

明 細 書

発明の名称：

樹脂成形体及びその製造方法、樹脂組成物及びその製造方法ならびに、電子部品装置

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂成形体及びその製造方法、樹脂組成物及びその製造方法ならびに、電子部品装置、特に、室温での長期保存性に優れ、硬化性や流動性が良好な樹脂成形体及びその製造方法、樹脂組成物及びその製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] IC、LSI、ディスクリート等の素子は、主にエポキシ樹脂組成物を用いてトランスファー成形により封止されており、低コスト、高信頼性及び生産性に適した方法として従来から用いられている。トランスファー成形では、大部分がエポキシ樹脂組成物をタブレット状に成形した成形体を金型内のポットに投入し、加熱溶融させながらプランジャーで加圧し、金型キャビティ内に移送し、硬化させて成形するのが一般的である。

[0003] このエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤、無機質充填材を含み、各成分を所定量秤量して混合した後、混練機で加熱溶融、混練を行い、冷却後に粉砕しタブレット状に成形して製造された後、低温室に保管される。また、使用する際は低温室から取り出した後、エポキシ樹脂組成物が室温に戻るまで放置するのが一般的である。しかしながら、混練機で加熱溶融、混練、冷却、粉砕したエポキシ樹脂組成物をタブレット状に成形するまで長時間を要する場合、エポキシ樹脂組成物の品質を損なわないように10℃～-20℃程度の低温室に保管し、タブレット状に成形する前に10数時間程度の室温戻しの処理をした後に成形する。さらに、成形時に全量使用されれば問題ないがエポキシ樹脂組成物が残った場合、再度低温室に保管する必要がある。低温保管をしないと、その保管期間にもよるが著しく流

動性が低下し、また、低温室から取り出した後室温戻しの処置をせずに使用すれば、温度環境差による結露が発生し吸水状態となり、ボイドや硬化性低下等が発生するなど、取り扱い上の問題がある。これらの点から、低コスト化、大量生産性、省人化等に限界があり、室温付近（20℃～25℃）で保管できることが望まれていた。

[0004] このような課題に対して、エポキシ樹脂と無機質充填材を混合、加熱溶融、混練、破碎したものと、フェノール樹脂と硬化促進剤及び無機質充填材を混合、加熱溶融、混練、破碎した材料を再混合した状態でタブレット状に成形しトランスファー成形を行うことが提案されている（例えば、特許文献1参照）。この方法では、成形物の成形は可能であるが、エポキシ樹脂とフェノール樹脂との硬化反応が不十分となり、成形物にひび割れ、フクレ等が発生する問題があった。

[0005] 硬化性を改善するために、スクリーインライン方式の射出成形機を用いる方法も考えられるが、新規設備の導入が必要となり、現実的でない。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開平11-5888号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、室温での長期保存性に優れ、硬化性や流動性が良好な樹脂成形体（特に封止用樹脂タブレット）及びその製造方法、樹脂組成物及びその製造方法、ならびに、それ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

[0008] 本発明は以下の通りである。

（1）エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材を含む樹脂組成物から構成される樹脂成形体の製造方法であって、

前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と、

前記硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、

前記第1粉体と前記第2粉体とを、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以下の温度で分散混合して樹脂組成物を得る混合工程と、

前記樹脂組成物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度にならないように加圧して樹脂成形体を成形する成形工程とを有し、

前記硬化促進剤と、前記エポキシ樹脂及び前記硬化剤とを含む混合物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以上に加熱する工程を経ずに前記成形体を得ることを特徴とする樹脂成形体の製造方法。

[0009] (2) 前記樹脂成形体が封止用樹脂タブレットであることを特徴とする(1)に記載の樹脂成形体の製造方法。

[0010] (3) 前記第2粉体中の硬化促進剤のメディアン径が $20\mu\text{m}$ 以下で、粒子径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が10質量%以下であることを特徴とする(1)又は(2)に記載の樹脂成形体の製造方法。

[0011] (4) 前記粉碎工程は、ジェットミル、ボールミル、ハンマーミル及びポットミルからなる群から選ばれる少なくとも1種類の粉碎機を用いて行うことを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。

[0012] (5) 前記樹脂組成物が離型剤をさらに含むものであり、第2組成分が前記硬化促進剤に、さらに前記エポキシ樹脂、前記硬化剤、前記無機質充填材及び前記離型剤の少なくとも1成分の一部を含むことを特徴とする(1)～(4)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。

[0013] (6) 前記第1粉体のメディアン径が $200\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする(1)～(5)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。

[0014] (7) 前記混合工程は、回転式混合機及び分散運動式混合機からなる群より選ばれる少なくとも1種類の混合機を用いて行うことを特徴とする(1)～(6)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。

[0015] (8) 前記硬化促進剤が、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物及びホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物からなる群から選ばれる少なくとも1種類の化合物であることを特徴とする(1)～(7)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。

[0016] (9) (1)～(8)のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法により得られる樹脂成形体であって、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管後の高化式粘度の粘度上昇率が20%以下であることを特徴とする樹脂成形体。

[0017] (10) エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材を含む樹脂組成物の製造方法であって、

前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と、前記硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、

前記第1粉体と前記第2粉体とを、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以下の温度で分散混合して樹脂組成物を得る混合工程とを有し、

前記硬化促進剤と、前記エポキシ樹脂及び前記硬化剤とを、含む混合物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以上に加熱する工程を経ずに前記樹脂組成物を得ることを特徴とする樹脂組成物の製造方法。

[0018] (11) (10)に記載の樹脂組成物の製造方法により得られる樹脂組成物であって、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管後の高化式粘度の粘度上昇率が20%以下であることを特徴とする樹脂組成物。

[0019] (12) (9)に記載の樹脂成形体を用いて、あるいは、(11)に記載の

樹脂組成物を成形体とすることなくそのまま用いて、半導体素子が封止されてなることを特徴とする電子部品装置。

発明の効果

[0020] 本発明に従うと、混練機で硬化促進剤を加熱溶融、混練すること無く製造することによって、室温での長期保存性が良好となり、保管、輸送コストの低減化を図ることができ、かつ成形性（特に流動性）、硬化性は現行品と同等となるため、産業上有用である。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図1は、既存の製造方法と本発明による樹脂成形体の製造方法の一例を示す工程概略図である。

[図2]図2は、粉碎機の一例であるクリプトロンゼプロスの構成概略図である。

発明を実施するための形態

[0022] 本発明の樹脂成形体の製造方法は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材を含む樹脂成形体の製造方法であって、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と、前記硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、前記第1粉体と前記第2粉体とを、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以下の温度で分散混合して樹脂組成物を得る混合工程とを有し、前記硬化促進剤と、前記エポキシ樹脂及び前記硬化剤とを含む混合物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以上に加熱する工程を経ずに前記樹脂成形体を得ることを特徴とする。これにより、室温での長期保存性に優れ、硬化性や流動性が良好な樹脂成形体を得ることができる。また、本発明の電子部品装置は、上記の樹脂成形体を用いて素子が封止されてなることを特徴とする。以下に本発明について詳細に説明する。

[0023] 図1は、樹脂成形体の製造方法について、既存の製造方法と本発明による

製造方法の一例を示す工程概略図である。

[0024] 本発明で用いられる樹脂成形体は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材を含む樹脂組成物から構成される樹脂成形体であって、図1に一例を示すように、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、前記第1粉体と前記第2粉体とを、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤、前記硬化促進剤の融点または軟化点以下の温度で分散混合して樹脂組成物を得る混合工程と前記樹脂組成物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤、前記硬化促進剤の融点または軟化点以上の温度にならないように加圧して樹脂成形体を成形する成形工程を有し、前記硬化促進剤と、前記エポキシ樹脂及び前記硬化剤とを含む混合物を、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤及び前記硬化促進剤の融点又は軟化点以上に加熱する工程を経ずに前記成形体を得ることを特徴とする樹脂成形体の製造方法である。

[0025] また、微粉碎された硬化促進剤と、相溶することなく、かつエポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度にならないように分散混合して樹脂組成物を得る混合工程と、樹脂組成物を加熱することなく、かつエポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度にならないように加圧して成形体を成形する成形工程とにより作製することにより、硬化促進剤とエポキシ樹脂及び硬化剤とを含む混合物をエポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点に加熱する工程を経ずに成形体を得ることができるため、硬化促進剤の種類にかかわらず、室温での長期保存性に優れ、かつ成形性（特に流動性）、硬化性は既存の製造方法によって得られる封止成形体と同等のものを得ることができる。これにより、成形体を成形するまでに長時間を要する場合や成形体を成形した後の保管を10℃～-20℃程度の低温で保管する必要がなく、かつ、成形体を成形する前及びトランスファーモールド、コンプレッションモールド等の成形方法により成形する前における10数時間程度の室温戻しの処理も不要とすることができる。

また、硬化促進剤を含む第2組成分を予め粉砕して用いることにより、加熱溶融、混練したり、加熱して樹脂成形体を成形したりせずに、十分な流動性を確保することができる。

[0026] 先ず、樹脂成形体を構成する樹脂組成物の各成分について、詳細に説明を行う。本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に用いられるエポキシ樹脂は、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を指し、例えば、ビフェニル型エポキシ樹脂、フェニレン又はビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキルエポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂、ナフトール型エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂等が挙げられる。保存性及び作業性の観点から、エポキシ樹脂の融点又は軟化点は40℃以上であることが好ましく、50℃以上であることがより好ましい。また、流動性の観点から、エポキシ樹脂の融点又は軟化点は150℃以下であることが好ましく、120℃以下であることがより好ましい。

[0027] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に対するエポキシ樹脂の含有量の下限値は、特に限定されないが、樹脂組成物全体に対して、好ましくは1.5質量%以上、より好ましくは3質量%以上である。一方、エポキシ樹脂の含有量の上限値は、特に限定されないが、樹脂組成物全体に対して、好ましくは20質量%以下、より好ましくは15質量%以下である。

[0028] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に用いられる硬化剤は、1分子内に2個以上のフェノール性水酸基を有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を指し、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、フェニレン又はジフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、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等が挙げられる。保存性及び作業性の観点から、硬化剤の融点又は軟化点は40℃以上であることが好ましく、50℃以上であることがより好ましい。また、流動性の観点から、硬化剤の融点又は軟化点は150℃以下であることが好ましく、120℃以下であることがより

好ましい。

[0029] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に対する硬化剤の含有量の下限値は、特に限定されないが、樹脂組成物全体に対して、好ましくは0.8質量%以上、より好ましくは1.5質量%以上である。一方、硬化剤の含有量の上限値は、特に限定されないが、樹脂組成物全体に対して、好ましくは15質量%以下、より好ましくは12質量%以下である。

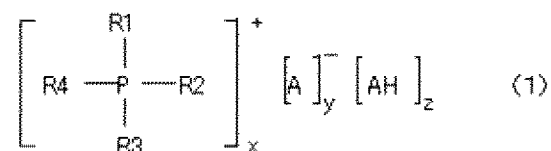
[0030] なお、硬化剤としてのフェノール樹脂と、エポキシ樹脂とは、全エポキシ樹脂のエポキシ基数（EP）と、全フェノール樹脂のフェノール性水酸基数（OH）との当量比（EP）／（OH）が、0.8以上、1.3以下となるように配合することが好ましい。当量比が上記範囲内であると、得られる封止用樹脂を成形する際、十分な硬化特性を得ることができる。

[0031] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に用いられる硬化促進剤としては、エポキシ基とフェノール性水酸基と反応を促進するものであればよく、特に限定されるものではないが、例えば、1,8-ジアザビシクロ（5,4,0）ウンデセン-7、イミダゾールなどの双環式、または単環式アミジンなどの3級アミンや前記アミンの塩酸塩等のアミン系化合物、トリフェニルホスフィン等の有機ホスフィン、テトラ置換ホスホニウム・テトラ置換ボレート、テトラ置換ホスホニウムとフェノール類やカルボン酸類がプロトンを放出して塩となったテトラ置換ホスホニウム・有機酸塩、さらには前記有機酸塩に1個以上の有機酸が付加した分子化合物等のテトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等のリン化合物等が挙げられる。これらのうち、流動性、保存性及び硬化性のバランスの観点から、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物よりなる群から選ばれる少なくとも1種類の化合物がより好ましい。流動性という点を重視する場合にはテトラ置換ホスホニウム化合物が特に好ましく、また封止用樹脂組成物の硬化物熱時低弾性率という点を重視する場合には

ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が特に好ましく、また潜在的硬化性という点を重視する場合にはホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物が特に好ましい。

[0032] テトラ置換ホスホニウム化合物としては、例えば下記一般式（１）で表される化合物などが挙げられる。

[0033] [化1]



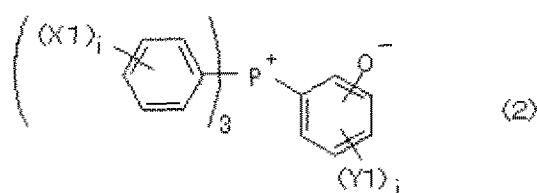
（ただし、上記一般式（１）において、Pはリン原子を表す。R 1、R 2、R 3 及びR 4 は芳香族基又はアルキル基を表す。Aはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも１つ有する芳香族有機酸のアニオンを表す。AHはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも１つ有する芳香族有機酸を表す。x、yは１～３の整数、zは０～３の整数であり、かつx = yである。）

[0034] 一般式（１）で表される化合物において、リン原子に結合するR 1、R 2、R 3 及びR 4 がフェニル基であり、かつAHはヒドロキシル基を芳香環に有する化合物、すなわちフェノール類であり、かつAは該フェノール類のアニオンであるのが好ましい。本発明における前記フェノール類とは、フェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコールなどの単環式フェノール類、ナフトール、ジヒドロキシナフタレン、アントラキノールなどの縮合多環式フェノール類、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールSなどのビスフェノール類、フェニルフェノール、ビフェノールなどの多環式フェノール類などが例示される。

[0035] ホスホベタイン化合物としては、例えば下記一般式（２）で表される化合物などが挙げられる。

[0036]

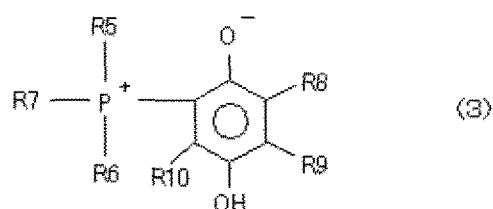
[化2]



(ただし、上記一般式 (2) において、X 1 は炭素数 1 ～ 3 のアルキル基、Y 1 はヒドロキシル基を表す。i は 0 ～ 5 の整数であり、j は 0 ～ 4 の整数である。)

[0037] ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物としては、例えば下記一般式 (3) で表される化合物などが挙げられる。

[0038] [化3]



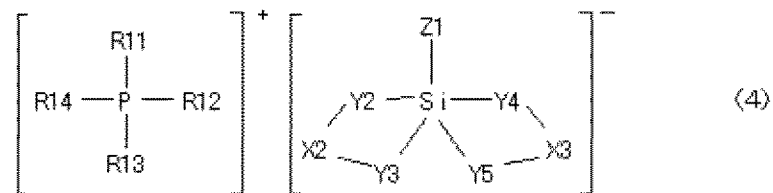
(ただし、上記一般式 (3) において、P はリン原子を表す。R 5、R 6 及び R 7 は炭素数 1 ～ 12 のアルキル基又は炭素数 6 ～ 12 のアリール基を表し、互いに同一であっても異なってもよい。R 8、R 9 及び R 10 は水素原子又は炭素数 1 ～ 12 の炭化水素基を表し、互いに同一であっても異なってもよく、R 8 と R 9 とが結合して環状構造となってもよい。)

[0039] ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物に用い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、トリス (アルキルフェニル) ホスフィン、トリス (アルコキシフェニル) ホスフィン、トリナフチルホスフィン、トリス (ベンジル) ホスフィンなどの芳香環に無置換又はアルキル基、アルコキシ基などの置換基が存在するものが好ましく、アルキル基、アルコキシ基などの置換基としては 1 ～ 6 の炭素数を有するものが挙げられる。入手しやすさの観点からはトリフェニルホスフィンが好ましい。またホス

フィン化合物とキノン化合物との付加物に用いるキノン化合物としては、*o*-ベンゾキノン、*p*-ベンゾキノン、アントラキノン類が挙げられ、中でも *p*-ベンゾキノンが保存安定性の点から好ましい。一般式（３）で表される化合物において、リン原子に結合する R 5、R 6 及び R 7 がフェニル基であり、かつ R 8、R 9 及び R 10 が水素原子である化合物、すなわち 1, 4-ベンゾキノンとトリフェニルホスフィンを付加させた化合物が封止用樹脂組成物の硬化物の熱時弾性率を低く維持できる点で好ましい。

[0040] ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物としては、例えば下記一般式（４）で表される化合物などが挙げられる。

[0041] [化4]



（ただし、上記一般式（４）において、Pはリン原子を表し、Siは珪素原子を表す。R 11、R 12、R 13及びR 14は、それぞれ、芳香環又は複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基を表し、互いに同一であっても異なってもよい。式中X 2は、基Y 2及びY 3と結合する有機基である。式中X 3は、基Y 4及びY 5と結合する有機基である。Y 2及びY 3は、プロトン供与性基がプロトンを放出してなる基を表し、同一分子内の基Y 2及びY 3が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。Y 4及びY 5はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基を表し、同一分子内の基Y 4及びY 5が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。X 2、及びX 3は互いに同一であっても異なってもよく、Y 2、Y 3、Y 4、及びY 5は互いに同一であっても異なってもよい。Z 1は芳香環又は複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基である。）

[0042] 一般式（４）において、R 11、R 12、R 13及びR 14としては、例えば、フェニル基、メチルフェニル基、メトキシフェニル基、ヒドロキシフ

エニル基、ナフチル基、ヒドロキシナフチル基、ベンジル基、メチル基、エチル基、*n*-ブチル基、*n*-オクチル基及びシクロヘキシル基などが挙げられ、これらの中でも、フェニル基、メチルフェニル基、メトキシフェニル基、ヒドロキシフェニル基、ヒドロキシナフチル基などの置換基を有する芳香族基もしくは無置換の芳香族基がより好ましい。

[0043] また、一般式(4)において、 X_2 は、 Y_2 及び Y_3 と結合する有機基である。同様に、 X_3 は、基 Y_4 及び Y_5 と結合する有機基である。 Y_2 及び Y_3 はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基であり、同一分子内の基 Y_2 及び Y_3 が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。同様に Y_4 及び Y_5 はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基であり、同一分子内の基 Y_4 及び Y_5 が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。基 X_2 及び X_3 は互いに同一であっても異なってもよく、基 Y_2 、 Y_3 、 Y_4 、及び Y_5 は互いに同一であっても異なってもよい。このような一般式(4)中の $-Y_2-X_2-Y_3-$ 、及び $-Y_4-X_3-Y_5-$ で表される基は、プロトン供与体が、プロトンを2個放出してなる基で構成されるものであり、プロトン供与体としては、好ましくはカルボキシシル基および／または水酸基を2個以上有する有機酸が例示されるが、より好ましくは芳香環を構成する2個以上の炭素に各々カルボキシシル基または水酸基を有する芳香族化合物、さらに好ましくは芳香環を構成する隣接する少なくとも2個の炭素に水酸基を有する芳香族化合物が例示される。

[0044] 具体的にはカテコール、ピロガロール、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、2,2'-ビフェノール、1,1'-ビ-2-ナフトール、サリチル酸、1-ヒドロキシー-2-ナフトエ酸、3-ヒドロキシー-2-ナフトエ酸、クロラニル酸、タンニン酸、2-ヒドロキシベンジルアルコール、1,2-シクロヘキサジオール、1,2-プロパンジオール及びグリセリンなどが挙げられるが、これらの中でも、カテコール、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がより好ましい。

[0045] また、一般式（４）中のＺ１は、芳香環又は複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基を表し、これらの具体的な例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基及びオクチル基などの脂肪族炭化水素基や、フェニル基、ベンジル基、ナフチル基及びビフェニル基などの芳香族炭化水素基、グリシジルオキシプロピル基、メルカプトプロピル基、アミノプロピル基及びビニル基などの反応性置換基などが挙げられるが、これらの中でも、メチル基、エチル基、フェニル基、ナフチル基及びビフェニル基が一般式（４）の熱安定性を向上させることができるという点で、より好ましい。

[0046] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に対する硬化促進剤の含有量は、樹脂組成物全体に対して、０．１質量％以上、１質量％以下であることが好ましい。硬化促進剤の含有量が上記範囲内であると、十分な流動性、保存性及び硬化性を得ることができる。

[0047] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に用いられる無機質充填材としては、特に限定されないが、当該分野で一般的に用いられる無機質充填材を使用することができる。例えば、タルク、焼成クレー、未焼成クレー、マイカ、ガラス等のケイ酸塩、酸化チタン、アルミナ、溶融球状シリカ、溶融破碎シリカ、結晶シリカ等のシリカ粉末等の酸化物、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ハイドロタルサイト等の炭酸塩、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム等の水酸化物、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、亜硫酸カルシウム等の硫酸塩または亜硫酸塩、ホウ酸亜鉛、メタホウ酸バリウム、ホウ酸アルミニウム、ホウ酸カルシウム、ホウ酸ナトリウム等のホウ酸塩、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、窒化ケイ素等の窒化物等を挙げることができる。無機質充填材は単独でも混合して使用してもよい。これらの中でも溶融球状シリカ、溶融破碎シリカ、結晶シリカ等のシリカ粉末が好ましく、特に溶融球状シリカが好ましい。これにより耐熱性、耐湿性、強度等を向上させることができる。無機質充填材の形状は、特に限定されないが、真球状であることが好ましく、かつ粒度分布がブロードであることが好

ましい。これにより流動性を特に向上させることができる。

[0048] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に対する無機質充填材の含有量の下限値は、特に限定されないが、樹脂組成物全体に対して、好ましくは80質量%以上であり、より好ましくは83質量%以上であり、さらに好ましくは85質量%以上である。含有量の下限値が上記範囲内であると、得られる封止用樹脂組成物の硬化物の吸湿量を抑えることや、強度の低下を低減でき、したがって良好な耐半田クラック性を有する硬化物を得ることができる。また、本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物に対する無機質充填材の含有量の上限値は、樹脂組成物全体に対して、好ましくは93質量%以下であり、より好ましくは91質量%以下であり、さらに好ましくは90質量%以下である。含有量の上限値が上記範囲内であると、得られる樹脂組成物は良好な流動性を有するとともに、良好な成形性を備える。なお、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムなどの金属水酸化物や、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛などの無機系難燃剤を用いる場合には、これらの無機系難燃剤と上記無機質充填材の合計量を上記範囲内とすることが望ましい。

[0049] 本発明の樹脂成形体を構成する樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤、無機質充填材を含むものであるが、必要によって通常の封止材料に用いられている臭素化エポキシ樹脂、酸化アンチモン、燐酸エステル、ホスファゼン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の難燃剤；ハイドロタルサイト等のイオン捕捉剤；カーボンブラック、ベンガラ、酸化チタン等の着色剤；カルナバワックスなどの天然ワックス、ポリエチレンワックス等の合成ワックス、ステアリン酸やステアリン酸亜鉛等の高級脂肪酸及びその金属塩類若しくはパラフィン等の離型剤；シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力剤；シランカップリング剤等を適宜含んでいてもよい。

[0050] 次に、本発明の樹脂成形体の製造方法について、封止用樹脂タブレットの製造方法を例に、以下に詳細に説明する。

[0051] (混練・破碎工程)

本工程は、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填材を含み、かつ硬化促進

剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る工程である。

[0052] 第1組成分は、全配合成分において硬化促進剤を除く成分からなる。混合、加熱溶融、混練は従来と同様な方法が適用できる。

[0053] 配合した第1組成分を、たとえばミキサー、ジェットミル、ボールミル等を用いて均一に粉碎、混合した後、加熱ロール、ニーダー又は押出機等の混練機を用いて90～120℃程度まで樹脂組成物を加温しながら溶融し混練を行い、混練後の樹脂組成物を冷却、粉碎し、第1粉体を得ることができる。

[0054] (粉碎工程)

粉碎工程には、前述した混練・破碎工程における、エポキシ樹脂、硬化剤、無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練後に粉碎して、第1粉体を得る工程と、本工程における、硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る工程との2つの粉碎工程がある。

[0055] 均一分散の観点から、第1粉体のメディアン径が200μm以下で、かつ粒径500μm以上の粒子の割合が10質量%以下であることが好ましい。第1粉体のメディアン径が上記上限値以下であり、かつ上記特定粒径以上の粒子の割合が上記上限値以下であれば第2粉体との分散が良好となり硬化不良を生じることはない。

[0056] また第2粉体中の硬化促進剤はメディアン径が20μm以下で、かつ粒径50μm以上の粒子の割合が10質量%以下となるように微粉碎することが好ましく、さらにメディアン径が10μm以下で、かつ粒径50μm以上の粒子の割合が5質量%以下となるように微粉碎することがより好ましい。硬化促進剤のメディアン径が上記上限値以下であり、かつ硬化促進剤の上記特定粒径以上の粒子の割合が上記上限値以下となるように微粉碎すれば、硬化促進剤の分散が不十分となり、部分的な反応速度の違いによるボイドや割れが発生したり、反応速度が十分得られないことによる硬化不良が発生したり

、部分的な反応の進行により流動性が低下したりする恐れが少ない。なお、硬化促進剤の粒度分布は、市販のレーザー式粒度分布計（例えば、（株）島津製作所製、SALD-7000等）を用いて測定することができる。

[0057] 粉砕工程は、圧縮、衝撃、剪断、摩擦からなる群から選ばれる少なくとも1種類の外力により粉砕を行うことができる。より具体的には、例えば、クリプトロンゼプロス（アーステクニカ社製）；ウイングミル（三庄インダストリー社製）；マイティーミル（三庄インダストリー社製）；ジェットミル等の気流式粉砕機；振動ボールミル、連続式回転ボールミル、バッチ式ボールミル等のボールミル；パルペライザー；ハンマーミル；遊星ポットミル等のポットミル；ローラーミル等の粉砕機が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上のものを組み合わせて用いることができ、また前記外力は常温のままでも、冷却手段や冷凍等の手段と併用しても構わない。

[0058] 混練・破碎工程における冷却後の樹脂組成物の粉砕には、これらの中でも、クリプトロンゼプロス、ウイングミルおよびマイティーミルが好ましく、クリプトロンゼプロスおよびウイングミルがより好ましい。これにより、第1粉体の大きさを、前述したような範囲内に容易に設定することができる。また、好ましい態様であるエポキシ樹脂および硬化剤の融点又は軟化点以上の温度になることなく、第1の粉体を得ることができる。

[0059] また、本工程における第2組成分の粉砕には、これらの中でも、ジェットミル、ボールミル、ハンマーミル及びポットミルが好ましく、特にジェットミルが好ましい。これにより、特に硬化促進剤を効率良く微粉砕することができるとともに、第2粉体の大きさを、前述したような範囲内に容易に設定することができる。また、好ましい態様である硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度になることなく、第2の粉体を得ることができる。

[0060] ところで、上述した、ウイングミル（三庄インダストリー社製）およびマイティーミル（三庄インダストリー社製）は、衝撃により、混練物を複数の粉砕刃で微粉砕して、第1粉体を得る粉砕機である。

[0061] また、クリプトロンゼプロス（アーステクニカ社製）は、剪断と摩砕とに

より、混練物をローターとライナーとの間で、微粉碎して、第1粉体を得る粉碎機であり、図2に示すように、ケーシング8と、複数の溝を備えるローター1と、ローター1を回転させるためのモータ5とを有する。

[0062] ケーシング8は、その下部と上部とにそれぞれ設けられた吸気口3と排気口4とを有し、その内壁の中心部には、複数の溝を備えるステータ2を有している。

[0063] また、ローター1は、ケーシング8のほぼ中心部に配置されており、これにより、ステータ2とローター1との間で画成される空間により、混練物が破碎される破碎領域6が形成される。

[0064] このローター1は、モータ5の駆動により、回転可能なように構成されており、ローター1の回転時に、破碎領域6に混練物を供給することで、剪断と摩砕とにより、混練物が微粉碎されて第1粉体が得られる。

[0065] なお、破碎領域6への混練物の供給は、エアに乗せた混練物を吸気口3から供給し、エアに乗せた第1粉体を排気口4から排出する構成とすることで、吸気口3からの混練物が破碎領域6に供給されることにより行われる。また、このエアを、冷却されたものとするので、混練物が破碎される際に発生する熱により、得られる第1粉体が加熱されるのを的確に抑制または防止することができる。

[0066] さらに、本装置では、ケーシング8の外周部には、冷却ジャケット7が設けられているため、この冷却ジャケット7に冷却液を供給することによっても、前記熱により第1粉体が加熱されるのをよりの確に抑制または防止することができる。

[0067] このように、クリプトロンゼロスは、冷却機構を2つ有しているため、上述した第1粉体を得る際の温度の制御を、より優れた精度で行うことができる。

[0068] なお、硬化促進剤を含む第2組成分を微粉碎するのに、ジェットミルを用いる場合は、その粉碎条件は特に限定されないが、空気圧0.5～1.0 MPaが好ましく、特に0.6～0.8 MPaが好ましい。第2組成分の供給

速度は、特に限定されないが、 $1 \sim 100 \text{ kg/h}$ が好ましく、特に $3 \sim 50 \text{ kg/h}$ が好ましい。

[0069] また、樹脂組成物が離型剤をさらに含んでおり、第2組成分中に硬化促進剤の他に、この離型剤の一部が含まれていてもよい。すなわち、硬化促進剤に離型剤の一部（微量）を添加して硬化促進剤の微粉碎を行うようにしてもよい。これにより、用いる硬化促進剤の融点が比較的低い場合であっても、第2粉体を得る粉碎工程において、粉碎機の壁面等への硬化促進剤の付着を防止することができるため、粉碎工程における作業性が向上するとともに、第2粉体を硬化促進剤単独に比べて増量できるため、後の第1粉体との混合時に分散性が向上する。

[0070] さらに、第1組成分に含まれる無機質充填材の一部が、第2組成分中に硬化促進剤の他に含まれていてもよい。すなわち、硬化促進剤に無機質充填材の一部（微量）を添加して硬化促進剤の微粉碎を行うようにしてもよい。これにより、上述した離型剤を添加する場合と同様の効果や、増量効果、さらには硬化促進剤のような有機成分に比べ比重が重く、容易には溶融しない無機質充填材を含むことで、無機質充填材と硬化促進剤が衝突した際に効率的に硬化促進剤が微粒化できる効果を得ることができる。

[0071] また、第1組成分に含まれるエポキシ樹脂および／または硬化剤の一部が、第2組成分中に硬化促進剤の他に含まれていてもよい。すなわち、硬化促進剤にエポキシ樹脂および硬化剤のうちのいずれか一方の一部（微量）を添加して硬化促進剤の微粉碎を行うようにしてもよい。これにより、次工程である混合工程において、第1粉体と第2粉体とをより均一に分散混合することができる。

[0072] なお、第2組成分中に硬化促進剤の他に、その一部が含まれていてもよい各成分は、硬化促進剤100質量部に対し、1質量部以上、3000質量部以下であるのが好ましく、3質量部以上、2000質量部以下であるのがより好ましい。

[0073] また、本発明では粉碎機を用いて第1粉体または第2粉体を得る際の温度

は、それぞれ、粉砕物を粉砕して第1粉体または第2粉体が得られた直後の各粉体の温度である。

[0074] (混合工程)

混合工程で、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填材を含む第1組成分を溶融混練後に粉砕して得た第1粉体と、硬化促進剤を含む第2組成分を粉砕して得た第2粉体を分散混合する方法としては、羽根回転式ミキサ、ボールミル、リボンプレンダー等の回転式混合機及びV型混合機、ロッキングミル等の分散運動式混合機からなる群より選ばれる少なくとも1種類の混合機を用いることができる。これにより、第1粉体と第2粉体を均一に分散混合することができる。

[0075] また、混合工程は、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填材を含み、かつ硬化促進剤を含まない第1組成分を溶融混練後に粉砕して第1粉体を得る際に第2粉体を同時に添加混合することもできる。これにより各成分の均一分散性を向上させることができる。また、この場合、第1組成分の粉砕工程と第1粉体と第2粉体の混合工程とを一工程とすることができ、工程の効率を向上させることができる。

[0076] 第1粉体作製時に第2粉体を同時に分散配合するには、粉砕機能を有し、かつ分散混合機能も有する粉砕機、より具体的には、例えば、ジェットミル、振動ボールミル、連続式回転ボールミル、バッチ式ボールミル等のボールミル、パルペライザー、ハンマーミル、遊星ポットミル等のポットミル、ローラーミル等の粉砕機を用いることができる。これらの中でも、ジェットミル、ボールミル、ハンマーミル及びポットミルが好ましく、特にジェットミルが好ましい。これにより、溶融混練後のエポキシ樹脂及び硬化剤、無機質充填材の混練物を効率良く粉末化するとともに、硬化促進剤を第1粉体に均一に分散混合することができる。

[0077] かかる方法により第1粉体と第2粉体とが混合された樹脂組成物をえることで、互いに樹脂組成物中において分散し、さらに、第2粉体が、第1粉体の表面にほぼ均一に付着している状態となる。

[0078] したがって、第1粉体および第2粉体に含まれる、エポキシ樹脂および硬化剤と、硬化促進剤とが接触してしまうのを第1粉体と第2粉体とが接触する接触点のみに限定することができる。そのため、樹脂組成物の保存時において、硬化促進剤（触媒）が存在することに起因するポキシ樹脂と硬化剤との反応の進行を的確に抑制することができる。その結果、第1粉体と第2粉体との混合物である樹脂組成物の室温保管が実現可能となる。

[0079] さらに、一般に、粉体の混合においては、粒子同士のぶつかり合い等により発熱し、被混合物の温度が上昇することとなるが、本発明においては、被混合物の温度が、エポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度にならないように、粒子同士のぶつかり合い等による発熱が起こり難い混合機を用いたり、温度調節を行ったりすることが望ましい。これにより、エポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の種類にかかわらず、室温での長期保存性に優れ、かつ成形性（特に流動性）、硬化性に優れた封止用樹脂タブレットを得ることができる。粒子同士のぶつかり合い等による発熱が起こり難い混合機としては、例えば、V型混合機等が挙げられる。また、温度調節を行う方法としては特に限定するものではないが、例えば、被混合物に冷風等の冷却媒体を供給する等、直接的な冷却方法、あるいは、混合機の容器を冷却液、冷風等の冷却媒体で冷却する等、間接的な冷却方法が挙げられる。温度調節を容易に行うことができる混合機としては、例えば、羽根回転式ミキサ等が挙げられる。例えば、混合機として羽根回転式ミキサを用い、温度調節せずにエポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材を含む樹脂組成物を10分間混合した場合における被混合物の温度は30℃程度まで上昇するところ、15℃の冷水により容器を冷却した場合には、被混合物の温度を25℃程度に止めることができる。

[0080] （成形工程）

成形工程は、混合工程によって得られた樹脂組成物を加圧して、例えばタブレット状に成形する工程である。これによって保管、輸送、成形作業を容易にすることができる。

- [0081] 混合工程によって得られた樹脂組成物を加圧してタブレット状に成形する方法としては、例えば、顧客の要求に合わせたタブレットのサイズ（径、高さ、重量）の金型に投入し、圧縮成形機を使用して圧縮率80～95%で圧縮成形する方法等が挙げられる。タブレットのサイズ等は、特に限定されないが、具体的には外径Dが20mm以下で、外径Dと長さLとの比 L/D が1以上である場合；外径Dが20mm以上で、外径Dと長さLとの比 L/D が1以下である場合等の形状が挙げられる。
- [0082] 一般に、粉体を加圧してタブレット状に成形する場合においては、得られるタブレットの形状保持性や作業性の観点から加熱を行う場合があった。また、金属等の不純物の混入が少ない半導体封止用樹脂タブレットを提供することを目的として、実質的に混合粉体を溶融混練する工程を経ずにタブレット状に成形することが開示された特開2006-187873においては、所定の流動性を得るために、80～130℃程度まで加熱を行ってタブレット状に成形することが必要であった。しかしながら、本発明においてタブレット状に成形する際は、室温での長期保存性を低下させないため、加熱は行わない。本発明においては、硬化促進剤を微粉砕する粉砕工程を有しているため、加熱を行わずにタブレット状に成形しても、流動性が不足することがない。
- [0083] また、積極的に加熱を行わない場合であっても、連続でタブレット状に成形を行うと、摺動等により発熱し、タブレットの温度が上昇することとなるが、本発明においては、タブレットの温度が、エポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点以上の温度にならないように、温度調節を行うことが望ましい。これにより、エポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の種類にかかわらず、室温での長期保存性に優れ、かつ成形性（特に流動性）、硬化性に優れた封止用樹脂タブレットを得ることができる。温度調節を行う方法としては特に限定するものではないが、例えば、タブレット成形用金型を冷却液、冷風等の冷却媒体で冷却する等の間接的な冷却方法が挙げられる。例えば、温度調節せずにエポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機質充填材

を含む樹脂組成物を1時間連続でタブレット状に成形した場合におけるタブレット金型の温度は40℃程度まで上昇するところ、15℃の冷水により容器を冷却した場合には、タブレット金型の温度を25℃程度に止めることができる。

[0084] 上述のとおり、本発明の封止用樹脂タブレットの製造方法は、硬化促進剤と、エポキシ樹脂及び硬化剤とを、含む混合物をエポキシ樹脂、硬化剤及び硬化促進剤の融点又は軟化点以上に加熱する工程を経ずに樹脂タブレットを得るものであるため、室温でも反応を抑制することができ、反応を防止するための低温保管を必要とせず、使用前に低温から室温に戻す準備が不要となり、使用して余っても特性変化しにくいため次回そのまま使用することが可能である。

[0085] なお、本発明の樹脂成形体の製造方法について、封止用樹脂タブレットの製造方法を具体的に挙げて説明したが、本発明はこれに限定されず、封止用ではない一般のエポキシ樹脂成形材料等にも適用可能である。また、樹脂成形体の形状についても、タブレット状のもの以外に、例えば、シート状、短冊状、ペレット状のもの等にも適用可能である。

[0086] 本発明の樹脂組成物及び樹脂成形体（封止用樹脂タブレット）は、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管後の高化式粘度の粘度上昇率が20%以下であることが好ましく、10%以下であることがより好ましい。このような樹脂組成物又は樹脂成形体は、上述した製造方法によって得ることができる。

[0087] 次に、本発明の電子部品装置の製造方法について、樹脂成形体として封止用樹脂タブレットを用いる場合を例に、詳細に説明する。本発明の封止用樹脂タブレットを用いて電子部品装置を製造する方法としては、例えば、素子を搭載したリードフレーム又は回路基板などを金型キャビティ内に設置した後、封止用樹脂タブレットをトランスファーモールド、コンプレッションモールドなどの成形方法で成形、硬化させることにより、この素子を封止する方法が挙げられる。

[0088] 封止される素子としては、例えば、集積回路、大規模集積回路、トランジスタ、サイリスタ、ダイオード、固体撮像素子などが挙げられるが、これらに限定されない。

[0089] 得られる電子部品装置の形態としては、例えば、デュアル・インライン・パッケージ（D I P）、プラスチック・リード付きチップ・キャリア（P L C C）、クワッド・フラット・パッケージ（Q F P）、ロー・プロファイル・クワッド・フラット・パッケージ（L Q F P）、スモール・アウトライン・パッケージ（S O P）、スモール・アウトライン・Jリード・パッケージ（S O J）、薄型スモール・アウトライン・パッケージ（T S O P）、薄型クワッド・フラット・パッケージ（T Q F P）、テープ・キャリア・パッケージ（T C P）、ボール・グリッド・アレイ（B G A）、チップ・サイズ・パッケージ（C S P）などが挙げられるが、これらに限定されない。

[0090] 封止用樹脂組成物のトランスファーモールドなどの成形方法により素子が封止された電子部品装置は、そのまま、あるいは80℃から200℃程度の温度で、10分から10時間程度の時間をかけてこの樹脂組成物を完全硬化させた後、電子機器などに搭載される。

[0091] なお、本発明の電子部品装置の製造方法について、封止用樹脂タブレットを用いた製造方法を具体的に挙げて説明したが、本発明はこれに限定されず、タブレット状のもの以外に、例えば、シート状、短冊状、ペレット状のもの等、他の形状の封止用樹脂成形体を用いることも可能である。

[0092] また、微粉碎された硬化促進剤とエポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填材とを分散混合した封止用樹脂組成物を、成形体に成形せずに例えば圧縮成形でそのまま用いることもできる。すなわち、前記成型工程を省略して、樹脂成形体を成形することなく、封止用樹脂組成物を製造することもできる。

実施例

[0093] 以下、本発明を実施例で説明するが、本発明はこれらの実施例の記載に何ら限定されるものではない。配合量の部は質量部を表す。

[0094] 実施例及び比較例で用いた原材料を以下に示す。なお、各原料、第1粉体

、及び第2粉体の粒度分布は、特に記載がなければレーザー式粒度分布計（（株）島津製作所製、SALD-7000）を用いて、屈折率： $D = 1.70 - 1.00i$ の条件にて測定を行った。

[0095] （エポキシ樹脂）

エポキシ樹脂1：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（日本化薬（株）製、NC-3000を、サンプルミルKIIW-1（不二パウダル（株）製）を用いて、粗粉碎したもの。エポキシ当量280 g/eq、軟化点55℃。メディアン径200 μm、粒径200 μm以上の粒子の割合48質量%。）

[0096] （硬化剤）

硬化剤1：ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型樹脂（明和化成（株）製、MEH-7851を、サンプルミルKIIW-1（不二パウダル（株）製）を用いて、粗粉碎したもの。水酸基当量205 g/eq、軟化点65℃。メディアン径160 μm、粒径200 μm以上の粒子の割合33質量%。）

[0097] （硬化促進剤）

硬化促進剤1：下記式（5）で表される1，4-ベンゾキノンとトリフェニルホスフィンを付加させた化合物（融点305℃。メディアン径100 μm、粒径50 μm以上の粒子の割合80質量%。）

[0098] [化5]



[0099] 硬化促進剤2：硬化促進剤1を空気圧0.6 MPa、原料供給速度3 kg/hの条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、PJM200SP）を用いて粉碎を行った。得られた粒子はメディアン径3 μm、粒径50 μm以上の粒子の割合が5%であった。

- [0100] 硬化促進剤 3 : 硬化促進剤 1 を空気圧 1. 0 MP a、原料供給速度 1 k g / h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、P J M 2 0 0 S P）を用いて粉砕を行った。得られた粒子はメディアン径 2 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合が 2 % であった。
- [0101] 硬化促進剤 4 : 硬化促進剤 1 を回転数 6 0 r p m、粉砕時間 6 0 分の条件でポットミル（（株）森田鉄工製、ポットミル II 型）を用いて行った。得られた粒子はメディアン径 1 5 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合が 8 % であった。
- [0102] 硬化促進剤 5 : トリフェニルホスフィン（融点 8 0 °C。メディアン径 7 0 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合 7 0 質量%。）を空気圧 0. 6 MP a、原料供給速度 3 k g / h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、P J M 2 0 0 S P）を用いて粉砕を行った。得られた粒子はメディアン径 3 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合が 5 % であった。
- [0103] 硬化促進剤 6 : 硬化促進剤 1 を 3 質量部と、離型剤 1 を 0. 1 質量部とを空気圧 0. 6 MP a、原料供給速度 3 k g / h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、P J M 2 0 0 S P）を用いて粉砕を行った。得られた粒子はメディアン径 4 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合が 6 % であった。なお、離型剤と硬化促進剤の混合物にて粒度分布を評価した値が硬化促進剤自体の粒度分布の値とみなした。以下の無機質充填材を含まない混合物のデータも同様の計算を行った。
- [0104] 硬化促進剤 7 : 硬化促進剤 1 を 3 質量部と、無機質充填材 1 を 4. 2 5 質量部とを空気圧 0. 6 MP a、原料供給速度 3 k g / h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、P J M 2 0 0 S P）を用いて粉砕を行った。得られた硬化促進剤粒子は、メディアン径 3 μ m、粒径 5 0 μ m 以上の粒子の割合が 5 % であった。なお、硬化促進剤の粒径は粉砕物の粒度分布データから無機質充填材の粒度分布データを減算することで算出した。
- [0105] 硬化促進剤 8 : 硬化促進剤 1 を回転数 6 0 r p m、粉砕時間 4 0 分の条件でポットミル（森田鉄工社製、「ポットミル II 型」）を用いて行った。得ら

れた粒子はメダイア径 $22\mu\text{m}$ 、粒径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が9%であった。

[0106] 硬化促進剤9：硬化促進剤1を3質量部と、エポキシ樹脂1を8質量部とを空圧0.6MPa、原料供給速度 3kg/h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、PJ M200SP）を用いて粉碎を行った。得られた粒子はメダイア径 $6\mu\text{m}$ 、粒径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が7%であった。

[0107] 硬化促進剤10：硬化促進剤1を3質量部と、硬化剤1を5質量部とを空圧0.6MPa、原料供給速度 3kg/h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、PJ M200SP）を用いて粉碎を行った。得られた粒子はメダイア径 $5\mu\text{m}$ 、粒径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が6%であった。

[0108] 硬化促進剤11：硬化促進剤1を3質量部と、硬化剤1を5質量部と無機質充填材1を50質量部とを空圧0.6MPa、原料供給速度 3kg/h の条件でジェットミル（日本ニューマチック（株）製、PJ M200SP）を用いて粉碎を行った。得られた粒子はメダイア径 $3\mu\text{m}$ 、粒径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が5%であった。なお、硬化促進剤11では混合物の粒度分布データから無機質充填材のデータを減算した値を採用した。

[0109] （無機質充填材）
無機質充填材1：溶融球状シリカ（電気化学工業（株）製、FB560、メダイア径 $30\mu\text{m}$ 粒径 $200\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合0質量%。）
[0110] （その他の添加剤）

シラソカッティング剤1：γ-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、KB M-403）
着色剤1：カーボブラック（三菱化学（株）製、#5）
離型剤1：モンタニ酸ワックス（クラリアントジヤパン（株）製、WE4）

[0111] （樹脂タレットの製造）

実施例 1

硬化促進剤 2 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでパルペライザーで粉砕して、第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μ m 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に硬化促進剤 2 を添加して、羽根回転式ミキサで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MPa の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 91%、直径 18 mm、高さ 31.6 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0112] 実施例 2

硬化促進剤 3 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでパルペライザーで粉砕して第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μ m 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に硬化促進剤 3 を添加して、羽根回転式ミキサで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MPa の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 90%、直径 18 mm、高さ 31.8 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0113] 実施例 3

硬化促進剤 4 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでパルペライザーで粉砕して、第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μ m 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に、硬化促進剤 4 を添加して、V ブレンダーで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。

。その後加圧力 2 MP a の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 90%、直径 18 mm、高さ 31.8 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0114] 実施例 4

硬化促進剤 3 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでジェットミル（空気圧 0.5 MP a、原料供給速度 3 kg/h の条件）で粉碎して、第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μm 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に、硬化促進剤 3 を添加して、羽根回転式ミキサで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MP a の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 88%、直径 18 mm、高さ 32.5 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0115] 実施例 5

硬化促進剤 6 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでジェットミル（空気圧 0.5 MP a、原料供給速度 3 kg/h の条件）で粉碎して第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μm 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に、硬化促進剤 6 を添加して、羽根回転式ミキサで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MP a の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 90%、直径 18 mm、高さ 31.8 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高

タブレット温度を表 1 に示した。

[0116] 実施例 6

硬化促進剤 7 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでジェットミル（空気圧 0.5 MPa、原料供給速度 3 kg/h の条件）で粉碎して第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μm 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に、硬化促進剤 7 を添加して、羽根回転式ミキサで 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MPa の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 90%、直径 18 mm、高さ 31.8 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0117] 実施例 7

硬化促進剤 2 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでパルペライザーで粉碎して、第 1 粉体を得た。第 1 粉体のメディアン径及び 500 μm 以上の粒子の割合を表 1 に示した。第 1 粉体に硬化促進剤 2 を添加して、V 型混合機（V ブレンダー）で 5 分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力 2 MPa の条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製 S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率 90%、直径 18 mm、高さ 31.8 mm、重量 14.5 g の樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表 1 に示した。

[0118] 実施例 8

硬化促進剤 5 を除く、表 1 に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却し、次いでジェットミル（空気圧 0.5 MPa、原料供給速度 3 kg/h の条件）で粉

砕して、第1粉体を得た。第1粉体のメディアン径及び500 μ m以上の粒子の割合を表1に示した。第1粉体に硬化促進剤5を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。その後加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

に示した。

[0119] 実施例9

硬化促進剤2を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、クリプトロンゼプロス（アーステクニカ社製、「KCM-50」）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。前記クリプトロンゼプロスは粉砕処理能力がジェットミルやパルペライザーより高く、さらに粉砕物の温度が上昇しないより好ましい態様を示している。なお、第1粉体のメディアン径および500 μ m以上の粒子の割合を表1に示した。

[0120] 次に、第1粉体に第2粉体としての硬化促進剤2を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂原料粉末（樹脂組成物）を得た。

[0121] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂原料粉末をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0122] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0123] 実施例10

硬化促進剤2を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で

混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、ウイングミル（三庄インダストリー社製、「WM-30」）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。前記ウイングミルは粉砕処理能力がジェットミルやパルペライザーより高く、さらに粉砕物の温度が上昇しないより好ましい態様を示している。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0124] 次に、第1粉体に第2粉体としての硬化促進剤2を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂原料粉末（樹脂組成物）を得た。

[0125] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂原料粉末をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0126] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0127] 実施例11

硬化促進剤8を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、パルペライザーで混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0128] 次に、第1粉体に、第2粉体としての硬化促進剤8を添加して、Vブレンダーで5分間回転させ分散混合して、樹脂組成物を得た。

[0129] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0130] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂

脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0131] 実施例12

硬化促進剤2を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、ジェットミル（空気圧0.5MPa、原料供給速度10kg/hの条件）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0132] 次に、第1粉体に、第2粉体としての硬化促進剤2を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂組成物を得た。

[0133] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0134] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0135] 実施例13

硬化促進剤9を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、パルペライザー（空気圧0.5MPa、原料供給速度10kg/hの条件）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0136] 次に、第1粉体に、第2粉体としての硬化促進剤9を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂組成物を得た。

[0137] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0138] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0139] 実施例14

硬化促進剤10を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、パルペライザー（空気圧0.5MPa、原料供給速度10kg/hの条件）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0140] 次に、第1粉体に、第2粉体としての硬化促進剤10を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂組成物を得た。

[0141] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0142] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0143] 実施例15

硬化促進剤11を除く、表1に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、冷却して混練物を得た。次いで、パルペライザー（空気圧0.5MPa、原料供給速度10kg/hの条件）で混練物を粉砕することにより、第1粉体を得た。なお、第1粉体のメディアン径および500μm以上の粒子の割合を表1に示した。

[0144] 次に、第1粉体に、第2粉体としての硬化促進剤11を添加して、羽根回転式ミキサで5分間回転させ分散混合することにより、樹脂組成物を得た。

[0145] 次に、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ社製、「S-20A」）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成

形し、圧縮率90%、直径18mm、高さ31.8mm、重量14.5gの封止用樹脂タブレットを得た。

[0146] なお、分散混合時における樹脂原料粉末の最高混合物温度および封止用樹脂タブレット成形時における最高タブレット温度を表1に示した。

[0147] 比較例1

硬化促進剤1を除く、表2に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、その後冷却し、次いでパルペライザーで粉砕して第1粉体を得た。第1粉体のメディアン径及び500μm以上の粒子の割合を表1に示した。第1粉体に、硬化促進剤1を添加して羽根回転式ミキサで分散混合して、樹脂組成物を得た。その後、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表2に示した。

[0148] 比較例2

硬化促進剤3を除く、表2に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、その後冷却し、次いで粗粉砕して第1粉体を得た。第1粉体のメディアン径及び500μm以上の粒子の割合を表1に示した。第1粉体に、硬化促進剤3を添加して羽根回転式ミキサで分散混合して、樹脂組成物を得た。その後、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの樹脂タブレットを得た。分散混合時における最高混合物温度及びタブレット成形時における最高タブレット温度を表2に示した。

[0149] 比較例3

硬化促進剤1及び、表2に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混

合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、その後冷却し、次いで粗粉碎してメディアン径720μm、500μm以上の粒子の割合が70質量%の樹脂組成物を得た。その後、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの樹脂タブレットを得た。タブレット成形時における最高タブレット温度を表2に示した。

[0150] 比較例4

硬化促進剤3、及び表2に記載の各成分を羽根回転式ミキサにて室温で混合し、80℃～100℃の加熱ロールで溶融混練を行い、その後冷却し、次いで粗粉碎してメディアン径750μm、500μm以上の粒子の割合が70質量%の樹脂組成物を得た。その後、加圧力2MPaの条件でタブレットマシン（三菱マテリアルテクノ（株）製S-20A）を用いて、得られた樹脂組成物をタブレット状に成形し、圧縮率91%、直径18mm、高さ31.6mm、重量14.5gの樹脂タブレットを得た。タブレット成形時における最高タブレット温度を表2に示した。

[0151] 得られた樹脂タブレットを、以下の方法で評価した。結果を表1、2に示す。

評価方法

流動性（高化式粘度）：高化式フローテスター（（株）島津製作所・製CFT-500）を用いて、175℃、圧力10kgf/cm²、キャピラリー径0.5mmで測定した。単位はPa・s。判定基準は粘度値が20Pa・s以下のものを○、20Pa・sを超えるものを×とした。

[0152] 30℃長期保存性：得られた樹脂タブレットを30℃、相対湿度50%RHで30日間保管した後においても、上記の流動性の評価と同様にして高化式粘度を測定し、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管する前の高化式粘度の値（初期値）に対する、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管した後の高化式粘度の上昇値を百分率で表し、粘度上昇率とした。単位は

%。判定基準は、粘度上昇率が20%以下のものを○、20%を超えるものを×とした。

[0153] 硬化性：175℃に制御された熱板上に、樹脂タブレットを載せ、スパチュラで約1回／sec. のストロークで練る。樹脂タブレットが熱により溶解してから硬化するまでの時間を測定し、ゲルタイムとした。単位は秒。判定基準は、ゲルタイムが50秒以下のものを○、50秒を超えるものを×とした。

[0154] 成形後外観：低圧トランスファー成形機（コータキ精機株式会社製、KTS-30）を用いて、金型温度175℃、注入圧力9.8MPa、硬化時間120sで直径50mm、厚さ3mmの円盤状試験片を成形し、成形品の外観を目視で観察した。合計10個観察を行い、ボイドや割れの発生がなかったものを○、ボイドや割れの発生が1個以上、3個未満のものを△、ボイドや割れの発生が3個以上のものを×とした。

[0155]

[表1]

		実 施 例															
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	
樹脂原料粉末の配合 (質量部)	エポキシ樹脂1	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	
	硬化剤1	52	52	52	52	52	52	52	52	52	52	52	52	52	47	47	
	硬化促進剤1																
	硬化促進剤2	3						3		3	3		3				
	硬化促進剤3		3		3												
	硬化促進剤4			3													
	硬化促進剤5								3								
	硬化促進剤6					3.1											
	硬化促進剤7					7.25											
	硬化促進剤8											3					
	硬化促進剤9													11			
	硬化促進剤10														8		
	硬化促進剤11															58	
	無機質充填材1	850	850	850	850	850	845.75	850	850	850	850	850	850	850	850	800	
シランカップリング剤1	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3		
着色剤1	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3		
離型剤1	1	1	1	1	0.9	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1		
第2組成分の微粉砕方法と硬化促進剤の粒度	粉砕時添加	シリカ						○								○	
		離型剤					○										
		エポキシ樹脂												○			
		硬化剤													○	○	
		添加なし	○	○	○	○			○	○	○	○	○	○			
	粉砕方法	ジェットミル粉砕(条件1)	○				○	○	○	○	○		○	○	○	○	
		ジェットミル粉砕(条件2)		○		○											
		ポットミル粉砕			○							○					
		微粉化なし															
		原料供給速度(kg/h)	3	1	-	1	3	3	3	3	3	-	3	3	3	3	
粒度	粉砕時における組成成分の最高温度[°C]	28	31	26	31	28	29	28	28	28	28	26	28	28	28		
	メディアン径[μm]	3	2	15	2	4	3	3	3	3	22	3	6	5	3		
	50μm以上の粒子の割合[質量%]	5	2	8	2	8	5	5	5	5	8	5	7	6	5		
	原料供給速度(kg/h)	3	3	1	3	3	3	3	3	30	30	3	10	3	3		
	微粉砕時における組成成分の最高温度[°C]	34	34	34	32	32	32	34	33	10	22	34	30	34	34		
第1組成分の加熱湿練品の微粉砕方法と粒度	微粉砕方法	メディアン径[μm]	171	158	170	132	140	123	171	125	185	110	170	230	165	159	
		500μm以上の粒子の割合[質量%]	5	5	5	2	2	2	5	2	5	1	5	9	5	6	
		クリプトロンゼブロス粉砕										○					
		ウイングミル粉砕											○				
		ジェットミル粉砕				○	○	○		○				○			
樹脂組成物の製造方法	分散混合	パルペライザー粉砕	○	○	○					○			○		○	○	
		微粉化なし(粗粉砕)															
		原料供給速度(kg/h)	3	3	1	3	3	3	3	3	30	30	3	10	3	3	
		微粉砕時における組成成分の最高温度[°C]	34	34	34	32	32	32	34	33	10	22	34	30	34	34	
		メディアン径[μm]	171	158	170	132	140	123	171	125	185	110	170	230	165	159	
樹脂組成物の製造方法	分散混合	500μm以上の粒子の割合[質量%]	5	5	5	2	2	2	5	2	5	1	5	9	5	6	
		促進剤添加	硬化促進剤を加熱湿練品に後添加	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		分散混合	硬化促進剤を同時に加熱湿練	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	○	○
		羽根回転式ミキサにて分散混合	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	○	○	○
		V型混合機にて分散混合								○							
タブレット成形時における最高混合物温度[°C]	分散混合時における最高混合物温度[°C]	28	28	28	29	28	28	29	28	28	28	28	28	28	28	28	
	タブレット成形時における最高タブレット温度[°C]	26	27	26	27	26	26	27	27	26	26	26	26	26	26	26	
評価結果	流動性(高化式粘度)	粘度[Pa・s]	11	12	12	10	10	11	11	10	11	11	12	11	11	11	
		判定結果	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	30°C長期保存性(30°C,50%RH,30日保管)	粘度[Pa・s]	11	12	12	9	9	12	11	10	11	11	12	10	10	10	10
		粘度上昇率(%)	0	0	0	-10	-10	9	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	硬化性	判定結果	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		ゲルタイム(175°C)[秒]	42	36	59	38	40	45	42	43	44	36	59	58	44	41	43
成形後外観	判定結果	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	

[0156]

[表2]

表2

			比較例			
			1	2	3	4
樹脂組成物の配合 (質量部)	エポキシ樹脂1		78	78	78	78
	硬化剤1		52	52	52	52
	硬化促進剤1		3		3	
	硬化促進剤2					
	硬化促進剤3			3		3
	硬化促進剤4					
	硬化促進剤5					
	硬化促進剤6					
	硬化促進剤7					
	無機質充填材1		850	850	850	850
	シランカップリング剤1		3	3	3	3
	着色剤1		3	3	3	3
	離型剤1		1	1	1	1
第2組成分の微粉碎方法と硬化促進剤の粒度	粉碎時添加	シリカ				
		離型剤				
		添加なし		○		○
	粉碎方法	ジェットミル粉碎(条件1)		○		○
		ジェットミル粉碎(条件2)				
		ポットミル粉碎				
		微粉化なし	○		○	
	原料供給速度(kg/h)		-	3	-	3
	粉碎時における組成分の最高温度[°C]		-	28	-	28
粒度	メディアン径[μm]	100	3	100	3	
	50μm以上の粒子の割合[質量%]	80	5	80	5	
第1組成分の加熱混練品の微粉碎方法と粒度	微粉碎方法	クリプトロンゼプロス粉碎				
		ウイングミル粉碎				
		ジェットミル粉碎				
		バルベライザー粉碎	○			
		微粉化なし(粗粉碎)		○		
	原料供給速度(kg/h)		5	-	-	-
	微粉碎時における組成分の最高温度[°C]		34	-	-	-
	粒度	メディアン径[μm]	182	750		
		500μm以上の粒子の割合[質量%]	5	70		
樹脂組成物の製造方法	促進剤添加	硬化促進剤を加熱混練品に後添加	○	○		
		硬化促進剤を同時に加熱混練			○	○
	分散混合	羽根回転式ミキサにて分散混合	○	○		
		V型混合機にて分散混合				
	分散混合時における最高混合物温度[°C]		28	28	28	28
タブレット成形時における最高タブレット温度[°C]			27	26	27	27
評価結果	流動性(高化式粘度)	粘度[Pa・s]	10	11	13	13
		判定結果	○	○	○	○
	30°C長期保存性 (30°C,50%RH,30日保管)	粘度[Pa・s]	10	11	18	26
		粘度上昇率(%)	0	0	38	100
		判定結果	○	○	×	×
	硬化性	ゲルタイム(175°C)[秒]	270	46	48	32
		判定結果	×	○	○	○
	成形後外観		×	×	○	○

[0157] 実施例 1 ～ 15 は、本願発明の製造方法であり、粉碎工程における粉碎機の種類及び粉碎条件、粉末化工程における粉碎機の種類及び被粉碎物の組み合わせ、混合工程における混合機の種類、ならびに、硬化促進剤の種類を変更したものを含むものであるが、いずれにおいても、流動性、30℃長期保存性、硬化性及び成形後外観に優れる結果が得られた。

[0158] 一方、硬化促進剤の微粉碎を行わなかった点以外は、実施例 1 と同様にして樹脂組成物を得た比較例 1 では硬化性及び成形後外観が著しく劣る結果となった。硬化促進剤以外を加熱混練した第 1 粉体の粒径が大きい比較例 2 では成形後外観が著しく劣る結果となった。また、硬化促進剤とともに、加熱混練して樹脂組成物を得た従来方法による比較例 3 では、30℃長期保存性に劣り、冷蔵保管が必要であった。また、さらに硬化促進剤を微粉碎して比較例 3 と同様にして樹脂組成物を得た比較例 4 は、硬化性の向上はみとめられたが、30℃長期保存性は最も劣る結果となった。

産業上の利用可能性

[0159] 本発明は、室温での長期保存性に優れた封止用樹脂タブレットの製造方法ならびにそれを用いた電子部品装置を提供するものである。また、本発明の樹脂成形体の製造方法は、封止用ではない一般のエポキシ樹脂組成物等の熱硬化性樹脂成形材料にも適用可能である。したがって、産業上の利用可能性を有する。

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤および無機質充填材を含む樹脂組成物から構成される樹脂成形体の製造方法であって、
- 前記エポキシ樹脂、前記硬化剤および前記無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と、
- 前記硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、
- 前記第1粉体と前記第2粉体とを、分散混合して樹脂組成物を得る混合工程と、
- 前記樹脂組成物を、加圧して樹脂成形体を成形する成形工程とを有することを特徴とする樹脂成形体の製造方法。
- [請求項2] 前記混合工程において、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤および前記硬化促進剤の融点または軟化点以下の温度とし、
- 前記成形工程において、前記エポキシ樹脂、前記硬化剤および前記硬化促進剤の融点または軟化点以上の温度にならないようにする請求項1に記載の樹脂成形体の製造方法。
- [請求項3] 前記樹脂成形体が封止用樹脂タブレットである請求項1または2に記載の樹脂成形体の製造方法。
- [請求項4] 前記第2粉体中の硬化促進剤のメディアン径が $20\mu\text{m}$ 以下で、粒子径 $50\mu\text{m}$ 以上の粒子の割合が10質量%以下である請求項1ないし3のいずれかに記載の樹脂成形体の製造方法。
- [請求項5] 前記混練・破碎工程は、クリプトロンゼプロス、ウイングミル、マイティーミルからなる群から選ばれる少なくとも1種類の粉碎機を用いて、前記破碎を行う請求項1ないし4のいずれか1項に記載の樹脂成形体の製造方法。
- [請求項6] 前記粉碎工程は、ジェットミル、ボールミル、ハンマーミル、ポットミルからなる群から選ばれる少なくとも1種類の粉碎機を用いて行

う請求項 1 ないし 5 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項7] 前記樹脂組成物が離型剤をさらに含むものであり、前記第 2 組成成分が前記硬化促進剤の他に、前記離型剤の一部を含むことを特徴とする請求項 1 ないし 6 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項8] 前記第 2 組成成分が前記硬化促進剤の他に、前記無機質充填材の一部を含むことを特徴とする請求項 1 ないし 7 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項9] 前記第 2 組成成分が前記硬化促進剤の他に、前記エポキシ樹脂および／または前記硬化剤の一部を含むことを特徴とする請求項 1 ないし 8 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項10] 前記第 1 粉体のメディアン径が $200\ \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項 1 ないし 9 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項11] 前記混合工程は、回転式混合機および分散運動式混合機からなる群より選ばれる少なくとも 1 種類の混合機を用いて行うことを特徴とする請求項 1 ないし 10 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項12] 前記硬化促進剤が、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物およびホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物からなる群から選ばれる少なくとも 1 種類の化合物であることを特徴とする請求項 1 ないし 11 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法。

[請求項13] 請求項 1 ないし 12 のいずれか 1 項に記載の樹脂成形体の製造方法により得られる樹脂成形体であって、 30°C 、相対湿度 $50\% \text{RH}$ で 30 日間保管後の高化式粘度の粘度上昇率が 20% 以下であることを特徴とする樹脂成形体。

[請求項14] エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤および無機質充填材を含む樹脂組成物の製造方法であって、

前記エポキシ樹脂、前記硬化剤および前記無機質充填材を含み、かつ前記硬化促進剤を含まない第1組成分を混合、加熱溶融、混練、破碎して第1粉体を得る混練・破碎工程と、

前記硬化促進剤を含む第2組成分を粉碎して第2粉体を得る粉碎工程と、

前記第1粉体と前記第2粉体とを、分散混合して樹脂組成物を得る混合工程とを有することを特徴とする樹脂組成物の製造方法。

[請求項15] 請求項14に記載の樹脂組成物の製造方法により得られる樹脂組成物であって、30℃、相対湿度50%RHで30日間保管後の高化式粘度の粘度上昇率が20%以下であることを特徴とする樹脂組成物。

[請求項16] 請求項13に記載の樹脂成形体を用いて、あるいは、請求項15に記載の樹脂組成物を成形体とすることなくそのまま用いて、半導体素子が封止されてなることを特徴とする電子部品装置。