## (19) **日本国特許庁(JP)**

# (12) 公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2018-73936 (P2018-73936A)

(43) 公開日 平成30年5月10日(2018.5.10)

弁理士 有永 俊

弁理士 早川 美和

京セラ株式会社内

京セラ株式会社内

京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

最終頁に続く

渡辺 尚紀

(74)代理人 100204043

(72) 発明者 藤枝 新悦

(72) 発明者

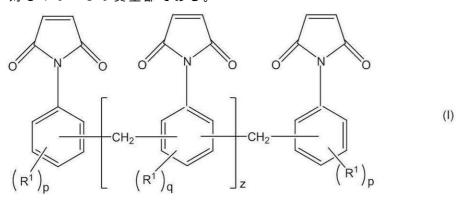
(51) Int.Cl.  HO1 L 23/29  HO1 L 23/31  CO8 L 61/10  CO8 L 65/00  CO8 K 5/544	F I (2006.01) HO 1 L (2006.01) CO8 L (2006.01) CO8 K (2006.01) CO8 K	23/30 R 61/10 65/00 5/544 5/49	テーマコード(参考) 4 J O O 2 4 M I O 9
	審査請求ヲ	₹請求 請求項の数 5 O L	(全 19 頁) 最終頁に続く
(21) 出願番号 (22) 出願日	特願2016-210615 (P2016-210615) 平成28年10月27日 (2016.10.27)	(71) 出願人 000006633 京セラ株式会 京都府京都市	生 伏見区竹田鳥羽殿町6番地
		(74)代理人 100089185 弁理士 片岡 (74)代理人 100131635	誠

(54) 【発明の名称】封止成形材料用組成物及び電子部品装置

### (57)【要約】 (修正有)

【課題】高いガラス転移温度(Tg)を有するとともに、成形性に優れ、且つ、半導体インサート部品との密着性が良好な硬化物を得ることができる封止成形材料用組成物及び該封止成形材料用組成物を用いた電子部品装置を提供する。

【解決手段】(A)下記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂と、(B)トリフェニルメタン骨格及び/又はナフタレン骨格を有するフェノール系硬化剤と、(C)二級アミンを含むアルコキシシランと、(D・1)有機リン系硬化促進剤と、(D・2)イミダゾール系硬化促進剤とを含有し、前記(B)成分の含有量が、前記(A)成分100質量部に対し10~50質量部である。



20

### 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

(A)下記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂と、(B)トリフェニルメタン骨格及び/又はナフタレン骨格を有するフェノール系硬化剤と、(C)ニ級アミンを含むアルコキシシランと、(D-1)有機リン系硬化促進剤と、(D-2)イミダゾール系硬化促進剤とを含有し、前記(B)成分の含有量が、前記(A)成分100質量部に対し10~50質量部である封止成形材料用組成物。

## 【化1】

$$(R^1)_p$$
  $(R^1)_q$   $(R^1)_q$   $(R^1)_p$ 

(式中、R  $^1$ はそれぞれ独立に炭素数 1 ~ 1 0 の炭化水素基であって、炭化水素基はハロゲン原子で置換されていてもよい。R  $^1$ が複数存在する場合、該複数のR  $^1$ は、互いに同一でも異なっていてもよい。p はそれぞれ独立に 0 ~ 4 の整数、 q は 0 ~ 3 の整数、 z は 0 ~ 1 0 の整数である。)

## 【請求項2】

前記(B)成分が、下記一般式(II)で表されるトリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、下記一般式(III)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂、及び下記一般式(IV)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂から選択される少なくとも1種を含む、請求項1に記載の封止成形材料用組成物。

## 【化2】

(式中、xは0~10である。)

## 【化3】

$$\begin{array}{c|c} OH & OH \\ \hline \\ CH_2 & CH_2 & CH_2 & CH_2 & (III) \\ \hline \end{array}$$

(式中、y1は0~10である。)

#### 【化4】

(式中、 y 2 は 0 ~ 1 0 である。)

## 【請求項3】

前記(D-2)成分が、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(液状)と、その質量比を1/20とした上で反応させた時の反応開始温度が85 以上200 未満を示すイミダゾール系硬化促進剤である、請求項1又は2に記載の封止成形材料用組成物。

#### 【請求項4】

前記(D-1)成分と前記(D-2)成分との含有量比[(D-1)/(D-2)]が、質量比で、3/1~1/3である、請求項1~3のいずれか一項に記載の封止成形材料用組成物。

## 【請求項5】

請求項1~4のいずれか一項に記載の封止成形材料用組成物の硬化物により封止された 素子を備える、電子部品装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

### [0001]

本発明は、封止成形材料用組成物、及び電子部品装置に関する。

## 【背景技術】

#### [0002]

従来から、トランジスタ、IC等の電子部品封止の分野では、エポキシ樹脂成形材料が広く用いられている。これは、エポキシ樹脂が、電気特性、耐湿性、機械特性、インサート部品との接着性等のバランスに優れるからである。

# [0003]

近年、資源エネルギーの将来的な枯渇に対する不安や、いわゆる地球温暖化問題等を背景に世界的に省エネルギーの機運が高まっており、電力の制御や変換を行い、「省エネ技術のキーデバイス」と言われるパワーデバイス(パワー半導体)が注目されている。

パワー半導体にとって、電力変換効率はその性能を決定する非常に重要な項目であるが、ここにきて、従来のSi素子より変換効率の高い炭化ケイ素(SiC)や窒化ガリウム(GaN)等の化合物半導体の研究開発や市場での流通が活況を呈するようになってきた

# [0004]

SiCやGaNの大きな特徴として、従来のSi素子と比較して高温動作が可能である点を挙げることができる。また、特にSiCについては、Si素子に比べ、より高い耐圧性を有するため、より小さな素子やパッケージでこれまで以上の耐圧性を実現することが期待されている。

#### [0005]

一方、より小さな素子やパッケージで、これまで以上の耐圧性を実現することは、素子自身の発熱もこれまで以上に高くなることを意味し、高温動作が可能となることと相まって、周辺部材にもこれまで以上の耐熱性が求められることになる。 SiCについては、 300 以上での動作報告もある。

### [0006]

封止用成形材料に高いガラス転移温度を与え、高温時信頼性を確保しようとする技術としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、マレイミド基を有する化合物、及びアルケニル基を有するフェノール化合物を必須成分とする封止用エポキシ樹脂組成物(例えば、特許文献1)、マレイミド化合物とベンゾオキサジン化合物を特定の比率で配合し、トリアゾ

10

20

30

40

ール系化合物を添加した封止用樹脂組成物(例えば、特許文献 2 )等の報告がある。また、インサートとの剥離を防止する為に、特定の構造を有するカップリング剤を併用した封止用エポキシ樹脂成形材料(例えば、特許文献 3 )等の報告もある。

#### 【先行技術文献】

### 【特許文献】

### [0007]

【特許文献1】特許第4793565号

【特許文献 2 】特開 2 0 1 5 - 1 0 1 6 6 7 号公報

【特許文献3】特開2016-084480号公報

#### 【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

#### [00008]

高温時信頼性を確保する為には、高いガラス転移温度(Tg)とともに、半導体インサート部品に対する高い密着力が必要である。しかし、一般に、これらの両立は困難であることが多く、高いガラス転移温度(Tg)を有する樹脂を用いても半導体インサート部品との剥離が発生する等の問題を抱えることも少なくない。さらに、半導体インサート部品に対する十分な密着性を確保した上で、金型離型性等の成形性との両立を図ることも困難な課題であり、従来の技術ではこられの課題が十分に解決されているとは言いがたい。

#### [0009]

本発明は、このような実情に鑑みてなされたものであり、高いガラス転移温度(Tg)を有するとともに、成形性に優れ、且つ、半導体インサート部品との密着性が良好な硬化物を得ることができる封止成形材料用組成物、及び該封止成形材料用組成物を用いた電子部品装置を提供することを目的とする。

#### 【課題を解決するための手段】

#### [0010]

本発明者らは、上記の課題を解決するべく鋭意検討した結果、特定構造を有するマレイミド樹脂と、特定の骨格を有するフェノール系硬化剤とを特定の割合で含有し、さらに、特定構造を有するアルコキシシラン、及び特定の構造を有する硬化促進剤を含有する封止成形材料用組成物が、上記課題を解決することを見出した。

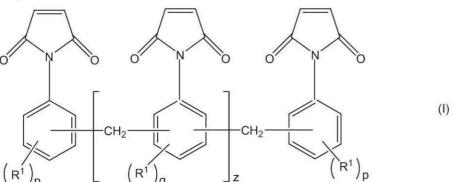
本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

## [0011]

すなわち、本発明は、以下の[1]~[6]を提供する。

[1](A)下記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂と、(B)トリフェニルメタン骨格及び/又はナフタレン骨格を有するフェノール系硬化剤と、(C)二級アミンを含むアルコキシシランと、(D-1)有機リン系硬化促進剤と、(D-2)イミダゾール系硬化促進剤とを含有し、前記(B)成分の含有量が、前記(A)成分100質量部に対し10~50質量部である封止成形材料用組成物。

## 【化1】



(式中、R<sup>1</sup>はそれぞれ独立に炭素数1~10の炭化水素基であって、炭化水素基はハロ

10

20

20

30

40

ゲン原子で置換されていてもよい。 R  $^1$  が複数存在する場合、該複数の R  $^1$  は、互いに同一でも異なっていてもよい。 p はそれぞれ独立に  $0\sim4$  の整数、 q は  $0\sim3$  の整数、 z は  $0\sim1$  0 の整数である。 )

[2]前記(B)成分が、下記一般式(II)で表されるトリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、下記一般式(III)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂、及び下記一般式(IV)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂から選択される少なくとも1種を含む、上記[1]に記載の封止成形材料用組成物。

## 【化2】

(式中、xは0~10である。)

## 【化3】

$$\begin{array}{c|c} OH & OH \\ \hline \\ CH_2 & CH_2 & CH_2 \\ \hline \end{array}$$

(式中、y1は0~10である。)

## 【化4】

(式中、y2は0~10である。)

[3]前記(D-2)成分が、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(液状)と、その質量比を1/20とした上で反応させた時の反応開始温度が85 以上200 未満を示すイミダゾール系硬化促進剤である、上記[1]又は[2]に記載の封止成形材料用組成物。

[4]前記(D-1)成分と前記(D-2)成分との含有量比[(D-1)/(D-2)]が、質量比で、3/1~1/3である、上記[1]~[3]のいずれかに記載の封止成形材料用組成物。

[5]上記[1]~[4]のいずれかに記載の封止成形材料用組成物の硬化物により封止された素子を備える、電子部品装置。

## 【発明の効果】

## [0012]

本発明によれば、高いガラス転移温度(Tg)を有するとともに、成形性に優れ、且つ、半導体インサート部品との密着性が良好な硬化物を得ることができる封止成形材料用組成物、及び該封止成形材料用組成物を用いた電子部品装置を提供することができる。

## 【発明を実施するための形態】

#### [0013]

以下、本発明を詳細に説明する。

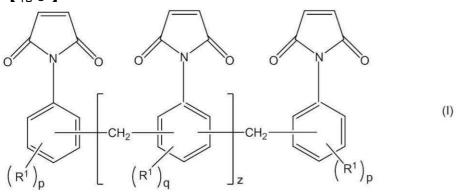
(封止成形材料用組成物)

まず、本発明の封止成形材料用組成物の各成分について述べる。

### 〔(A)マレイミド樹脂〕

本発明で用いる(A)成分のマレイミド樹脂は、下記一般式(I)で表され、1分子内にマレイミド基を2つ以上含む化合物であり、加熱によりマレイミド基が反応することで3次元的網目構造を形成し、硬化する樹脂である。また、上記マレイミド樹脂は、架橋反応により、硬化物に高いガラス転移温度(Tg)を与え、耐熱性及び耐熱分解性を向上させる。

## 【化5】



## [0014]

上記一般式(I)中、 $R^1$ はそれぞれ独立に炭素数  $1 \sim 10$ の炭化水素基であって、該炭化水素基はハロゲン原子で置換されていてもよい。pはそれぞれ独立に $0 \sim 4$ の整数、qは $0 \sim 3$ の整数である。

上記炭素数 1 ~ 1 0 の炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基などのアルキル基;クロロメチル基、3 ・クロロプロピル基などの置換アルキル基;ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基などのアルケニル基;フェニル基、トリル基、キシリル基などのアリール基;ベンジル基、フェネチル基などのアラルキル基などの 1 価の炭化水素基が挙げられる。

また、 $R^1$ が複数存在する場合、該複数の $R^1$ は、互いに同一でも異なっていてもよい

zは0~10の整数であり、好ましくは0~4の整数である。

## [0015]

上記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂は、後述する(B)成分のフェノール系硬化剤と、有機リン系触媒等の存在下、170 以上の温度で比較的容易に付加反応を行い、封止成形材料用組成物の硬化物(封止成形材料)に高い耐熱性を与える。

## [0016]

上記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂の具体例としては、例えば、N,N'-(4,4'-ジフェニルメタン)ビスマレイミド、ビス(3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタン、ポリフェニルメタンマレイミド等が挙げられる。

また、上記マレイミド樹脂は、例えば、N , N ' - (4 , 4 ' - ジフェニルメタン) ビスマレイミドで z=0 を主成分とする B M I 、 B M I - 7 0 (以上、ケイアイ化成(株)製)、B M I - 1 0 0 0 (大和化成工業(株)製)、ポリフェニルメタンマレイミドで z=0 ~ 2 を主成分とする B M I - 2 3 0 0 (大和化成工業(株)製)等が市販品として入手することができる。

### [0017]

上記(A)成分のマレイミド樹脂は、その一部又は全量を後述する(B)成分のフェノール系硬化剤の一部又は全量と予め予備混合を行なってから用いてもよい。予備混合の方

10

30

50

法は特に限定されず、公知の混合方法を用いることができる。例えば、撹拌可能な装置を用い、(B)成分のフェノール系硬化剤を50~180 で溶融した後、撹拌しつつ(A)成分のマレイミド樹脂を徐々に加えて混合し、その全てが溶融してから更に10~60分程度撹拌し、予備混合樹脂とする方法等が挙げられる。

(7)

#### [0018]

上記(A)成分のマレイミド樹脂は、本発明の効果を妨げない範囲で、上記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂以外のマレイミド樹脂を併用してもよい。併用可能なマレイミド樹脂としては、例えば、m・フェニレンビスマレイミド、2,2・ビス[4・(4・マレイミドフェノキシン)フェニル]プロパン、1,6・ビスマレイミド・(2,2,4・トリメチル)へキサン等を挙げることができるが、これら以外の従来公知のマレイミド樹脂を併用してもよい。

なお、上記一般式(I)で表されるマレイミド樹脂以外のマレイミド樹脂を配合する場合、その配合量は、(A)成分のマレイミド樹脂100質量部に対し、30質量部以下とすることが好ましく、20質量部以下とすることがより好ましく、10質量部以下とすることが更に好ましい。

#### [0019]

## 〔(B)フェノール系硬化剤〕

本発明で用いる(B)成分のフェノール系硬化剤は、一分子中に少なくとも2個の水酸基を有し、トリフェニルメタン骨格及び/又はナフタレン骨格を含む。具体的には、トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、及びナフタレン骨格を有するフェノール樹脂のうち少なくとも1種を含む。

#### [0020]

上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば、下記一般式(II)で表されるフェノール樹脂が挙げられ、好適に用いることができる。

## [0021]

### 【化6】

(式中、xは0~10である。)

## [0022]

また、上記ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂としては、一分子中に少なくとも 2 個の水酸基を有し、少なくとも 1 つのナフタレン環を有するフェノール樹脂であれば特に限定されるものではなく、例えば、下記一般式(III)、及び下記一般式(IV)で表されるフェノール樹脂が挙げられ、これらを好ましく用いることができる。

## [0023]

20

# 【化7】

$$\begin{array}{c|c} OH & OH \\ \hline \\ CH_2 & CH_2 & CH_2 & CH_2 & (III) \\ \hline \end{array}$$

(式中、y1は0~10である。)

(式中、y2は0~10である。)

[0024]

#### 【化8】

# [0025]

上記(B)成分のフェノール系硬化剤は、上記一般式(II)で表されるトリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂、上記一般式(III)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂、及び上記一般式(IV)で表されるナフタレン骨格を有するフェノール樹脂から選択される少なくとも1種を含むことが、封止成形材料の耐熱性を高める観点から好ましい。

#### [0026]

上記(B)成分のフェノール系硬化剤の含有量は、(A)成分100質量部に対し10~50質量部であり、好ましくは20~45質量部、より好ましくは20~40質量部である。10質量部未満では、半導体インサート部品との密着力の低下を招くおそれがあり、50質量部を超えると、硬化物のガラス転移温度及び耐熱性が不十分となるおそれがある。

なお、上記一般式(II)~(IV)で表されるフェノール樹脂は、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。2種以上を併用する場合、その合計量が上記範囲内となるようにする。

## [0027]

上記一般式(II)で表されるフェノール樹脂は、MEH-7500(明和化成(株)製)として、上記一般式(III)で表されるフェノール樹脂は、SN-485(新日鉄住金化学(株)製)として、上記一般式(IV)で表されるフェノール樹脂は、SN-395(新日鉄住金化学(株)製)として、それぞれ市販品として入手することができる。【0028】

また、上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂及びナフタレン骨格を有するフェノール樹脂の軟化点は、主として生産性の観点から、好ましくは65~130、より好ましくは70~125、更に好ましくは75~120 である。

## [0029]

上記(B)成分のフェノール系硬化剤中、上記一般式(II)~(IV)で表されるフェノール樹脂の含有量は、好ましくは70~100質量%、より好ましくは80~100質量%、更に好ましくは90~100質量%である。上記範囲内とすることにより、封止成形材料の耐熱性を向上させることができる。

## [0030]

上記(B)成分のフェノール系硬化剤は、上記トリフェニルメタン骨格を有するフェノール樹脂及び上記ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂の他に、本発明の効果を損なわない範囲で半導体素子封止材料として用いられるフェノール系樹脂を併用することができる。併用可能な樹脂としては、例えば、フェノールノボラック、 o -クレゾールノボラッ

10

20

30

ク等を挙げることができるが、これら以外のフェノール系樹脂を併用してもよい。

また、本発明の効果を損なわない範囲で、無水酸系硬化剤、アミン系硬化剤等を併用してもよい。

なお、上記(B)成分以外のフェノール系樹脂を併用する場合、その配合量は(B)成分のフェノール系硬化剤100質量部に対し、30質量部以下とすることが好ましく、20質量部以下とすることが更に好ましい。

#### [0031]

〔 ( C ) 二級アミンを含むアルコキシシラン〕

本発明の封止成形材料用組成物は、主として半導体インサート部品との密着性向上といった観点から、(C)成分の二級アミンを含むアルコキシシラン(以下、「二級アミノシラン」ともいう。)を含む。二級アミノシランは、後述する(D - 1)成分の有機リン系硬化促進剤存在下で、(A)成分と比較的容易に反応し、(A)成分どうしの自己重合反応を抑制することで、成形(硬化)時の発生応力を低下させる役割を果たし、封止成形材料と半導体インサート部品との剥離を抑える効果を有する。

#### [0032]

(C)成分の二級アミノシランは、二級アミンを含み、アルコキシ基を好ましくは2個以上有すれば、特に限定されず、例えば、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-2-(N-ビニルベンジルアミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

二級アミノシランは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。また、従来公知の方法により、予め無機充填材等に前処理した上で用いてもよい。

#### [0033]

(C)成分の二級アミノシランは、例えば、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシランをKBM-603(信越化学工業(株)製)として、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシランをY-9669(MOMENTIVE社製)やKBM-573(信越化学工業(株)製、商品名)として、それぞれ市場で入手可能である。

## [0034]

(C)成分の二級アミノシランの含有量は、半導体インサート部品との密着性や成形性等の観点から、(A)成分100質量部に対し、0.1~10質量部が好ましく、0.5~6質量部がより好ましく、1~3質量部がさらに好ましい。なお、2種以上を併用した場合には、その合計量を前記範囲とすることが好ましい。

#### [0035]

〔(C-2)イソシアネート基を有するアルコキシシラン〕

本発明の封止成形材料用組成物は、さらに、(C - 2)成分のイソシアネート基を有するアルコキシシラン(以下、「イソシアネートシラン」ともいう)を含有することが、半導体インサート部品との密着性を向上させる観点から好ましい。イソシアネートシランもまた、(A)成分どうしの自己重合反応を抑制することで成形時の発生応力を抑制し、封止成形材料と半導体インサート部品との剥離を抑える効果を有する。

### [0036]

(C-2)成分のイソシアネートシランとしては、例えば、3-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等が挙げられるが、これら以外のイソシアネートシランを使用してもよい。中でも、半導体インサート部品との密着性向上の観点からは、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランが好ましい。イソシアネートシランは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

### [0037]

10

20

30

10

30

40

50

3 - イソシアネートプロピルトリメトキシシランの市販品は、Y - 5 1 8 7 (MOMENTIVE社製)等として、3 - イソシアネートプロピルトリエトキシシランの市販品は、A - 1 3 1 0 (MOMENTIVE社製)やKBE - 9 0 0 7 (信越化学工業(株)製)等として、それぞれ市場で入手可能である。

#### [0038]

イソシアネートシランの含有量は、半導体インサート部品との密着性や成形性等の観点から、(A)成分100質量部に対し、0.1~5質量部が好ましく、0.3~3質量部がより好ましく、0.5~2質量部がさらに好ましい。

### [0039]

本発明では、上記(C)成分や(C-2)成分の他に、本発明の効果を損なわない範囲で、他のシランカップリング剤やチタネート系カップリング剤等を併用してもよい。

#### [0040]

〔(D-1)有機リン系硬化促進剤〕

(D-1)成分の有機リン系硬化促進剤は、主として(A)成分と(B)成分の硬化反応を促進する為に用いられる。(D-1)成分は、(B)成分の反応性を高め、これを(A)成分と反応させることで、(A)成分どうしの自己重合反応を相対的に抑制し、半導体インサート部品との剥離応力の発生を抑える働きをする。

### [0041]

(D-1)成分の有機リン系硬化促進剤としては、例えば、トリフェニルホスフィン、トリス(4・メチルフェニル)ホスフィン、トリス(4・ブチルフェニル)ホスフィン、トリス(4・ブチルフェニル)ホスフィン、トリス(2・4・6・トリメチルフェニル)ホスフィン、トリス(2・4・6・トリメチルフェニル)ホスフィン、トリス(2・4・6・トリメチルフェニル)ホスフィン、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン等の三級ホスフィン類、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラブチルホスホニウムテトラブチル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類等を例示することができ、これらを単独、又は2種以上併用して使用することもら以外の従来公知の有機リン系硬化促進剤を単独、又は2種以上併用して使用することも可能である。本発明では、トリフェニルホスフィン、トリス(4・メチルフェニル)ホスフィン等を好適に用いることができる。

## [0042]

(D-1)成分の有機リン系硬化促進剤の含有量は、半導体インサート部品との密着性の観点から、(A)成分100質量部に対し、0.1~10質量部であることが好ましく、0.3~5質量部であることがより好ましく、0.5~3質量部であることがさらに好ましい。2種以上のリン系硬化促進剤を併用する場合には、その合計量が前記範囲となることが好ましい。

# [0043]

〔(D-2)イミダゾール系硬化促進剤〕

(D-2)成分のイミダゾール系硬化促進剤は、(A)成分の自己重合反応を促進し、 封止成形材料用組成物の成形性を確保する為に用いられる。なお、本発明において、「イ ミダゾール系硬化促進剤」とは、5員環上の1,3位に窒素原子を含むイミダゾール化合 物と同義である。

## [0044]

(D-2)成分のイミダゾール系硬化促進剤としては、例えば、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-エチルーミダゾール、2-エチルー4-メチルイミダゾール、2-フェニルー4-メチルイミダゾール、2-フェニルー4-メチルイミダゾール、2-フェニルー4-メチルイミダゾール、2,4-ジアミノー6-[2'-メチルイミダゾリルー(1')]-エチルーs-トリアジン、2-フェニルー4-メチルー5-ヒドロキシメチルイミダゾール等を例示することができ、これらは単独で使用しても2種以上を併用して使用してもよい。また、上記以外の、従来公知のイミダゾール系硬化促進剤を適用してもよい。

#### [0045]

本発明では、上記(D-2)成分を、その必要に応じて適宜選択して用いることができるが、封止成形材料用組成物の成形性及び半導体インサート部品との密着性のバランスといった観点からは、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]-エチル-s-トリアジン、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール等、比較的活性温度の高い化合物を単独、又は2種以上を併用して用いることが特に好ましい。具体的には、該イミダゾール化合物を、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(液状)と、その質量比を1/20として反応させた時の反応開始温度が、好ましくは85以上200未満、より好ましくは85以上150未満を示す化合物を単独、又は2種以上を併用して用いることが特に好ましい。

なお、ここで、反応開始温度とは、DSCを用いて、イミダゾール化合物とビスフェノールA型エポキシ樹脂とを含む組成物を昇温速度10 /分で加熱した時に、発熱又は吸収ピークの立ち上がり曲線で、ピークが最も急になった部分の接線と温度軸の交点の温度を指す。

(D-2)成分の反応開始温度が85 以上であれば、半導体インサート部品との剥離を抑制することができ、200 未満であれば、封止成形材料用組成物の成形性を良好にすることができる。

### [0046]

本発明では、(A)成分の自己重合反応と、(A)成分と(B)成分、(A)成分と(C)成分等の反応を制御し、封止成形材料用組成物の硬化性及び硬化時発生応力のバランスをとり、半導体インサート部品との剥離を抑制する為に、(D-1)成分と(D-2)成分との含有量比を適正化することが好ましい。具体的には、(D-1)成分と(D-2)成分との含有量比[(D-1)/(D-2)]を質量比で、3/1~1/3とすることが好ましい。(D-1)成分が多いと成形性が、(D-2)成分が多いと半導体インサート部品との密着性が、それぞれ不十分となる可能性がある。

〔 (E)シリコーンパウダー〕

#### [0047]

本発明では、成形時や温度サイクル試験時等に発生する、封止成形材料用組成物と半導体インサート界面の応力を低減し、これら界面の剥離を抑制する為に、さらに、(E)成分のシリコーンパウダーを添加することが好ましい。

ここで、「シリコーンパウダー」とは、シロキサン結合が(CH₃SiО₃/₂)nで表される三次元網目状に架橋した構造をもつ粉体のことであり、具体的には、ポリメチルシルセスキオキサン化合物を指す。なお、本発明では、ポリメチルシルセスキオキサン化合物が有するメチル基の一部が、フェニル基等の他の炭化水素基で変性されていてもよい

また、上記ポリメチルシルセスキオキサン化合物は、メチルメタクリレート - ブタジエン - スチレン共重合体(MBS)等の有機系エラストマーに比べ、高い耐熱性を有する。 【0048】

上記(E)成分のシリコーンパウダーは、応力低減効果と流動特性等とのバランスの観点から、その平均粒径が $0.1~20\mu$ mであることが好ましく、 $0.3~10\mu$ mであることがより好ましく、 $0.5~5\mu$ mであることが更に好ましい。平均粒径を $0.1\mu$ m以上とすることで流動特性の低下を防ぐことができ、 $20\mu$ m以下とすることで応力低減効果を十分に得ることができる。

なお、上記平均粒径は、レーザ回折散乱方式(たとえば、(株)島津製作所製、装置名: SALD-3100)により測定することができる。

#### [0049]

上記(E)成分のシリコーンパウダーの含有量は、(A)成分100質量部に対し、好ましくは5~30質量部、より好ましくは5~20質量部である。5質量部以上とすることで応力低減の効果が得られ、30質量部以下とすることで流動特性の低下を防ぐことができる。

10

20

30

#### [0050]

上記(Ε)成分のシリコーンパウダーは、平均粒径が 5 μ m のポリメチルシルセスキオキサン化合物として、M S P - 3 5 0 0 (日興リカ(株)製)等を、平均粒径 3 μ m のポリメチルシルセスキオキサン化合物として、E P - 5 5 1 8 (東レ・ダウコーニング (株)製)等をそれぞれ市販品として入手することができる。

### [0051]

本発明の封止成形材料用組成物には、以上の各成分の他に、本発明の効果を阻害しない 範囲で、この種の組成物に一般に配合される離型剤、無機充填材、難燃剤、着色剤等を必 要に応じて配合することができる。

#### [0052]

上記離型剤としては、例えば、カルナバワックス等の天然ワックス、脂肪酸エステル系ワックス、脂肪酸アミド系ワックス、非酸化型ポリエチレン系離型剤、酸化型ポリエチレン系離型剤、シリコーン系離型剤等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

#### [0053]

本発明では、上記離型剤の中でも、軟化点が110~125 の酸化型ポリエチレン系離型剤を好適に用いることができる。軟化点が110 以上の酸化型ポリエチレン系離型剤は、分子量が比較的大きく、本発明で用いる樹脂系から容易にブリードアウトし、高い離型効果を示す。

#### [0054]

本発明の封止成形材料用組成物に、上記無機充填材を配合することにより、硬化物の機械強度、線膨張係数、熱伝導性等を向上させることができる。

無機充填材としては、封止成形材料に一般に使用されるものであれば特に制限はなく、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、合成シリカ、アルミナ、ジルコン、ケイ酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸バリウム、窒化アルミ、窒化ホウ素等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

#### [0055]

また、上記無機充填材の平均粒径は、通常、 0 . 5 ~ 3 0 μ m 程度、好ましくは 5 ~ 2 0 μ m である。なお、上記平均粒径は、レーザ回折散乱方式(たとえば、(株)島津製作所製、装置名: S A L D - 3 1 0 0 ) により測定された値である。

## [0056]

封止成形材料用組成物中、上記無機充填材の配合量は、流動特性や線膨張係数、熱伝導率等の観点から、好ましくは60~95質量%、より好ましくは65~90質量%、更に好ましくは65~85質量%である。

## [0057]

上記難燃剤としては、例えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ホウ酸亜鉛、酸化亜鉛、リン酸エステル等のリン化合物、メラミン、シクロホスファゼン等を挙げることができるが、これら以外の従来公知の難燃剤を用いてもよい。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

## [0058]

上記着色剤としては、例えば、カーボンブラック、有機染料、酸化チタン、ベンガラ等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いて もよい。

### [0059]

また、本発明の封止成形材料用組成物には、半導体素子の耐湿性や高温放置特性向上等の観点から、陰イオン交換体等のイオントラップ剤を配合してもよい。陰イオン交換体としては、例えば、ハイドロタルサイト類、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ビスマス等から選ばれる元素の含水酸化物等を挙げることができるが、これら以外の従来公知の陰イオン交換体を用いてもよい。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

10

20

30

40

#### [0060]

本発明の封止成形材料用組成物中、(A)成分、(B)成分、(C)成分、(D-1)成分、及び(D-2)成分の含有量は、該封止成形材料用組成物中に前記無機充填材を含有する場合、好ましくは5~40質量%、より好ましくは10~35質量%、更に好ましくは15~35質量%であり、該成形材料中に前記無機充填材を含有しない場合、好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上、更に好ましくは90質量%以上である。

#### [0061]

本発明の封止成形材料用組成物は、上述した各成分を所定量配合したものを均一に分散混合することにより、調製することができる。調製方法は、特に限定されないが、一般的な方法として、例えば、上記各成分を所定量配合したものを、ミキサー等で十分に混合し、次いで、ミキシングロール、押出機等により溶融混合した後、冷却、粉砕する方法を挙げることができる。

### [0062]

このようにして得られた封止成形材料用組成物は、ガラス転移温度(Tg)が高く、成形性に優れるとともに、半導体インサート部品との密着性が良好な硬化物を得ることができる。

上記封止成形材料用組成物の硬化物のガラス転移温度は、好ましくは250 以上、より好ましくは260 以上、更に好ましくは270 以上である。

なお、硬化物のガラス転移温度は、実施例に記載の方法により測定できる。

#### [0063]

### (電子部品装置)

本発明の電子部品装置は、上記封止成形材料用組成物の硬化物により封止された素子を備える。上記電子部品装置とは、リードフレーム、単結晶シリコン半導体素子又はSiC、GaN等の化合物半導体素子等の支持部材、これらを電気的に接続するためのワイヤやバンプ等の部材、及びその他の構成部材一式に対し、必要部分を上記封止成形材料用組成物の硬化物により封止された電子部品装置のことである。

また、上記封止成形材料用組成物を用いることにより、耐熱性に優れるとともに、半導体インサート部品との密着性に優れた電子部品装置とすることができる。特にSiCやGaN等の化合物半導体素子を支持部材とするとき、上記封止成形材料用組成物の硬化物により封止された電子部品装置は良好な特性を示す。

#### [0064]

本発明の封止成形材料用組成物を用いて封止する方法としては、トランスファ成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。

成形温度は、好ましくは  $150 \sim 250$  、より好ましくは  $160 \sim 220$  、更に好ましくは  $170 \sim 200$  である。成形時間は、好ましくは  $30 \sim 600$  秒、より好ましくは  $45 \sim 300$  秒、更に好ましくは  $60 \sim 240$  秒である。また、後硬化する場合、加熱温度は特に限定されないが、例えば、 $150 \sim 250$  であるのが好ましく、 $180 \sim 220$  であるのがより好ましい。また、加熱時間は特に限定されないが、例えば、 $0.5 \sim 10$  時間であるのが好ましく、 $1 \sim 5$  時間であるのがより好ましい。

### 【実施例】

## [0065]

次に実施例により、本発明を具体的に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

#### [0066]

#### (実施例1~14、及び比較例1~5)

表1及び表2に記載の種類及び配合量の各成分をミキシング二軸ロールで混練し、封止成形材料用組成物を調製した。各実施例及び比較例における混練温度は、約120 に設定した。なお、表1及び表2中、空欄は配合なしを表す。

# [0067]

10

20

30

封止成形材料用組成物の調製に使用した表 1 及び表 2 に記載の各成分の詳細は以下のとおりである。

[0068]

<マレイミド樹脂>

〔(A)成分〕

- ・BMI-1000:N,N'-(4,4'-ジフェニルメタン)ビスマレイミド(一般式(I)中のz=0を主成分とする)、大和化成工業(株)製、商品名
- ・ B M I 2 3 0 0 : ポリフェニルメタンマレイミド (一般式 ( I ) 中の  $z = 0 \sim 2$  を主成分とする)、大和化成工業 (株) 製、商品名

なお、上記マレイミド樹脂は、その全量を(B)成分のフェノール系硬化剤の全量に加え予備混合して用いた。予備混合は、120~150 で(B)成分のフェノール系硬化剤の全量を溶融させた後、同温度で、マレイミド樹脂を徐々に加えて混合し、その全量が溶融した後、更に10分程撹拌した。

[0069]

<フェノール系硬化剤>

〔(B)成分〕

- ・MEH-7500:トリフェニルメタン型フェノール樹脂(一般式(II)中のx=1~4であるフェノール樹脂が主成分)、明和化成(株)製、商品名、水酸基当量97、軟化点110
- ・SN-485:ナフトールアラルキル樹脂(一般式(III)中のy1=0~3であるフェノール樹脂が主成分)、新日鉄住金化学(株)製、商品名、水酸基当量215、軟化点87

〔(B)成分以外のフェノール系硬化剤〕

・HE-200C-10:フェノールビフェニルアラルキル樹脂、エア・ウォーター(株)製、商品名、水酸基当量204、軟化点70

[0070]

< 2級アミンを含むアルコキシシラン >

〔(C)成分〕

- ・ K B M 6 0 3 : N 2 (アミノエチル) 3 アミノプロピルトリメトキシシラン、信越化学工業(株)製、商品名
- ・ K B M 5 7 3 : 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(製)、商品名

[0071]

<イソシアネート基を有するアルコキシシラン>

〔(C-2)成分〕

- ・ K B E 9 0 0 7 : 3 イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、信越化学工業 (株)製、商品名
- <(C)成分及び(C-2)成分以外のアルコキシシラン>
- ・ K B M 4 0 3 : 3 グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、信越化学工業(株) 製、商品名

[0072]

< 有機リン系硬化促進剤 >

〔(D-1)成分〕

- ・PP-200:トリフェニルホスフィン、北興化学工業(株)製、商品名
- ・ T P T P : トリス ( 4 メチルフェニル ) ホスフィン、北興化学工業 ( 株 ) 製、商品名 【 0 0 7 3 】

< イミダゾール系硬化促進剤 >

〔(D-2)成分〕

・2 M Z - H : 2 - メチルイミダゾール、四国化成工業(株)製、商品名(ビスフェノールA型エポキシ樹脂との反応開始温度: 7 5 )

30

20

10

40

- ・2 E 4 M Z : 2 エチル 4 メチルイミダゾール、四国化成工業(株)製、商品名(ビスフェノール A 型エポキシ樹脂との反応開始温度:9 0 )
- ・2 M Z A : 2,4 ジアミノ 6 [ 2 ' メチルイミダゾリル ( 1 ' ) ] エチル s トリアジン、四国化成工業(株)製、商品名(ビスフェノール A 型エポキシ樹脂との反応開始温度: 1 2 0 )
- ・2 P 4 M H Z P W : 2 フェニル 4 メチル 5 ヒドロキシメチルイミダゾール 、四国化成工業(株)製、商品名(ビスフェノール A 型エポキシ樹脂との反応開始温度: 1 2 9 )
- ・2 P H Z P W : 2 フェニル 4 , 5 ジヒドロキシメチルイミダゾール、四国化成工業(株)製、商品名(ビスフェノール A 型エポキシ樹脂との反応開始温度:155 ) 【 0 0 7 4 】

<シリコーンパウダー>

〔(E)成分〕

・EP-5518:ポリメチルシルセスキオキサンを主成分とするシリコーンエラストマー、東レ・ダウコーニング(株)製、商品名、平均粒径3µm

[0075]

< その他 >

- ・PED191:離型剤(滴点:115 の酸化型ポリエチレン系離型剤)、クラリアント(株)製、商品名
- ・ F B 1 0 5 : 無機充填材(溶融球状シリカ)、電気化学工業(株)製、商品名、平均 粒径 1 8 μ m、比表面積 4 . 5 m²/g
- ・MA-600:着色剤(カーボンブラック)、三菱化学(株)製、商品名

### [0076]

以下に示す測定条件により、実施例 1 ~ 1 4、及び比較例 1 ~ 5 で調製した封止成形材料用組成物の特性の測定、及び評価を行った。評価結果を表 1 及び表 2 に示した。なお、成形材料の成形は、明記しない限りトランスファ成形機により、金型温度 1 8 5 、成形圧力 1 0 M P a、硬化時間 1 8 0 秒の条件で行った。また、後硬化は 2 2 0 で 4 時間行った。

[0077]

<評価項目>

(1)ガラス転移温度(Tg)

封止成形材料用組成物の硬化物の耐熱性の目安の一つとしてガラス転移温度(Tg)を測定した。まず、縦4mm×横4mm×高さ20mmの金型を用いて、封止成形材料用組成物を上記条件で成形し、更に、上記条件で後硬化させ、成形品(縦4mm×横4mm×厚み20mm)を作製した。該成形品を必要な寸法に切り出したものを試験片とし、該試験片のガラス転移温度(Tg)を、熱分析装置(セイコーインスツル(株)製、商品名:SSC/5200)を用いて測定した。なお、250 以上を合格とした。

[0078]

(2)剥離観察

無電解NiメッキリードフレームのTO-247パッケージのアイランド(8.5×11.5mm)中央部に、SiCチップ(6×6×0.15mmt、表面保護膜なし)を固定し、封止成形材料用組成物を上記条件で成形した成形品をそれぞれ10個作製した。該成形品を、超音波映像装置((株)日立製作所製、FS300II)を用いて観察し、SiCチップ周囲のアイランドと封止成形材料用組成物との剥離の有無について確認した。観察は後硬化前後で行い、アイランド部分の剥離面積が10%以上のパッケージ数が10個中3個以下を合格とした。なお、リードフレームへのチップの固定は、無鉛はんだを用い、ギ酸5%、窒素95%雰囲気の中、340 /13分環境下で行った。また、リードフレームは、封止成形材料用組成物を成形直前に、Nordson社製プラズマクリーナAC-300を用い、60秒のアルゴンプラズマ処理を施して用いた。

[0079]

50

10

20

30

## (3)成形性

離型荷重測定成形機(京セラ(株)製、商品名:GM-500)を用いて、PBGA(Plastic Ball Grid Array、30mm×30mm×1mm、t/2ヶ取り)に対して、300ショットの連続成形を行った。金型温度を185 、成形時間を180秒とした。なお、以下の基準で評価した。

:300ショットまで連続成形が可能であり、金型汚れ等も見られなかった

:金型汚れが見られるものの300ショットまで連続成形が可能であった

×:未硬化、又は金型への貼りつき等により300ショットまでの連続成形が不可能であった

[080]

【表1】

			±							実施例	例						
			和	_	2	က	4	5	9	7	8	6	0_	Ξ	12	13	
マレイミド	€	BMI-1000	質量部	100													
樹脂	成分	BMI-2300			100	100	100	100	1 00	100	100	100	100	100	100	100	
71/一/系	(B)	MEH-7500		35													
硬化剤	成分	SN-485			35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	15	45	
7117	(1) (1)	KBM-603	質量部	3	3	3	3	3	3	3	3				3	3	
ノイエイン	してこれと	KBM-573	質量部									3	3	3			
	(C-2)成分 KBE-9007	KBE-9007	質量部	1.5	1.5	1.5	1.5	1	1	1	1	1		1.5	1.5	1.5	
	<b>公</b> 1 0 0	PP-200	質量部	1	1	1.5	-	1	0.5	1	1						
	(レー1 / 灰刀	ТРТР	質量部									1	1	1	1	1	
12 12 12 年 女川		2MZ-H (75°C)*1	質量部	1	1	0.5											
域北海河		2E4MZ (90°C)*1	質量部				-										
	(D-2)成分	(D-2) 成分	質量部					1	1.5			1	1	1	1	1	
		2P4MHZ-PW (129°C)*¹	質量部							_							
		2PHZ−PW(155°C)*¹	質量部								1						
シーローシ ハウダー	(E) 成分	EP-5518	質量部	10	01	10	10	10	10	10	10	10			10	10	
離型剤		PED191	質量部	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	
無機充填材		FB-105	質量部	500	500	200	500	500	500	500	500	500	500	500	500	500	500
着色剤		MA-600	質量部	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
(A) 成分の全1	量100質量部	(A) 成分の全量100質量部に対する(B)成分の含有量	質量部	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	15	45	35
ガラス転移温度 (Tg)	度 (Tg)		[]	290	295	285	295	290	295	285	280	290	290	290	310	260	280
アイランド部分	トの剥離面積	アイランド部分の剥離面積が10%以上のパッケージ数	[個]	3/10	3/10	1/10	1/10	0/10	1/10	0/10	0/10	0/10	2/10	1/10	2/10	0/10	1
成形性			1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

\*1:ビスフェノールA型エポキシ樹脂との反応開始温度

## 【表2】

#### 表2

			単位	比較例				
			中加	1	2	3	4	5
マレイミト゛	(A)	BMI-1000	質量部					
樹脂	成分	BMI-2300	質量部	100	100	100	100	100
フェノール系	(B)	MEH-7500	質量部					
硬化剤	成分	SN-485	質量部		5	35	35	35
IX ICAI		HE-200C-10	質量部	35				
	(C)成分	KBM-603	質量部	3	3		3	3
アルコキシ シラン	(0)19(7)	KBM-573	質量部	12				
	(C-2)成分	KBE-9007	質量部					
		KBM-403	質量部			3		
硬化促進剤	(D-1)成分	PP-200	質量部	1	1	1	2	
	(1) 1/194/73	TPTP	質量部					
	(D-2)成分	2MZ-H (75°C)*1	質量部	×				
		2E4MZ (90°C)*1	質量部					
		2MZ-A (120°C)*1	質量部	1	1	1		2
		2P4MHZ-PW (129°C)*1	質量部					
		2PHZ-PW(155°C)*1	質量部					
シリコーン パウダー	(E)成分	EP-5518	質量部					
離型剤		PED191	質量部	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
無機充填材		FB-105	質量部	500	500	500	500	500
着色剤		MA-600	質量部	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
(A)成分の全量100質量部(		に対する(B)成分の含有量	質量部	-	5	35	35	35
ガラス転移温度 (Tg)			[°C]	220	315	290	265	295
アイランド部分の剥離面積		が10%以上のパッケージ数	[個]	2/10	10/10	10/10	2/10	10/10
成形性		ナン掛むしの口内間が月底		0	×	0	×	0

<sup>\*1:</sup>ビスフェノールA型エポキシ樹脂との反応開始温度

## [0082]

本発明の(A)成分~(D-2)成分のいずれかを欠く、または所定量外の成分量である比較例1~5は、ガラス転移温度(Tg)、半導体インサートとの剥離、成形性のいずれか、または複数の項目で所定の特性を満たすことができていない。

これに対し、(A)成分~(D-2)成分のすべてを含有し、その含有量が所定量内である実施例1~14は、上記すべての項目を満たしていることがわかる。

## 【産業上の利用可能性】

## [0083]

本発明による封止成形材料用組成物を適用することにより、特に高温での信頼性に優れた半導体パッケージを提供することが可能となり、その産業上の有用性は大である。

\_\_\_\_\_

## フロントページの続き

 (51)Int.Cl.
 F I

 テーマコード (参考)

C 0 8 K 5/49 (2006.01) C 0 8 K 5/3445 C 0 8 K 5/3445 (2006.01) C 0 8 L 61/30

C 0 8 L 61/30 (2006.01)

F ターム(参考) 4J002 CC04X CC24W CE00X EU118 EW017 EX076 FD157 FD158 FD206 GQ01

**GQ05** 

4M109 AA01 CA21 CA22 EA07 EB02 EB04 EB12 EC09

【要約の続き】

【選択図】なし