YX-4000K、エポキシ当量185、融点105℃)

エポキシ樹脂4:ビスフェノールA型エポキシ樹脂(ジャパンエポキシレジン製、YL-6810、エポキシ当量170g/eq、融点47℃)

フェノール樹脂2:パラキシレン変性ノボラック型フェノール樹脂(三井化学(株)製、XLC-4L、水酸基当量168、軟化点62℃)

硬化促進剤2:トリフェニルホスフィン

1, 2-ジヒドロキシナフタレン

カテコール

ピロガロール

1, 6-ジヒドロキシナフタレン

レゾルシノール

シランカップリング剤2:Nフェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン

シランカップリング剤3:γ-グリシジルプロピルトリメトキシシラン

[0045] (表1)

表 1

	実 施 例						
	1	2	3	4	5	6	7
エポキシ樹脂1	6.43		4.21	4.13	6.58	6.41	6.43
エポキシ樹脂2		6.45					
エポキシ樹脂3			2.00				
エポキシ樹脂4				2.00			
フェノール樹脂1	4.42	4.40	4.64	4.72	2.77	4.44	4.42
フェノール樹脂2					1.50		
硬化促進剤1	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.15	0.20
硬化促進剤2						0.05	
2, 3-ジヒドロキシナフタレン	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	
1, 2-ジヒドロキシナフタレン							0.05
シランカップリング剤1	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
熔融球状シリカ	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00
カルナバワックス	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
カーボンブラック	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー [cm]	120	100	120	120	110	90	120
ゲルタイム [秒]	35	37	38	35	33	32	34
耐燃性 (3.2mm厚)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐半田 リフロー 性	クラック	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	チップ上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット裏剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	インナーリード剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16

[0046] (表2)

表 2

	実 施 例					
	8	9	10	11	12	13
エポキシ樹脂1	6.43	6.43	6.43	6.43	8.19	5.25
フェノール樹脂1	4.42	4.42	4.42	4.42	5.66	3.60
硬化促進剤1	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
2, 3-ジヒドロキシナフタレン			0.05	0.05	0.05	0.05
カテコール	0.05					
ピロガロール		0.05				
シランカップリング剤1	0.20	0.20			0.20	0.20
シランカップリング剤2			0.20			
シランカップリング剤3				0.20		
熔融球状シリカ	88.00	88.00	88.00	88.00	85.00	90.00
カルナバワックス	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
カーボンブラック	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー [cm]	115	120	115	115	140	90
ゲルタイム [秒]	35	35	36	35	38	36
耐燃性 (3.2mm厚)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
耐半田 リフロー性	クラック	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	チップ上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット上剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	パット裏剥離	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16
	インナーリード剥離	0/16	0/16	1/16	2/16	1/16

[0047] (表3)

表 3

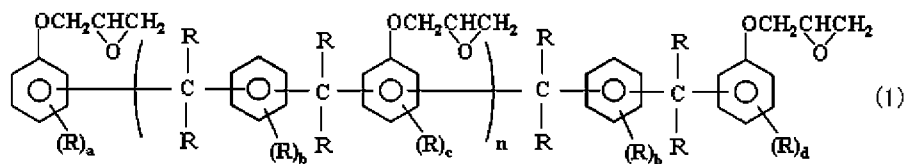
	比 較 例								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
エポキシ樹脂1			6.85	6.36	6.43	6.43	6.54	10.53	3.49
エポキシ樹脂3	5.79								
エポキシ樹脂4		5.59							
フェノール樹脂1	5.06	5.26		4.49	4.42	4.42	4.51	7.32	2.36
フェノール樹脂2			4.00						
硬化促進剤1	0.20	0.20	0.20		0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
硬化促進剤2				0.20					
2,3-ジヒドロキシナフタレン	0.05	0.05	0.05	0.05			0.05	0.05	0.05
1,6-ジヒドロキシナフタレン					0.05				
レゾルシノール						0.05			
シランカップリング剤1	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20		0.20	0.20
熔融球状シリカ	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	88.00	81.00	93.00
カルナバワックス	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
カーボンブラック	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
スパイラルフロー [cm]	160	165	90	65	80	80	75	135	40
ゲルタイム [秒]	60	58	34	25	30	31	35	41	34
耐燃性 (3.2mm厚)	V-1	V-1	V-1	V-0	V-0	V-0	V-0	全焼	V-0
耐半田 リフロー 性	クラック	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	0/16	16/16
	チップ上剥離	0/16	0/16	16/16	8/16	9/16	8/16	0/16	16/16
	パット上剥離	0/16	16/16	16/16	11/6	5/16	7/16	16/16	16/16
	パット裏剥離	0/16	16/16	16/16	16/16	5/16	6/16	16/16	16/16
	インナーリード剥離	0/16	0/16	16/16	16/16	8/16	8/16	16/16	16/16

[0048] 実施例1～13は、いずれも良好な流動性、硬化性、耐燃性及び耐半田リフロー性を示す結果が得られた。一般式(1)で示されるエポキシ樹脂を用いていない比較例1及び比較例2では、硬化性と耐燃性が劣る結果となった。また、比較例2では耐半田リフロー性も劣る結果となった。一般式(2)で示されるフェノール樹脂を用いていない比較例3では、耐燃性と耐半田リフロー性が若干劣る結果となった。ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物ではない硬化促進剤を用いた比較例4では、流動性が低下し、耐半田リフロー性も劣る結果となった。芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物を用いていない比較例5及び比較例6では、流動性が低下し、耐半田リフロー性も劣る結果となった。シランカップリング剤を用いていない比較例7では、流動性が低下し、耐半田リフロー性も劣る結果となった。無機充填材の含有量が不足している比較例8では、耐燃性と耐半田リフロー性が劣る結果となった。無機充填材の含有量が過剰である比較例9では、流動性の低下と粘度の上昇が著しく、パッケージ成形においては良好な成形品が得られなかった。以上より、本発明のエポキシ樹脂組成物を使用することにより、ハロゲン系難燃剤、及びアンチモン化合物、その他の難燃性付与剤を使用することなく良好な難燃性が得られ、かつ流動性を損なうことなく、鉛フリー半田にも対応可能な高い耐半田リフロー性を有する半導体封止用樹脂組成物が得られることが判った。

請求の範囲

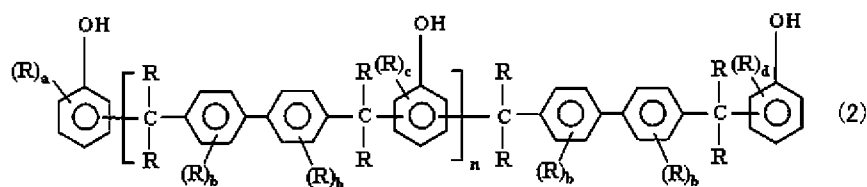
- [1] (A) 一般式(1)で示されるエポキシ樹脂、(B) 一般式(2)で示されるフェノール樹脂、(C) ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物を含む硬化促進剤、(D) 芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物、(E) シランカップリング剤、及び(F) 無機充填材、を必須成分とし、前記(F) 無機充填材を全エポキシ樹脂組成物中に84重量%以上、92重量%以下含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

(化1)



(ただし、上記一般式(1)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

(化2)

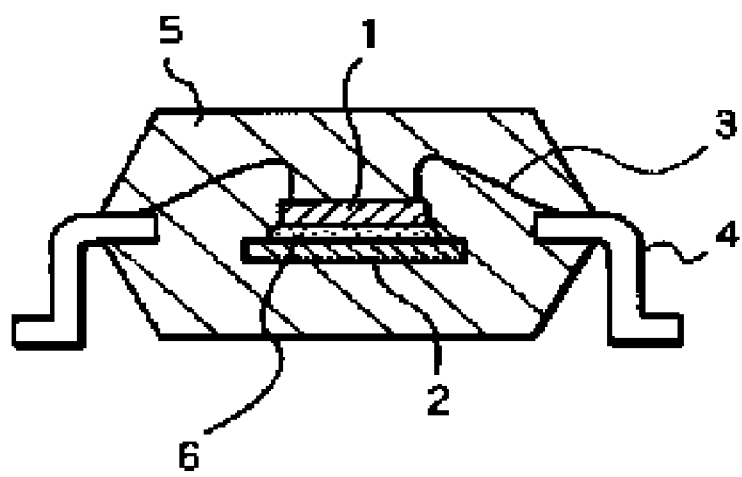


(ただし、上記一般式(2)において、Rは水素または炭素数1～4のアルキル基を示し、互いに同一もしくは異なっても良い。aは0～4の整数、bは0～4の整数、cは0～3の整数、dは0～4の整数。nは平均値で、0又は10以下の正数。)

- [2] 前記(A) 一般式(1)で示されるエポキシ樹脂の軟化点が35℃以上、60℃以下である請求項1記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。
- [3] 前記(C) ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が、トリフェニルホスフィンの1,4-ベンゾキノン付加物である請求項1又は2記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成

- 物。
- [4] 前記(D)芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物が、ベンゼン環又はナフタレン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物である請求項1ないし3のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。
- [5] ベンゼン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した前記化合物が、カテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステル、またはこれらの誘導体である、請求項4に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。
- [6] ナフタレン環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した前記化合物が、1, 2-ジヒドロキシナフタレンもしくは2, 3-ジヒドロキシナフタレン、またはこれらの誘導体である、請求項4に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。
- [7] 請求項1ないし6のいずれかに記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子を封止してなることを特徴とする半導体装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/313654

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G59/68(2006.01)i, C08G59/62(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08G59/00-59/72

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-292584 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 15 October, 2003 (15.10.03), Claims (Family: none)	1-7
A	JP 7-90052 A (Yuka Shell Epoxy Kabushiki Kaisha), 04 April, 1995 (04.04.95), Claims; Par. No. [0026] & US 5597876 A & EP 0720630 A1	1-7
A	JP 2004-331677 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 25 November, 2004 (25.11.04), Claims (Family: none)	1-7



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
01 August, 2006 (01.08.06)

Date of mailing of the international search report
15 August, 2006 (15.08.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/313654

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP 2006-52267 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 23 February, 2006 (23.02.06), Claims (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C08G59/68(2006.01)i, C08G59/62(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C08G 59/00- 59/72			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 日本国公開実用新案公報 1 9 7 1 - 2 0 0 6 年 日本国実用新案登録公報 1 9 9 6 - 2 0 0 6 年 日本国登録実用新案公報 1 9 9 4 - 2 0 0 6 年			
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
A	JP 2003-292584 A（住友ベークライト株式会社）2003.10.15, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	1-7	
A	JP 7-90052 A（油化シェルエボキシ株式会社）1995.04.04, 特許請求の範囲、0 0 2 6 段落 & US 5597876 A & EP 0720630 A1	1-7	
A	JP 2004-331677 A（日立化成工業株式会社）2004.11.25, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	1-7	
☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献			
国際調査を完了した日 0 1 . 0 8 . 2 0 0 6		国際調査報告の発送日 1 5 . 0 8 . 2 0 0 6	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / J P） 郵便番号1 0 0 - 8 9 1 5 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官（権限のある職員） 辰己 雅夫 電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7	4 J 3 3 4 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, A	JP 2006-52267 A (住友ベークライト株式会社) 2006.02.23, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-7