明　細　書

発明の名称 ： 半導体封止用樹脂組成物、及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、半導体封止用樹脂組成物、及び半導体装置に関するものである。

背景技術

[0002] 半導体装置は、半導体素子の保護、電気絶縁性の確保、ハンドリングの容易化などの目的から、封止が行われ、生産性やコスト、信頼性等に優れることからエポキシ樹脂組成物によるトランスファー成型が主流となっている。電子機器の小型化・軽量化・高性能化という市場の要求に応えるべく、半導体素子の高集積化、半導体装置の小型・高密度化のみならず、表面実装のような新たな接合技術が開発、実用化されてきた。こうした技術動向は、半導体封止用樹脂組成物にも波及し、要求性能は年々高度化、多様化してきている。

たとえば、表面実装に用いられる半田については環境問題を背景とした無鉛半田への切り替えが進められている。無鉛半田の融点は従来の鉛／スズ半田に比べて高く、リフロー実装温度は従来の２２０～２４０℃から、２４０℃～２６０℃へと高くなり、半導体装置内の樹脂クラックや剥離が生じやすく、従来の封止用樹脂組成物では耐半田性が不足する場合がある。

また、従来の封止用樹脂組成物には難燃性を付与する目的から、難燃剤として臭素含有エポキシ樹脂と酸化アンチモンが使用されているが、近年の環境保護、安全性向上の観点からこれらの化合物を撤廃する機運が高まっている。

さらに近年では、自動車や携帯電話などの屋外での使用を前提とした電子機器が普及し、これらの用途では、従来のパソコンや家電製品よりも厳しい環境下での動作信頼性が求められる。特に車載用途においては、必須要求項目のひとつとして高温保管特性が求められ、１５０～１８０℃の高温下で半

導体装置がその動作・機能を維持する必要が有る。

従来の技術としては、ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂、ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂硬化剤とを組み合わせて、高温保管特性と耐半田性を高める手法（特許文献１，２）や、リン酸含有化合物を配合することによって、高温保管特性と耐燃性を高める手法（特許文献３，４）が提案されているものの、これらは耐燃性、連続成形性、耐半田性のバランスが十分とは言い難い場合が有る。以上のように、車載用電子機器の小型化と普及にあたっては、耐燃性・耐半田性・高温保管特性・連続成形性をバランスよく満たす封止用樹脂組成物が求められる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２００７－３１６９１号公報

特許文献2：特開平０６－２１６２８０号公報

特許文献3：特開２００３－２９２７３１号公報

特許文献4：特開２００４－４３６１３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明は、耐燃性、耐半田性、高温保管特性、及び連続成形性のバランスに優れた半導体封止用樹脂組成物、及び当該半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置を提供するものである。

課題を解決するための手段

[0005] このような目的は、下記［１］～［６］に記載の本発明により達成される。

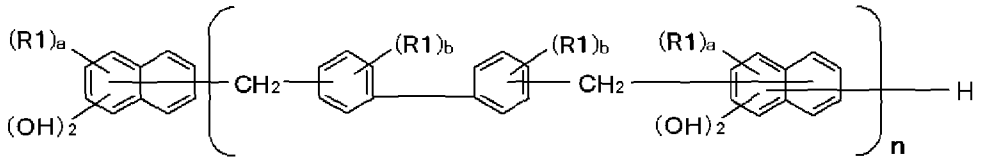
［１］下記一般式（１）で表される成分を含むフェノール樹脂（Ａ）と、

エポキシ樹脂（Ｂ）と、

無機充填剤（Ｃ）と、を含むことを特徴とする半導体封止用樹脂組成物。

[0006]

[化1]

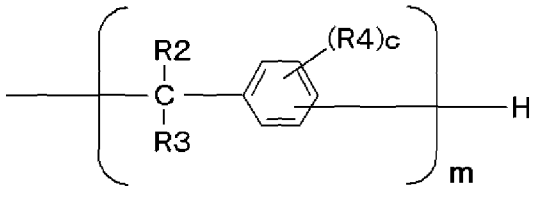


(1)

（一般式（１）において、同一のナフタレン基に結合する２個の水酸基は、ナフタレン環上の異なる炭素原子に結合しており、Ｒ１は、互いに独立して、炭素数１～６０の炭化水素基であり、ａは互いに独立し、０～５の整数、ｂは、互いに独立し０～４の整数である。ｎは１～１０の整数である。）

[0007] ［２］前記フェノール樹脂（Ａ）は、前記一般式（１）におけるＲ１が下記一般式（２）で表される基である成分を含む、［１］に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[0008] [化2]



(2)

（一般式（２）において、Ｒ２およびＲ３は、互いに独立し、水素原子、炭素数１～３の炭化水素基であり、Ｒ４は、互いに独立し、炭素数１～３の炭化水素基であり、ｃは、互いに独立し、０～４の整数、ｍは１～５の整数である。）

[0009] ［３］前記フェノール樹脂（Ａ）は、前記一般式（１）におけるｎ＝０～２の成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、５０質量%以上１００質量%以下含有するものである［１］または［２］に記載の半導体封止用樹脂組成物。

［４］前記フェノール樹脂（Ａ）は、前記一般式（１）におけるｎ＝０の成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、２５質量%以上７０質量%以下含むものである［１］ないし［３］のいずれか１項に半導体封止用樹脂組成物。

［５］前記フェノール樹脂（Ａ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定方法における面積換算法において、Ｒ１が前記一般式（

２）で表される基である成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、２０面積%以上８０面積%以下含有するものである［２］ないし［４］のいずれか１項に記載の半導体封止用樹脂組成物。

［６］［１］ないし［５］のいずれか１項に記載の半導体封止用樹脂組成物を用い、半導体素子を封止してなる半導体装置。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、耐燃性、耐半田性、高温保管特性、及び連続成形性のバランスに優れた半導体封止用樹脂組成物、及び当該半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置が提供される。

図面の簡単な説明

[0011] 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]本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。

[図2]本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた片面封止型の半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。

[図3]実施例、比較例で用いたフェノール樹脂１のＧＰＣチャートである。

[図4]実施例、比較例で用いたフェノール樹脂１のＦＤ－ＭＳチャートである。

[図5]実施例、比較例で用いたフェノール樹脂２のＧＰＣチャートである。

[図6]実施例、比較例で用いたフェノール樹脂３のＧＰＣチャートである。

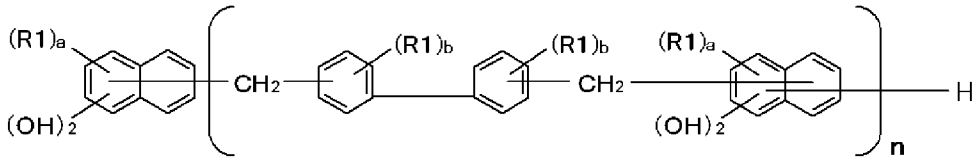
[図7]実施例、比較例で用いたフェノール樹脂３のＦＤ－ＭＳチャートである。

発明を実施するための形態

[0012] 図面を用いて、本発明による半導体封止用樹脂組成物および半導体装置の好適な実施形態について詳細に説明する。なお、図面の説明においては、同一要素には同一符号を付し、重複する説明を省略する。

[0013] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、下記一般式（１）で表されるフェノール樹脂（Ａ）と、エポキシ樹脂（Ｂ）と、無機充填剤（Ｃ）と、を含むことを特徴とする。

[化3]



(1)

上記一般式（１）において、同一のナフタレン基に結合する２個の水酸基は、ナフタレン環上の異なる炭素原子に結合しており、Ｒ１は、互いに独立して、炭素数１～６０の炭化水素基であり、ａは互いに独立し、０～５の整数、ｂは、互いに独立し０～４の整数である。ｎは０～１０の整数である。本発明に係るフェノール樹脂（Ａ）は、上記一般式（１）においてｎが１～１０の整数である第１の成分と上記一般式（１）においてｎが０の整数である第２の成分とからなる。

[0014] 本発明は、一般式（１）で表されるフェノール樹脂（Ａ）（以下、「フェノール樹脂（Ａ）」と称することがある。）を用いる。当該フェノール樹脂は、分子中にナフタレン骨格とビフェニレン骨格とを含有する。これにより、耐燃性が向上し、さらに、硬化物の弾性率を低く維持し、疎水性が向上することによって耐半田性も向上する。これは、芳香族構造の繰り返し単位当たりの含有率が高くなるからと考えられる。

[0015] また、フェノール樹脂（Ａ）は、構造中のナフタレン環に、２個のフェノール性水酸基を有するため、該水酸基が、エポキシ樹脂のエポキシ基と反応し、局所的に架橋点間距離が短くなるため、半導体封止用樹脂組成物の硬化物は、ガラス転移温度が高くなり、優れた硬化性特性を発現する。

従来、高温保管特性と耐燃性とを高める手法は、たとえば、ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂とナフタレン骨格を有するフェノール樹脂硬化剤との組み合わせ、あるいは、リン酸含有化合物の配合（特許文献３，４）を挙げることができるが、これらの樹脂組成物は硬化性が低下し、連続成型性が

低下する場合があった。

[0016] 一方、当該フェノール樹脂（Ａ）を用いた半導体封止用樹脂組成物は、フェノール樹脂（Ａ）の構造中に、ビフェニルアラルキル骨格とナフタレンジオール骨格とを含むことによって、当該フェノール樹脂（Ａ）を用いた半導体封止用樹脂組成物よりなる硬化物は、高い耐半田性と耐燃性を備え、かつ、高温保管性と連続成型性とを兼ね備えるという特徴を有する。

[0017] 本発明の前記フェノール樹脂（Ａ）は、半導体封止用樹脂組成物中において、前記フェノール樹脂（Ａ）の繰り返し単位数ｎは、０～１０であれば特に限定されない。より好ましくはｎが、０～５である。この範囲であれば、半導体封止用樹脂組成物を加熱溶融混合、または混練する際に、良好に混練することができる。特に好ましくは、ｎ＝０～２である。この範囲であれば、流動性にも優れた半導体封止用樹脂組成物を得ることが出来る。

[0018] フェノール樹脂（Ａ）のｎ＝０～２の成分の含有量は、特に限定されないが、全フェノール樹脂（Ａ）中にｎ＝０～２の成分を５０～１００質量%含有するものであることが好ましい（以下、「～」は、特に明示しない限り、上限値と下限値を含むことを表す）。さらに、フェノール樹脂（Ａ）中のｎ＝０～２の成分の含有量は、全フェノール樹脂（Ａ）に対して、より好ましくは６０質量%以上であり、さらに好ましくは７０%以上である。フェノール樹脂（Ａ）中のｎ＝０～２の成分の含有量を上記範囲内とすることにより、流動性に優れた半導体封止用樹脂組成物を得ることが出来る。

[0019] フェノール樹脂（Ａ）のｎ＝０の成分の含有割合の上限値は、特に限定されないが、フェノール樹脂（Ａ）全量に対し、７０質量%以下であることが好ましく、６０質量%以下であることがより好ましい。ｎ＝０成分の含有割合が上記上限値内であると、耐燃性、および耐半田性に優れる半導体封止用樹脂組成物を得ることができる。フェノール樹脂（Ａ）のｎ＝０成分の含有割合の下限値は、特に限定されないが、２５質量%以上であることが好ましく、３５質量%以上であることがより好ましい。ｎ＝０成分の含有割合が上記下限値内であると、フェノール樹脂単独のブロッキングが生じにくく、か

つ、該フェノール樹脂（Ａ）を用いた半導体封止用樹脂組成物は優れた流動特性、耐固着性、および低吸水性を発現することが出来る。ｎ＝０の成分の含有割合を前述の好ましい範囲とするためには、後述する方法により調整することができる。

[0020] なお、引用文献１に記載されているような従来のナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂と、ナフタレン骨格を有するフェノール樹脂硬化剤とを組み合わせて、高温保管特性と耐半田性を高める手法では、粘度が高く流動性が低下する、あるいは、粘度を低減した場合には、成型装置内（２５℃～３０℃）で待機中に樹脂組成物同士が固着し、搬送不良が発生するという問題がある。

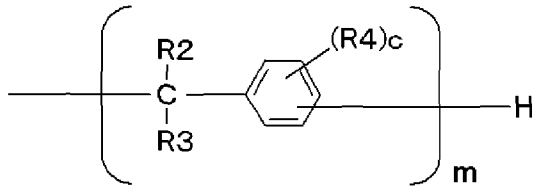
これに対し、本発明のフェノール樹脂（Ａ）を用いた半導体封止用樹脂組成物は、流動性と耐固着性とのバランスに優れる。

[0021] 一般式（１）で表されるフェノール樹脂（Ａ）中のＲ１は、炭素数１～６０の炭化水素基であり、互いに同じであっても異なっていても良い。炭素数を６０以下とすることにより、半導体封止用樹脂組成物の溶融粘度が低くなり、流動性を向上させることができる。ａは、同一のナフタレン環上に結合する置換基Ｒ１の数を表し、ａは、互いに独立し、０～５の整数である。より好ましくはａが、０～３である。ｂは、ベンゼン環上に結合する置換基Ｒ１の数を表し、ｂは、互いに独立し０～４の整数である。より好ましくはｂが、０～２である。

[0022] 一般式（１）中のＲ１は、炭素数１～６０であれば特に制限はない。例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、２－メチルブチル基、３－メチルブチル基、ｔ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、１－メチルペンチル基、２－メチルペンチル基、３－メチルペンチル基、４－メチルペンチル基、２，２－ジメチルブチル基、２，３－ジメチルブチル基、２，４－ジメチルブチル基、３，３－ジメチルブチル基、３，４－ジメチルブチル基、４，４－ジメチルブチル基、２－エチルブチル基、１－エチルブチル基、シクロヘキシル基、フェニル

基、ベンジル基、メチルベンジル基、エチルベンジル基、ナフチル基、ビフェニル基などを挙げることができ、これらの炭化水素基であって繰り返し結合したもの、または２種以上の炭化水素基が結合したものであってもよい。好ましくは、フェニル基、ベンジル基、メチルベンジル基、エチルベンジル基、ナフチル基、ビフェニル基などの芳香族環構造を有するものであり、より好ましくは下記一般式（２）で表される基に相当するベンジル基、メチルベンジル基、エチルベンジル基、である。置換基Ｒ１を芳香族環構造を有する基とした場合には、半導体封止用樹脂組成物の耐湿性が、向上する点で好ましく、さらに置換基Ｒ１を、一般式（２）の構造とした場合には、比較的低コストで置換基を導入できる点で好ましい。置換基Ｒ１の結合位置は特に制限はないが、ナフタレン環上の炭素原子に結合した場合には水酸基の自動酸化現象を抑制し、保存安定性を高めることができる点で好ましい。

[化4]



(2)

一般式（２）において、Ｒ２およびＲ３は、互いに独立して、水素原子または、炭素数１～３の炭化水素基であり、Ｒ４は、互いに独立して、ベンゼン環上のいずれかの位置に結合した炭素数１～３の炭化水素基であり、ｃは０～４の整数、くり返し単位の数ｍは１～５の整数である。より好ましくはｃは０～３の整数である。また、より好ましくはｍは１～３の整数である。ここで、上記一般式（１）中における一般式（２）のｍの合計数は、好ましくは１～５の整数であり、より好ましくは１～３の整数である。

[0023] フェノール樹脂（Ａ）中の一般式（２）で表される基である成分の含有割合は、特に限定されないが、後述するゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定による面積換算法で、フェノール樹脂（Ａ）全量に対して、含有割合の上限値は、８０面積%以下であることが好ましく、より好ま

しくは６５面積%以下である。上記上限値内であれば、エポキシ樹脂との反応性、流動性に優れた半導体用樹脂組成物を得ることができる。下限値は、２０面積%以上であることが好ましく、より好ましくは４０面積%以上である。上記下限値範囲内であれば、耐湿性と保存性とに優れる。

[0024] フェノール樹脂（Ａ）全量に対して、Ｒ１が、一般式（２）で表される基である成分の割合は、例えば、次のようにして算出することができる。

[0025] フェノール樹脂（Ａ）のゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定を行って、検出されたピークに対応する各成分の分子量をポリスチレン換算により求め、検出されたピーク面積の比から検出されたピークに対応する各成分の含有割合を算出する。

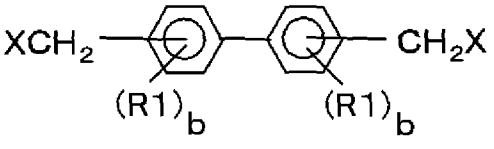
なお、ＧＰＣ測定により得られるチャートの各ピークの構造は、各フラクションに分離した後にＮＭＲ分析、もしくはＦＤ－ＭＳによる分析により確認することができる。

[0026] 本発明におけるゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定は、次のように行った。ＧＰＣ装置は、ポンプ、インジェクター、ガードカラム、カラムおよび検出器から構成される。測定には、溶媒としてテトラヒドロフラン（ＴＨＦ）を用いた。ポンプの流速は０．５ｍｌ／分であった。ガードカラムには市販のガードカラム（例えば、東ソー（株）製ＴＳＫ　ＧＵＡＲＤＣＯＬＵＭＮ　ＨＨＲ－Ｌ：径６．０ｍｍ、管長４０ｍｍ）、カラムには市販のポリスチレンジェルカラム（東ソー（株）製ＴＳＫ－ＧＥＬ　ＧＭＨＨＲ－Ｌ：径７．８ｍｍ、管長３０ｍｍ）を複数本直列接続させる。検出器には示差屈折率計（ＲＩ検出器。例えば、ＷＡＴＥＲＳ社製示差屈折率（ＲＩ）検出器Ｗ２４１４）を用いた。測定に先立ち、ガードカラム、カラムおよび検出器内部は４０℃に安定させておく。試料には、濃度３～４ｍｇ／ｍｌに調整したフェノール樹脂のＴＨＦ溶液を用意し、これを約５０～１５０μｌインジェクターより注入して測定を行った。試料の解析にあたっては、単分散ポリスチレン（以下ＰＳ）標準試料により作成した検量線を用いた。検量線はＰＳの分子量の対数値とＰＳのピーク検出時間（保持時間）

をプロットし、３次式に回帰したものを用いる。検量線作成用の標準ＰＳ試料としては、昭和電工（株）製ＳｈｏｄｅｘスタンダードＳＬ－１０５シリーズの品番Ｓ－１．０（ピーク分子量１０６０）、Ｓ－１．３（ピーク分子量１３１０）、Ｓ－２．０（ピーク分子量１９９０）、Ｓ－３．０（ピーク分子量２９７０）、Ｓ－４．５（ピーク分子量４４９０）、Ｓ－５．０（ピーク分子量５０３０）、Ｓ－６．９（ピーク分子量６９３０）、Ｓ－１１（ピーク分子量１０７００）、Ｓ－２０（ピーク分子量１９９００）を使用した。

[0027] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いられるフェノール樹脂（Ａ）は、例えば、下記一般式（３）で表されるビフェニレン化合物と、下記一般式（４）で表されるナフタレンジオール化合物と、を酸性触媒下で反応することにより得ることができる。Ｒ１が一般式（２）で表される構造を有する場合には、フェノール樹脂の反応中、あるいは、フェノール樹脂の反応後に、下記一般式（５）、または下記一般式（６）で表されるベンジル化合物を酸性触媒を用いて置換基を導入することができる。

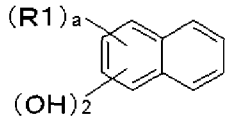
[0028] [化5]



(3)

式中のＸは、水酸基、ハロゲン原子、炭素数１～４のアルコキシ基を示す。Ｒ１は、互いに独立して、炭素数１～６０の炭化水素基であり、ｂは、互いに独立し０～４の整数である。ここで、一般式（３）のＲ１、ｂは、上記一般式（１）と同様である。

[0029] [化6]

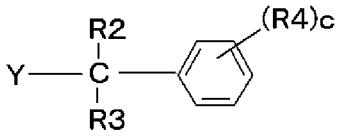


(4)

式中の同一のナフタレン基に結合する２個の水酸基は、ナフタレン環上の

異なる炭素原子に結合しており、Ｒ１は、互いに独立して、炭素数１～６０の炭化水素基であり、ａは互いに独立し、０～５の整数である。ここで、一般式（４）のＲ１、ａは、上記一般式（１）と同様である。

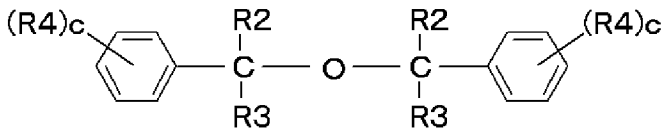
[0030] [化7]



（５）

式中のＹは、ナフタレン環に反応できる置換基であれば特に限定されない。例えば、水酸基、ハロゲン原子、炭素数１～４のアルコキシ基を示す。Ｒ２、Ｒ３は、互いに独立し、水素原子、炭素数１～３の炭化水素基であり、Ｒ４は、互いに独立し、炭素数１～３の炭化水素基であり、ｃは、互いに独立し、０～４の整数である。ここで、一般式（５）のＲ２、Ｒ３、Ｒ４、ｃは、上記一般式（２）と同様である。

[0031] [化8]



（６）

式中のＲ２およびＲ３は、互いに独立し、水素原子、炭素数１～３の炭化水素基であり、Ｒ４は、互いに独立し、炭素数１～３の炭化水素基であり、ｃは、互いに独立し、０～４の整数である。ここで、一般式（６）のＲ２、Ｒ３、Ｒ４、ｃは、上記一般式（２）と同様である。

[0032] フェノール樹脂（Ａ）の原料に用いられるビフェニレン化合物としては、一般式（３）で表される化学構造であれば特に限定されない。例えば４，４’－ビスクロロメチルビフェニル、４，４’－ビスブロモメチルビフェニル、４，４’－ビスヨードメチルビフェニル、４，４’－ビスヒドロキシメチルビフェニル、４，４’－ビスメトキシメチルビフェニル、３，３’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ビスクロロメチルビフェニル、３，３’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ビスブロモメチルビフェニル、３，３

’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ビスヨードメチルビフェニル、３，３’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ビスヒドロキシメチルビフェニル、３，３’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ビスメトキシメチルビフェニルなどが挙げられる。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。

これらの中でも、入手容易性という観点からは４，４’－ビスメトキシメチルビフェニルが好ましく、重合触媒を削減でき、不純物を減らすことができる点で４，４’－ビスクロロメチルビフェニルが好ましい。

[0033] なお、Ｘがハロゲン原子である場合には、反応時に副生するハロゲン化水素が酸性触媒として作用することから、反応系中に酸性触媒を添加する必要は無く、少量の水を添加することで速やかに反応を開始することが出来る。

[0034] フェノール樹脂（Ａ）の原料に用いられるジヒドロキシナフタレン化合物としては、一般式（４）で表される化学構造であれば特に限定されない。好ましくは、２個の水酸基の結合位置が、ナフタレン骨格上の隣接しない位置にあるジヒドロキシナフタレン化合物である。水酸基の結合位置が隣接しない場合、半導体用樹脂組成物は良好な硬化性と強度を発現することができる。水酸基の結合位置が隣接しないジヒドロキシナフタレン化合物の具体的としては、２，７－ジヒドロキシナフタレン、１，５－ジヒドロキシナフタレン、１，４－　ジヒドロキシナフタレン、２，６－ジヒドロキシナフタレン、１，６－ジヒドロキシナフタレンなどが挙げられる。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。

これらの中でも、得られるフェノール樹脂の軟化点が比較的低くエポキシ樹脂との溶融混練が容易であるという点で、１，６－ジヒドロキシナフタレンが好ましい。

[0035] フェノール樹脂（Ａ）の製造に用いられる一般式（５）で表される化合物は、特に限定されないが、例えば、ベンジルアルコール、ベンジルクロライド、ベンジルブロマイド、ベンジルメチルエーテル、ベンジルエチルエーテル、メチルベンジルクロライド、エチルベンジルクロライド、イソプロピル

ベンジルクロライド、２－フェニル－２－クロロプロパン、１－フェニルエチルクロリドが挙げることができる。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。

これらの中でも、酸性触媒を併用しなくてもよいという点では、ベンジルクロライド、ベンジルブロマイドが好ましい。

[0036] フェノール樹脂（Ａ）の製造に用いられる、一般式（６）で表される化合物は、特に限定されないが、例えば、ジベンジルエーテル、ジ（メチルベンジル）エーテル、ジ（エチルベンジル）エーテル、ジ（イソプロピルベンジル）エーテル、などを挙げることができる。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し、前記一般式（５）で表される化合物を併用して用いても良い。

[0037] 一般式（３）で表されるビフェニレン化合物、一般式（４）で表されるナフタレンジオール化合物とを反応させる際に用いる酸性触媒は、特に限定されないが、例えば、蟻酸、シュウ酸、ｐ－トルエンスルホン酸、塩酸、硫酸、燐酸、酢酸、ルイス酸などを挙げることができる。

[0038] 本発明に用いるフェノール樹脂（Ａ）の合成方法は、特に限定しないが、例えば、上記のジヒドロキシナフタレン化合物１モルに対して、ビフェニレン化合物類を合計０．１～０．８モル、ベンジル化合物を０～２モル、酸性触媒０．０１～０．０５モルを８０～１７０℃の温度で、窒素フローにより発生ガスおよび水分を系外へ排出しながら、１～２０時間反応させ、反応終了後に残留する未反応モノマー（たとえばベンジル化合物やジヒドロキシナフタレン化合物）、反応副生物（例えばハロゲン化水素、水分、メタノール）、触媒を減圧蒸留、水蒸気蒸留などの方法で留去することによって得ることができる。

[0039] また、予め合成したフェノール樹脂にベンジル化合物と上述の酸性触媒とを加えて、窒素フローにより発生ガスおよび水分を系外へ排出しながら、８０～１７０℃の温度で、１～２０時間反応させた後、残留する未反応モノマー（たとえばベンジル化合物やジヒドロキシナフタレン化合物）、反応副生

物（例えばハロゲン化水素、水分、メタノール）を減圧蒸留、水蒸気蒸留などの方法で留去することによって得ることもできる。

[0040] また、ビフェニレン化合物中のＸ、または、ベンジル化合物のＹがハロゲン原子である場合には、反応系に若干の水分を加えることで酸触媒を使用しなくとも発生する酸性ガスを触媒として用いることにより、フェノール樹脂（Ａ）を得ることができる。

[0041] フェノール樹脂（Ａ）中におけるｎ＝０の成分の含有量を制御する合成方法は、特に限定されないが、例えば、前記合成法において、酸触媒の配合量を調整する、ジヒドロキシナフタレン化合物／ビフェニレン化合物の仕込み比率を変える、反応温度を調整する、反応中にジヒドロキシナフタレン化合物を逐次添加する等の方法により制御できる。

[0042] 具体的に、フェノール樹脂（Ａ）中におけるｎ＝０の成分比率を高くするには、酸触媒の配合量を減らし、ジヒドロキシナフタレン化合物／ビフェニレン化合物の仕込み比率を高くする、反応温度を低くする、または反応中にジヒドロキシナフタレン化合物を逐次添加する、などの方法が挙げられる。あるいは、反応後のフェノール樹脂にジヒドロキシナフタレン化合物を加えても、樹脂組成物の混合の時点でジヒドロキシナフタレン化合物を配合してもよい。この場合、ジヒドロキシナフタレン化合物は、フェノール樹脂（Ａ）のｎ＝０体成分とみなすことができる。

[0043] フェノール樹脂（Ａ）中に含まれる一般式（２）の構造を有するフェノール樹脂（Ａ）の割合を制御する方法は、特に限定されないが、例えば、フェノール樹脂とベンジル化合物とを反応させる前記酸性触媒の配合量を変える、フェノール化合物／ベンジル化合物の仕込み比率を調整する、または反応温度を変える、などの方法により、式（２）で表される構造単位を有するフェノール樹脂（Ａ）の割合を調整することができる。

[0044] 具体的に、フェノール樹脂（Ａ）中に含まれる一般式（２）の構造の有するフェノール樹脂（Ａ）の割合を高くする方法としては、酸触媒の配合量を増やす、フェノール化合物／ベンジル化合物の仕込み比率を下げる、反応温

度を上げる、などの方法により、式（２）で表される構造単位を有するフェノール樹脂（Ａ）の割合を高くすることができる。

[0045] なお、この方法を採ることによって、フェノール樹脂（Ａ）のｎの平均値も同時に低下する場合がある。ｎの平均値を一定の値に維持する方法としては、特に限定されないが、例えば、フェノール樹脂（Ａ）の合成反応の中盤から終わりにかけて、ベンジル化合物を系内に逐次添加する方法が挙げられる。

[0046] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、上記フェノール樹脂（Ａ）を用いることによる効果が損なわれない範囲で、他の硬化剤を併用することができる。

併用できる硬化剤としては、特に限定されないが、例えば重付加型の硬化剤、触媒型の硬化剤、縮合型の硬化剤などを挙げることができる。

[0047] 重付加型の硬化剤としては、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、メタキシレリレンジアミンなどの脂肪族ポリアミン、ジアミノジフェニルメタン、ｍ－フェニレンジアミン、ジアミノジフェニルスルホンなどの芳香族ポリアミンのほか、ジシアンジアミド、有機酸ジヒドラジドなどを含むポリアミン化合物；ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸などの脂環族酸無水物、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸などの芳香族酸無水物などを含む酸無水物；ノボラック型フェノール樹脂、フェノールポリマーなどのポリフェノール化合物；ポリサルファイド、チオエステル、チオエーテルなどのポリメルカプタン化合物；イソシアネートプレポリマー、ブロック化イソシアネートなどのイソシアネート化合物；カルボン酸含有ポリエステル樹脂などの有機酸類などが挙げられる。

[0048] 触媒型の硬化剤としては、例えば、ベンジルジメチルアミン、２，４，６－トリスジメチルアミノメチルフェノールなどの３級アミン化合物；２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾールなどのイミダゾール化合物；BF_3錯体などのルイス酸などが挙げられる。

[0049] 縮合型の硬化剤としては、例えば、ノボラック型フェノール樹脂、レゾール型フェノール樹脂などのフェノール樹脂系硬化剤；メチロール基含有尿素樹脂のような尿素樹脂；メチロール基含有メラミン樹脂のようなメラミン樹脂などが挙げられる。

[0050] これらの中でも、耐燃性、耐湿性、電気特性、硬化性、保存安定性などのバランスの点からフェノール樹脂系硬化剤が好ましい。フェノール樹脂系硬化剤は、一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、ナフトールノボラック樹脂などのノボラック型樹脂；トリフェノールメタン型フェノール樹脂などの多官能型フェノール樹脂；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などの変性フェノール樹脂；フェニレン骨格および／またはビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂、フェニレンおよび／またはビフェニレン骨格を有するナフトールアラルキル樹脂などのアラルキル型樹脂；ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦなどのビスフェノール化合物などが挙げられ、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。これらのうち、硬化性の点から水酸基当量は９０ｇ／ｅｑ以上、２５０ｇ／ｅｑ以下のものが好ましい。

[0051] このような他の硬化剤を併用する場合において、フェノール樹脂（Ａ）の配合割合の下限値としては、全硬化剤に対して、１５質量%以上であることが好ましく、２５質量%以上であることがより好ましく、３５質量%以上であることが特に好ましい。一方、フェノール樹脂（Ａ）の配合割合の上限値としては、全硬化剤に対して、１００質量%以下であることが好ましく、１００質量%以下であることがより好ましく、１００質量%以下であることが特に好ましい。配合割合が上記範囲内であると、良好な流動性と硬化性を保持しつつ、耐燃性、耐半田性を向上させる効果を得ることができる。

硬化剤全体の配合割合の下限値については、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、０．８質量%以上であることが好ましく１．５質

量%以上であることがより好ましい。配合割合の下限値が上記範囲内であると、充分な流動性を得ることができる。また、硬化剤全体の配合割合の上限値についても、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、１０質量%以下であることが好ましく、８質量%以下であることがより好ましい。配合割合の上限値が上記範囲内であると、良好な耐半田性を得ることができる。

[0052] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いられるエポキシ樹脂としては、例えば、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビスフェノール型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂などの結晶性エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂などのノボラック型エポキシ樹脂、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などの多官能エポキシ樹脂；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、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などのアラルキル型エポキシ樹脂、ジヒドロキシナフタレン型エポキシ樹脂、ジヒドロキシナフタレンの２量体をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂などのナフトール型エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレートなどのトリアジン核含有エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂などの有橋環状炭化水素化合物変性フェノール型エポキシ樹脂が挙げられるが、これらに限定されない。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、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などのアラルキル型エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂は、耐半田性、耐燃性および連続成形性のバランスに優れる点で好ましく、結晶性エポキシ樹脂は、さらに流動性に優れる点で好ましい。また、得られる半導体封止用樹脂組成物の耐湿信頼性の観点から、イオン性不純物であるＮａイオンやＣｌイオンを極力含まないことが好ましく、半導体樹脂組成物の硬化性の観点から、エポキシ樹脂のエポキシ当量は、１００ｇ／ｅｑ以上、５００ｇ／ｅｑ以下であることが好ましい。

[0053] 半導体封止用樹脂組成物中のエポキシ樹脂の配合量は、半導体封止用樹脂組成物の全質量に対して、好ましくは２質量%以上であり、より好ましくは４質量%以上である。下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。また、半導体封止用樹脂組成物中のエポキシ樹脂の量は、半導体封止用樹脂組成物の全質量に対して、好ましくは１５質量%以下であり、より好ましくは１３質量%以下である。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耐半田性を有する。

なお、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、得られる樹脂組成物を成形する際、十分な硬化特性を得ることができる。

[0054] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いられる無機充填剤としては、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充填剤を使用することができる。例えば、溶融シリカ、球状シリカ、結晶シリカ、アルミナ、窒化珪素、窒化アルミなどが挙げられる。

[0055] 無機充填剤の粒径は、金型キャビティへの充填性の観点から、０．０１μｍ以上、１５０μｍ以下であることが望ましい。

[0056] 無機充填剤の含有量は、特に限定されないが、半導体封止用樹脂組成物の全質量に対して、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８６質量%以上である。下限値が上記範囲内であると、得られる半導体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、半導体封止用樹脂組成物中の無機充填剤量の上限値は、半導体封止用樹脂組成物の全質量に対して、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。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、後述する、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、三酸化アンチモン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充填剤の合計量を上記範囲内とすることが望ましい。

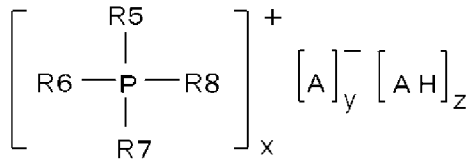
[0057] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、さらに、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、およびホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物よりなる群から選ばれる少なくとも１種類の化合物（Ｄ）を用いることができる。化合物（Ｄ）は、エポキシ樹脂と硬化剤との架橋反応を促進する作用を有するほか、半導体封止用樹脂組成物の硬化時の流動性と硬化性とのバランスを制御でき、さらには硬化物の硬化特性を変えることもできる。化合物（Ｄ）の具体例としては、有機ホスフィン、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物などのリン原子含有硬化促進剤；１，８－ジアザビシクロ（５，４，０）ウンデセン－７、ベンジルジメチルアミン、２－メチルイミダゾールなどの化合物が挙げられ、これらのうち、リン原子含有硬化促進剤が好ましい硬化性を得ることができる。流動性と硬化性と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などの潜伏性を有するリン原子含有硬化促進剤がより好ましい。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、また半導体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、また潜伏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。

[0058] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる有機ホスフィンとしては、例えばエチルホスフィン、フェニルホスフィンなどの第１ホスフィン、ジメチルホスフィン、ジフェニルホスフィンなどの第２ホスフィン、ト

リメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどの第３ホスフィンが挙げられる。

[0059] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる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（７）で表される化合物などが挙げられる。

[0060] [化9]



（７）

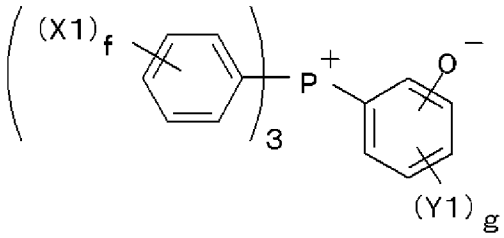
（ただし、上記一般式（７）において、Ｐはリン原子を表す。Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７およびＲ８は芳香族基またはアルキル基を表す。Ａはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも１つ有する芳香族有機酸のアニオンを表す。ＡＨはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも１つ有する芳香族有機酸を表す。ｘ、ｙは１～３の整数、ｚは０～３の整数であり、かつｘ＝ｙである。）

[0061] 一般式（７）で表される化合物は、例えば以下のようにして得られるがこれに限定されるものではない。まず、テトラ置換ホスホニウムハライドと芳香族有機酸と塩基を有機溶剤に混ぜ均一に混合し、その溶液系内に芳香族有機酸アニオンを発生させる。次いで水を加えると、一般式（７）で表される化合物を沈殿させることができる。一般式（７）で表される化合物において、リン原子に結合するＲ５、Ｒ６、Ｒ７およびＲ８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。

[0062] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができるホスホベタイン化合物としては、例えば下記一般式（８）で表される化合物などが挙げられる。

[0063]

[化10]



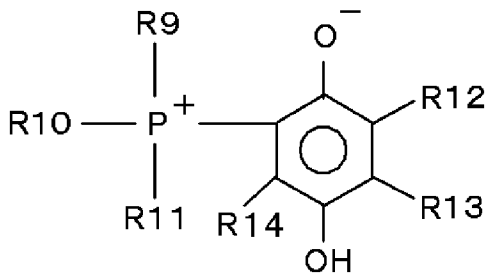
(8)

（ただし、上記一般式（８）において、Ｘ１は炭素数１～３のアルキル基、Ｙ１はヒドロキシル基を表す。ｆは０～５の整数であり、ｇは０～４の整数である。）

[0064] 一般式（８）で表される化合物は、例えば以下のようにして得られる。まず、第三ホスフィンであるトリ芳香族置換ホスフィンとジアゾニウム塩とを接触させ、トリ芳香族置換ホスフィンとジアゾニウム塩が有するジアゾニウム基とを置換させる工程を経て得られる。しかしこれに限定されるものではない。

[0065] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる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（９）で表される化合物などが挙げられる。

[0066] [化11]



(9)

（ただし、上記一般式（９）において、Ｐはリン原子を表す。Ｒ９、Ｒ１０およびＲ１１は炭素数１～１２のアルキル基または炭素数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いてもよい。Ｒ１２、Ｒ１３およびＲ１４は水素原子または炭素数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いてもよく、Ｒ１２とＲ１３が結合して環状構造とな

っていてもよい。）

[0067] 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またはアルキル基、アルコキシル基などの置換基が存在するものが好ましく、アルキル基、アルコキシル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。

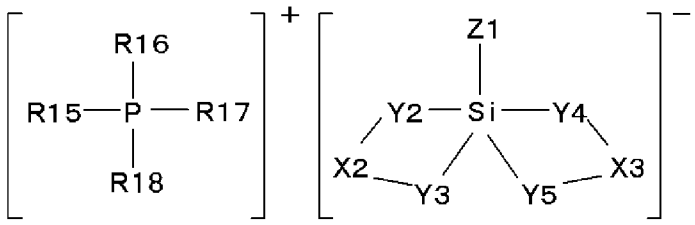
ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物の製造方法としては、有機第三ホスフィンとベンゾキノン類の両者が溶解することができる溶媒中で接触、混合させることにより付加物を得ることができる。溶媒としてはアセトンやメチルエチルケトンなどのケトン類で付加物への溶解性が低いものがよい。しかしこれに限定されるものではない。

一般式（９）で表される化合物において、リン原子に結合するＲ９、Ｒ１０およびＲ１１がフェニル基であり、かつＲ１２、Ｒ１３およびＲ１４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半導体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。

[0068] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる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（１０）で表される化合物などが挙げられる。

[0069]

[化12]



(10)

（ただし、上記一般式（１０）において、Ｐはリン原子を表し、Ｓｉは珪素原子を表す。Ｒ１５、Ｒ１６、Ｒ１７およびＲ１８は、それぞれ、芳香環また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いてもよい。式中Ｘ２は、基Ｙ２およびＹ３と結合する有機基である。式中Ｘ３は、基Ｙ４およびＹ５と結合する有機基である。Ｙ２およびＹ３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Ｙ２およびＹ３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。Ｙ４およびＹ５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Ｙ４およびＹ５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。Ｘ２、およびＸ３は互いに同一であっても異なっていてもよく、Ｙ２、Ｙ３、Ｙ４、およびＹ５は互いに同一であっても異なっていてもよい。Ｚ１は芳香環または複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基である。）

[0070] 一般式（１０）において、Ｒ１５、Ｒ１６、Ｒ１７およびＲ１８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、ヒドロキシフェニル基、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－オクチル基およ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。

[0071] また、一般式（１０）において、Ｘ２は、Ｙ２およびＹ３と結合する有機基である。同様に、Ｘ３は、基Ｙ４およびＹ５と結合する有機基である。Ｙ２およびＹ３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Ｙ２およびＹ３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Ｙ４およびＹ５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Ｙ４およびＹ５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Ｘ２およびＸ３は互いに同一であっても異なっていてもよく、基Ｙ２、Ｙ３、Ｙ４、およびＹ５は互いに同一であっても異なっていてもよい。このような一般式（１０）中の－Ｙ２－Ｘ２－Ｙ３－、および－Ｙ４－Ｘ３－Ｙ５－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、例えば、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－２－ナフトエ酸、３－ヒドロキシ－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－シクロヘキサンジオール、１，２－プロパンジオールおよ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。

また、一般式（１０）中のＺ１は、芳香環また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、ヘキシル基およ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、ナフチル基およ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、アミノプロピル基およ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、ナフチル基およびビフェニル基が一般式（１０）の熱安定性が向上するという点で、より好ましい。

[0072] ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物の製造方法としては、メタノールを入れたフラスコに、フェニルトリメトキシシランなどのシラン化合物、２，３－ジヒドロキシナフタレンなどのプロトン供与体を加えて溶かし

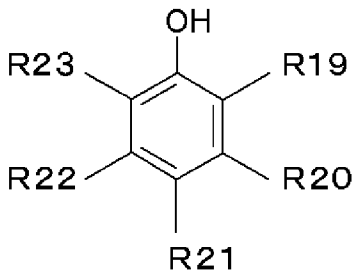
、次に室温攪拌下ナトリウムメトキシドーメタノール溶液を滴下する。さらにそこへ予め用意したテトラフェニルホスホニウムブロマイドなどのテトラ置換ホスホニウムハライドをメタノールに溶かした溶液を室温攪拌下滴下すると結晶が析出する。析出した結晶を濾過、水洗、真空乾燥すると、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物が得られる。しかし、これに限定されるものではない。

[0073] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いることができる化合物（Ｄ）の配合割合は、全樹脂組成物中０．１質量%以上、１質量%以下であることがより好ましい。化合物（Ｄ）の配合量が上記範囲内であると、充分な硬化性、流動性を得ることができる。

[0074] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、さらに、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）（以下、「化合物（Ｅ）」とも称する。）を用いることができる。化合物（Ｅ）は、これを用いることにより、フェノール樹脂（Ａ）とエポキシ樹脂との架橋反応を促進させる化合物（Ｄ）として、潜伏性を有しないリン原子含有硬化促進剤を用いた場合であっても、樹脂配合物の溶融混練中での反応を抑えることができ、安定して半導体封止用樹脂組成物を得ることができる。

また、化合物（Ｅ）は、半導体封止用樹脂組成物の溶融粘度を下げ、流動性を向上させる効果も有するものである。化合物（Ｅ）としては、下記一般式（１１）で表される単環式化合物または下記一般式（１２）で表される多環式化合物などを用いることができ、これらの化合物は水酸基以外の置換基を有していてもよい。

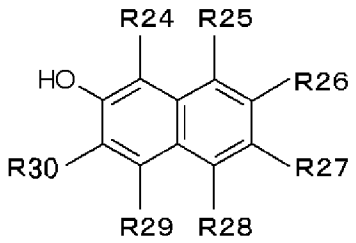
[0075] [化13]



（11）

（ただし、上記一般式（１１）において、Ｒ１９、Ｒ２３はどちらか一方が水酸基であり、片方が水酸基のとき、他方は水素原子、水酸基、または水酸基以外の置換基である。Ｒ２０、Ｒ２１、およびＲ２２は水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。）

[0076] [化14]



(12)

（ただし、上記一般式（１２）において、Ｒ２４、Ｒ３０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原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。Ｒ２５、Ｒ２６、Ｒ２７、Ｒ２８およびＲ２９は水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。）

[0077] 一般式（１１）で表される単環式化合物は、例えば、カテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステルまたはこれらの誘導体等が挙げられる。また、一般式（１２）で表される多環式化合物は、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これらの誘導体等が挙げられる。これらのうち、流動性と硬化性と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、化合物（Ｅ）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などのナフタレン環を有する化合物とすることができる。これらの化合物（Ｅ）は１種類を単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0078] 化合物（Ｅ）の配合量は、全半導体封止用樹脂組成物中に０．０１質量%以上、１質量%以下であることが好ましく、より好ましくは０．０３質量%

以上、０．８質量%以下、特に好ましくは０．０５質量%以上、０．５質量%以下である。化合物（Ｅ）の配合量の下限値が上記範囲内であると、半導体封止用樹脂組成物の充分な低粘度化と流動性向上効果を得ることができる。また、化合物（Ｅ）の配合量の上限値が上記範囲内であると、半導体封止用樹脂組成物の硬化性および連続成型性の低下や半田リフロー温度でクラックを引き起こす恐れが少ない。

尚、化合物（Ｅ）の一部は、前記一般式（１）で表されるフェノール樹脂（Ａ）に該当する場合がある。

この場合は、化合物（Ｅ）のうち、フェノール樹脂（Ａ）に該当する化合物（Ｅ）は、フェノール樹脂（Ａ）に含め、フェノール樹脂（Ａ）の配合量とする。

[0079] 本発明の半導体封止用樹脂組成物においては、エポキシ樹脂（Ｂ）と無機充填剤（Ｃ）との密着性を向上させるため、シランカップリング剤などの密着助剤を添加することができる。

その例としては特に限定されないが、エポキシシラン、アミノシラン、ウレイドシラン、メルカプトシランなどが挙げられ、エポキシ樹脂と無機充填剤との間で反応し、エポキシ樹脂と無機充填剤の界面強度を向上させるものであればよい。また、シランカップリング剤は、前述の化合物（Ｅ）と併用することで、樹脂組成物の溶融粘度を下げ、流動性を向上させるという化合物（Ｅ）の効果を高めることもできるものである。

エポキシシランとしては、例えば、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、β－（３，４エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランなどが挙げられる。

また、アミノシランとしては、例えば、γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－β（アミノエチル）γ－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－β（アミノエチル）γ－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－フェニルγ－アミノプロピルトリ

エトキシシラン、Ｎ－フェニルγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－β（アミノエチル）γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－６－（アミノヘキシル）３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（３－（トリメトキシシリルプロピル）－１，３－ベンゼンジメタナンなどが挙げられる。また、ウレイドシランとしては、例えば、γ－ウレイドプロピルトリエトキシシラン、ヘキサメチルジシラザンなどが挙げられる。

また、メルカプトシランとしては、例えば、γ－メルカプトプロピルトリメトキシシランなどが挙げられる。これらのシランカップリング剤は１種類を単独で用いても２種類以上を併用してもよい。

[0080] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いることができるカップリング剤の配合割合の下限値としては、全半導体封止用樹脂組成物中０．０１質量%以上が好ましく、より好ましくは０．０５質量%以上、特に好ましくは０．１質量%以上である。カップリング剤の配合割合の下限値が上記範囲内であれば、エポキシ樹脂と無機充填剤との界面強度が低下することがなく、半導体装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、カップリング剤の上限値としては、全半導体封止用樹脂組成物中１質量%以下が好ましく、より好ましくは０．８質量%以下、特に好ましくは０．６質量%以下である。カップリング剤の配合割合の上限値が上記範囲内であれば、エポキシ樹脂と無機充填剤との界面強度が低下することがなく、半導体装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、カップリング剤の配合割合が上記範囲内であれば、樹脂組成物の硬化物の吸水性が増大することがなく、半導体装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。

[0081] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、前述した成分以外に、カーボンブラック、ベンガラ、酸化チタンなどの着色剤；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などの合成ワックス、ステアリン酸やステアリン酸亜鉛などの高級脂肪酸およびその金属塩類若しくはパラフィンなどの離型剤；シリコーンオイル、シリコーンゴムなどの低応力添加剤；酸化ビスマス水和物などの無機イオン交換体；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、フォスファゼン、三酸化アンチモンなどの難燃剤などの添加剤を適宜配合してもよい。

[0082] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、フェノール樹脂（Ａ）、エポキシ樹脂（Ｂ）および無機充填剤（Ｃ）、ならびに上述のその他の成分などを、例えば、ミキサーなどを用いて常温で均一に混合する。

[0083] その後、必要に応じて、加熱ロール、ニーダーまたは押出機などの混練機を用いて溶融混練し、続いて必要に応じて冷却、粉砕することにより、所望の分散度や流動性などに調整することができる。

[0084] 次に、本発明の半導体装置について説明する。

本発明の半導体封止用樹脂組成物を用いて半導体装置を製造する方法としては、例えば、半導体素子を搭載したリードフレームまたは回路基板などを金型キャビティ内に設置した後、半導体封止用樹脂組成物を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などの成形方法で成形、硬化させることにより、この半導体素子を封止する方法が挙げられる。

封止される半導体素子としては、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。

得られる半導体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（ＤＩＰ）、プラスチック・リード付きチップ・キャリヤ（ＰＬＣＣ）、クワッド・フラット・パッケージ（ＱＦＰ）、ロー・プロファイル・クワッド・フラット・パッケージ（ＬＱＦＰ）、スモール・アウトライン・パッケージ（ＳＯＰ）、スモール・アウトライン・Ｊリード・パッケージ（ＳＯＪ）、薄型スモール・アウトライン・パッケージ（ＴＳＯＰ）、薄型クワッド・フラット・パッケージ（ＴＱＦＰ）、テープ・キャリア・パッケージ（ＴＣＰ）、ボール・グリッド・アレイ（ＢＧＡ）、チップ・サイズ・パッケージ（ＣＳＰ）などが挙げられるが、これらに限定されない。

半導体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

半導体素子が封止された半導体装置は、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。

図１は、本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。ダイパッド３上に、ダイボンド材硬化体２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５との間は金線４によって接続されている。半導体素子１は、半導体封止用樹脂組成物の硬化体６によって封止されている。

図２は、本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた片面封止型の半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。基板８の表面に、ソルダーレジスト７の層が形成された積層体のソルダーレジスト７上にダイボンド材硬化体２を介して半導体素子１を固定する。

尚、半導体素子１と基板８との導通をとるため、電極パッドが露出するよう、電極パッド上のソルダーレジスト７は、現像法により除去されている。従って、図２の半導体装置は、半導体素子１の電極パッドと基板８上の電極パッドとの間は金線４によって接続する設計となっている。

半導体装置に封止用樹脂組成物を封止し、硬化体６を形成することによって、基板８の半導体素子１が搭載された片面側のみが封止された半導体装置を得ることができる。基板８上の電極パッドは基板８上の非封止面側の半田ボール９と内部で接合されている。

実施例

[0085] 以下、実施例を用いて本発明を詳細に説明するが、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。以下に記載の各成分の配合量は、特に記載しない限り、質量部とする。

[0086] フェノール樹脂（Ａ）は、以下のフェノール樹脂１～３を使用した。

フェノール樹脂１：１，６―ナフタレンジオール（東京化成工業株式会社製、融点１３６℃、分子量１６０．２、純度９９．５％）１００質量部、４，４’－ビスクロロメチルビフェニル（和光純薬工業（株）製、純度９７．

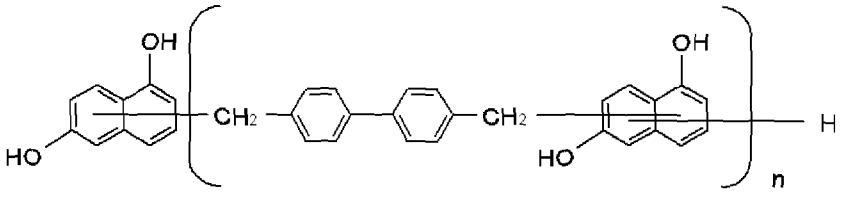
５%、分子量２５１）３１．５質量部、純水０．６質量部をセパラブルフラスコに秤量し、窒素置換しながら加熱し、溶融の開始に併せて攪拌を開始した。系内温度を１５０℃から１６０℃の範囲に維持しながら２時間反応させた。上記の反応の間、反応によって系内に発生する塩酸は、窒素気流によって系外へ排出した。反応終了後、１５０℃、２ｍｍＨｇの減圧条件で残留する塩酸と水分を留去し、下記式（１３）で表されるフェノール樹脂１（水酸基当量１０２、軟化点７５℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度１．１５ｄＰａ・ｓ、ＧＰＣの面積法より算出したｎ＝０の含有割合５１%、ｎ＝０～２の含有割合９５%、ｎの平均値０．７２）を得た。ＧＰＣチャートを図３に、ＦＤ－ＭＳチャートを図４に示す。

フェノール樹脂２：フェノール樹脂１の合成において、１，６―ナフタレンジオールを１１５質量部としてフェノール樹脂１と同様の操作を行い、下記式（１３）で表されるフェノール樹脂２（水酸基当量９８、軟化点８４℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．９ｄＰａ・ｓ。ＧＰＣの面積法より算出したｎ＝０の含有割合５５%、ｎ＝０～２の含有割合９５%、ｎの平均値０．６５）を得た。ＧＰＣチャートを図５に示す。

フェノール樹脂３：１，６―ナフタレンジオール（東京化成工業株式会社製、融点１３６℃、分子量１６０．２、純度９９．５%）１００質量部、４，４’－ビスクロロメチルビフェニル（和光純薬工業（株）製、ビスクロロメチルビフェニル、純度９６%、分子量２５１）３５．４質量部、純水０．６質量部をセパラブルフラスコに秤量し、窒素置換しながら加熱し、溶融の開始に併せて攪拌を開始した。系内温度を１５０℃から１６０℃の範囲に維持しながら１５分間反応させたのち、反応系内にベンジルクロライド（関東化学（株）製特級試薬、沸点１７９℃、分子量１２６．６、純度９９．５%）４０質量部、純水０．６質量部を滴下し、さらに２時間反応させた。上記の反応の間、反応によって系内に発生する塩酸は、窒素気流によって系外へ排出した。反応終了後、１５０℃、２ｍｍＨｇの減圧条件で残留する塩酸と水分を留去し、下記式（１４）で表される構造で、ｈ１～ｈ４の和は最大で

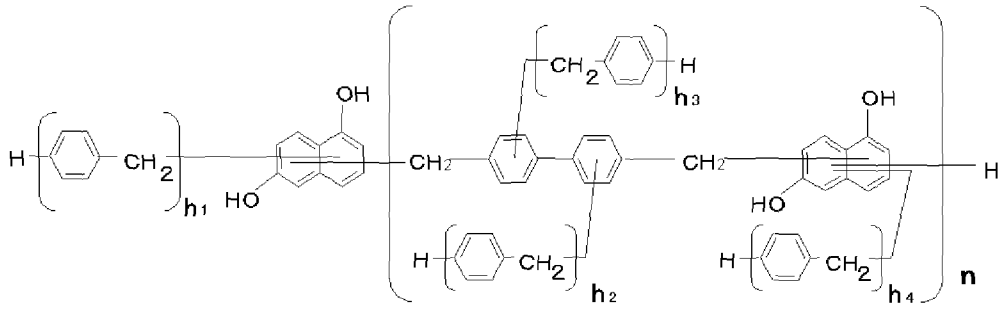
３であるフェノール樹脂３（水酸基当量１２９、軟化点６７℃、１５０℃における ＩＣＩ粘度１．８ｄＰａ・ｓ、ＧＰＣの面積法より算出したｎ＝０の含有割合５２%、ｎ＝０～２の含有割合９３%、ｎの平均値０．７０、フェノール樹脂３中のベンジル基を有する成分の含有割合は、ＧＰＣの面積法で５０面積%）を得た。ＧＰＣチャートを図６に、ＦＤ－ＭＳチャートを図７に示す。

[0087] [化15]



(13)

[化16]



(14)

[0088] フェノール樹脂（Ａ）以外のフェノール樹脂として、フェノール樹脂４～７を使用した。

フェノール樹脂４：下記式（１５）で表されるフェニレン骨格を有するナフタレンジオールアラルキル樹脂（新日鐵化学（株）製、ＳＮ－３７５。水酸基当量９９、軟化点７０℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．７ｄＰａ・ｓ）。

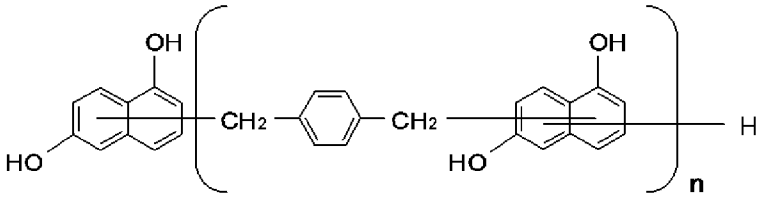
フェノール樹脂５：ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂（明和化成（株）製、ＭＥＨ－７８５１ＳＳ。水酸基当量２０３、軟化点６７℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．７ｄＰａ・ｓ）。

フェノール樹脂６：トリフェニルメタン型フェノール樹脂（明和化成（株）

製、ＭＥＨ－７５００。水酸基当量９７、軟化点１１０℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度５．８ｄＰａ・ｓ）。

フェノール樹脂７：フェノールノボラック樹脂（住友ベークライト（株）製、ＰＲ－ＨＦ－３。水酸基当量１０４、軟化点８０℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度５．８ｄＰａ・ｓ）

[化17]



(15)

[0089] フェノール樹脂１のＧＰＣ測定は、次の条件で行った。フェノール樹脂１の試料２０ｍｇに溶剤テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）を６ｍｌ加えて十分溶解しＧＰＣ測定に供した。ＧＰＣシステムは、ＷＡＴＥＲＳ社製モジュールＷ２６９５、東ソー（株）製のＴＳＫ　ＧＵＡＲＤＣＯＬＵＭＮ　ＨＨＲ－Ｌ（径６．０ｍｍ、管長４０ｍｍ、ガードカラム）、東ソー（株）製のＴＳＫ－ＧＥＬ　ＧＭＨＨＲ－Ｌ（径７．８ｍｍ、管長３０ｍｍ、ポリスチレンジェルカラム）２本、ＷＡＴＥＲＳ社製示差屈折率（ＲＩ）検出器Ｗ２４１４を直列に接続したものを用いた。ポンプの流速は０．５ｍｌ／分、カラムおよび示差屈折率計内温度を４０℃とし、測定溶液を１００μｌインジェクターより注入して測定を行った。

フェノール樹脂１のＦＤ－ＭＳ測定は次の条件で行った。フェノール樹脂１の試料１０ｍｇに溶剤ジメチルスルホキシド１ｇを加えて十分溶解したのち、ＦＤエミッターに塗布の後、測定に供した。ＦＤ－ＭＳシステムは、イオン化部に日本電子（株）製のＭＳ－ＦＤ１５Ａを、検出器に日本電子（株）製のＭＳ－７００（機種名：二重収束型質量分析装置）とを接続して用い、検出質量範囲（ｍ／ｚ）５０～２０００にて測定した。

[0090] エポキシ樹脂は、以下のエポキシ樹脂１～９を使用した。

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、ＮＣ３０００。エポキシ当量２７６、軟化点５８℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度１．１１ｄＰａ・ｓ）

エポキシ樹脂２：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、ＮＣ２０００。エポキシ当量２３８、軟化点５２℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度１．２ｄＰａ・ｓ）

エポキシ樹脂３：変性オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂（ＤＩＣ（株）製、ＨＰ－５０００。エポキシ当量２５１、軟化点５８℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．８５ｄＰａ・ｓ。

エポキシ樹脂４：ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ（株）製、ＨＰ－７２００Ｌ、エポキシ当量２４４、軟化点５６℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．２４ｄＰａ・ｓ。）

エポキシ樹脂５：オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂（ＤＩＣ（株）製、Ｎ６６０。エポキシ当量２１０、軟化点６２℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度２．３４ｄＰａ・ｓ。

エポキシ樹脂６：ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂（東都化成（株）製、ＹＳＬＶ－８０ＸＹ、エポキシ当量１９０、軟化点８０℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．０３ｄＰａ・ｓ。）

エポキシ樹脂７：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（株）製、ＹＬ６８１０、エポキシ当量１７２、軟化点４５℃、軟化点１０７℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．０３ｄＰａ・ｓ）

エポキシ樹脂８：ビフェニル型エポキシ樹脂（ジャパンエポキシレジン（株）製、ＹＸ４０００Ｋ、エポキシ当量１８５、軟化点１０７℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度０．１ｄＰａ・ｓ）

エポキシ樹脂９：トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（ジャパンエポキシレジン（株）製、１０３２Ｈ－６０、エポキシ当量１７１、軟化点６０℃、１５０℃におけるＩＣＩ粘度１．３ｄＰａ・ｓ）

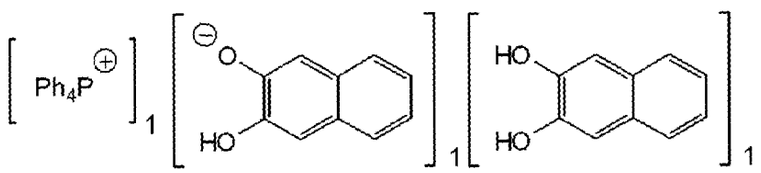
無機充填剤としては、電気化学工業（株）製溶融球状シリカＦＢ５６０（平均粒径３０μｍ）１００質量部、（株）アドマテックス製合成球状シリカ

ＳＯ－Ｃ２（平均粒径０．５μｍ）６．５質量部、（株）アドマテックス製合成球状シリカＳＯ－Ｃ５（平均粒径３０μｍ）７．５質量部のブレンドを使用した。

[0091] 化合物（Ｄ）は、以下の４種を使用した。

化合物（Ｄ１）：下記式（１６）で表される化合物（Ｄ）

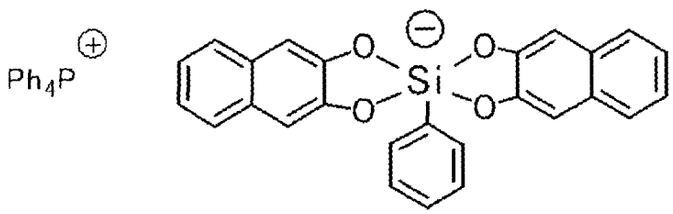
[化18]



（16）

[0092] 化合物（Ｄ２）：下記式（１７）で表される化合物（Ｄ）

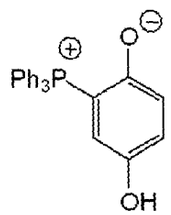
[化19]



（17）

[0093] 化合物（Ｄ３）：下記式（１８）で表される化合物（Ｄ）

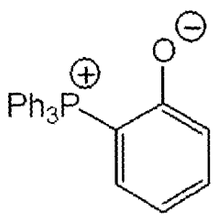
[化20]



（18）

[0094] 化合物（Ｄ４）：下記式（１９）で表される化合物（Ｄ）

[化21]

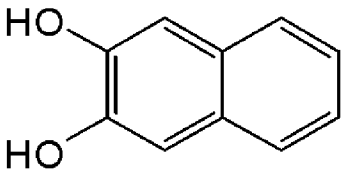


（19）

[0095] その他のリン化合物としてトリフェニルホスフィンを用いた。

[0096] 化合物（Ｅ）は、下記式（２０）で表される化合物（東京化成工業（株）製、２，３－ナフタレンジオール、純度９８％）を使用した。

[化22]



(20)

[0097] シランカップリング剤は、以下のシランカップリング剤１～３を使用した。

シランカップリング剤１：γ－メルカプトプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業（株）製、ＫＢＭ－８０３）

シランカップリング剤２：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、ＫＢＭ－４０３）

シランカップリング剤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（株）製、ＫＢＭ－５７３）

金属水酸化物は、以下の金属水酸化物１および２を使用した。

金属水酸化物－１：水酸化マグネシウム・水酸化亜鉛固溶体複合金属水酸化物（タテホ化学工業（株）製、エコーマグＺ－１０）。

金属水酸化物－２：水酸化アルミニウム（住友化学（株）製、ＣＬ－３１０）。

ホスファゼン化合物：シクロホスファゼン（大塚化学（株）製、ＳＰＥ－１００）。

着色剤は、三菱化学（株）製のカーボンブラック（ＭＡ６００）を使用した。

離型剤は、日興ファイン（株）製のカルナバワックス（ニッコウカルナバ、融点８３℃）を使用した。

[0098] （実施例１）

以下の成分をミキサーにて常温で混合し、８０℃～１００℃の加熱ロールで溶融混練し、その後冷却し、次いで粉砕して、半導体封止用樹脂組成物を得た。

フェノール樹脂１	３．２５質量部
エポキシ樹脂１	９．２５質量部
無機充填剤	８６．５０質量部
硬化促進剤１（Ｄ１）	０．４０質量部
シランカップリング剤１	０．１０質量部
シランカップリング剤２	０．０５質量部
シランカップリング剤３	０．０５質量部
着色剤	０．３０質量部
離型剤	０．１０質量部

得られた半導体封止用樹脂組成物を、以下の項目について評価した。評価結果を表１に示す。

[0099] スパイラルフロー：低圧トランスファー成形機（コータキ精機（株）製、ＫＴＳ－１５）を用いて、ＥＭＭＩ－１－６６に準じたスパイラルフロー測定用金型に、１７５℃、注入圧力６．９ＭＰａ、保圧時間１２０秒の条件にて上記で得られた半導体封止用樹脂組成物を注入し、流動長を測定した。スパイラルフローは、流動性のパラメータであり、数値が大きい方が、流動性が良好である。単位はｃｍである。

[0100] 耐燃性：低圧トランスファー成形機（コータキ精機（株）製、ＫＴＳ－３０）を用いて、金型温度１７５℃、注入時間１５秒、硬化時間１２０秒、注入圧力９．８ＭＰａの条件で、半導体封止用樹脂組成物を注入成形して、３．２mm厚の耐燃試験片を作製し、１７５℃で４時間加熱処理した。得られた試験片について、ＵＬ９４垂直法の規格に則り耐燃試験を行った。表には、Ｆｍａｘ、ΣＦおよび判定後の耐燃ランクを示した。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物は、Ｆｍａｘ：７秒、ΣＦ：２４秒、耐燃ランク：Ｖ－０と良好な耐燃性を示した。

[0101] 連続成形性：上記で得られた半導体封止用樹脂組成物をロータリー式打錠機にて、重量７．５ｇ、サイズφ１６ｍｍ打錠型に装填し、打錠圧力６００Ｐａにて打錠してタブレットを得た。タブレットはタブレット供給マガジンに装填し、成形装置内部にセットした。低圧トランスファー自動成形機（サイネックス（株）製、ＳＹ－ＣＯＭＰ）を用いて、金型温度１７５℃、注入圧力９．８ＭＰａ、硬化時間６０秒の条件で、半導体封止用樹脂組成物のタブレットによりシリコンチップなどを封止して２０８ピンＱＦＰ（Ｃｕ製リードフレーム、パッケージ外寸：２８ｍｍ×２８ｍｍ×３．２ｍｍ厚、パッドサイズ：１５．５ｍｍ×１５．５ｍｍ、チップサイズ１５．０ｍｍ×１５．０ｍｍ×０．３５ｍｍ厚）の半導体装置を得る成形を、連続で３００ショットまで行った。この際、２５ショット毎に半導体装置の成形状態（未充填の有無）を確認し、最初に未充填が確認できたショット数を表に記載した。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物は、３００ショット以上と良好な連続成形性を示した。

[0102] 耐固着性：上述のタブレットを１５個垂直に積み重ねた状態となるようマガジンにセットし、２５℃および３０℃の恒温槽内に静置し、８時間後にタブレットの固着状態を確認した。上記の１４箇所あるタブレット接触面のうち、固着して手で分離できない接触面を１、固着しているが容易に分離できる接触面を０．５、固着のしていない接触面を０と点数化し、その合計得点を表４の耐固着性の項に記載した。一般的な連続成型工程で、タブレットは成型装置の自動搬送ユニット内のマガジンに最大２０～４０ｃｍの高さに垂直に積み上げた状態にあり、成型されるまでの間、表面温度約２０～３０℃、最大８～１２時間程度で待機状態にある。成形装置内でのタブレットの供給搬送は、マガジンの最下部より突き上げピンが上昇することで、最上段のタブレットがマガジン上部から押し出され、機械式アームにて持ち上げられて、トランスファー成形用ポットへと搬送される。この際、マガジン内で待機中にタブレットが上下で固着すると搬送不良が発生し、生産性を損なう。

[0103] 煮沸吸水率：低圧トランスファー成形機（コータキ精機（株）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、１７５℃で４時間加熱処理した。試験片の吸湿処理前と、２４時間純水中で煮沸処理後の重量変化を測定し、試験片の吸水率を百分率で示した。単位は%である。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物は、０．２７%以下と低吸水性を示した（参考例１）。

[0104] 耐半田性試験１：低圧トランスファー成形機（第一精工（株）製、ＧＰ－ＥＬＦ）を用いて、金型温度１８０℃、注入圧力７．４ＭＰａ、硬化時間１２０秒間の条件で、半導体封止用樹脂組成物を注入して半導体素子（シリコンチップ）が搭載されたリードフレームなどを封止成形し、８０ｐＱＦＰ（Ｑｕａｄ　Ｆｌａｔ　Ｐａｃｋａｇｅ、Ｃｕ製リードフレーム、サイズは１４×２０ｍｍ×厚さ２．００ｍｍ、半導体素子は７×７ｍｍ×厚さ０．３５ｍｍ、半導体素子とリードフレームのインナーリード部とは２５μｍ径の金線でボンディングされている。）なる半導体装置を作製した。１７５℃で４時間加熱処理した半導体装置６個を、６０℃、相対湿度６０%で１２０時間処理した後、ＩＲリフロー処理（２６０℃、ＪＥＤＥＣ・Ｌｅｖｅｌ２条件に従う）を行った。これらの半導体装置内部の剥離およびクラックの有無を超音波探傷装置（日立建機ファインテック製、ｍｉ－ｓｃｏｐｅ１０）で観察し、剥離またはクラックのいずれか一方でも発生したものを不良とした。不良半導体装置の個数がｎ個であるとき、ｎ／６と表示した。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物は０／６と良好な信頼性を示した。

[0105] 耐半田性試験２：上述の耐半田性試験１における１７５℃で４時間加熱処理した半導体装置６個を８５℃、相対湿度６０%で１６８時間処理とした以外は、耐半田性試験１と同様に試験を実施した。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物を用いて作製した半導体装置は０／６と良好な信頼性を示した。

[0106] 高温保管特性試験：低圧トランスファー成形機（第一精工（株）製、ＧＰ－ＥＬＦ）を用いて、金型温度１８０℃、注入圧力６．９±０．１７ＭＰａ

、９０秒の条件で、半導体封止用樹脂組成物を注入して半導体素子（シリコンチップ）が搭載されたリードフレームなどを封止成形し、１６ピン型ＤＩＰ（Ｄｕａｌ　Ｉｎｌｉｎｅ　Ｐａｃｋａｇｅ、４２アロイ製リードフレーム、サイズは７ｍｍ×１１．５ｍｍ×厚さ１．８ｍｍ、半導体素子は５×９ｍｍ×厚さ０．３５ｍｍ。半導体素子は、表面に厚さ５μｍの酸化層を形成し、さらにその上にラインアンドスペース１０μｍのアルミ配線パターンを形成したものであり、素子上のアルミ配線パッド部とリードフレームパッド部とは２５μｍ径の金線でボンディングされている）なる半導体装置を作製した。ポストキュアとして１７５℃で４時間加熱処理した半導体装置１０個の初期抵抗値を測定し、１８５℃１０００時間の高温保管処理を行った。高温処理後に半導体装置の抵抗値を測定し、初期抵抗値の１３０％となった半導体装置を不良とし、不良半導体装置の個数がｎ個であるとき、ｎ／１０と表示した。上記で得られた半導体封止用樹脂組成物は０／１０と良好な信頼性を示した。

[0107] 実施例２～１１、比較例１～４

表１ないし表３の配合に従い、実施例１と同様にして半導体封止用樹脂組成物を製造し、実施例１と同様にして評価した。評価結果を表１ないし３に示す。

[0108]

[表1]

表1

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
エポキシ樹脂1	9.25	9.34	8.65			
エポキシ樹脂2				8.96		
エポキシ樹脂3					8.46	
エポキシ樹脂4						9.01
フェノール樹脂1	3.25					3.59
フェノール樹脂2		3.16		3.51		
フェノール樹脂3			3.85		4.14	
無機充填剤1	86.50	86.50	86.50	86.50	86.50	86.50
化合物(D1)	0.40	0.40	0.40			
化合物(D2)				0.43		
化合物(D3)					0.30	
化合物(D4)						0.30
シランカップリング剤1	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
シランカップリング剤3	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
着色剤	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
離型剤	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
スパイラルフロー(cm)	110	106	114	124	108	106
耐燃性試験 ΣF(秒)	13	12	24	12	15	14
耐燃性試験 Fmax(秒)	3	2	5	4	2	5
耐燃性試験 クラス	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
連続成型性試験	300	300	300	300	300	300
耐半田性試験1(n=6中の不良数)	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6
耐半田性試験2(n=6中の不良数)	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6
高温保管特性(n=10中の不良数)	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10

[0109]

[表2]

表2

	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11
エポキシ樹脂5	8.76				
エポキシ樹脂6		7.59			
エポキシ樹脂7			7.99		
エポキシ樹脂8				8.31	
エポキシ樹脂9					7.65
フェノール樹脂1			4.51		2.43
フェノール樹脂2	3.89			4.19	
フェノール樹脂3		4.91			2.43
無機充填剤1	86.50	85.50	85.50	86.50	86.50
化合物(D1)		0.40	0.40	0.40	0.40
トリフェニルホスフィン	0.20				
化合物(E)	0.05				
シランカップリング剤1	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
シランカップリング剤3	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
金属水酸化物－1		1.00			
金属水酸化物－2			1.00		
着色剤	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
離型剤	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
スパイラルフロー(cm)	104	108	110	108	96
耐燃性試験　ΣF(秒)	18	18	21	28	48
耐燃性試験　Fmax(秒)	3	6	6	6	9
耐燃性試験　クラス	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
連続成型性試験	300	300	300	300	300
耐半田性試験1(n=6中の不良数)	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6
耐半田性試験2(n=6中の不良数)	0/6	0/6	0/6	0/6	0/6
高温保管特性(n=10中の不良数)	0/10	0/10	0/10	0/10	0/10

[0110]

[表3]

表3

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
エポキシ樹脂1	9.32	7.35	9.37	
エポキシ樹脂8				8.14
フェノール樹脂4	3.18			
フェノール樹脂5		5.15		
フェノール樹脂6			3.13	
フェノール樹脂7				4.36
無機充填剤1	86.50	85.50	86.50	85.50
化合物(D1)	0.40	0.40	0.40	0.40
シランカップリング剤1	0.10	0.10	0.10	0.10
シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05
シランカップリング剤3	0.05	0.05	0.05	0.05
金属水酸化物－1		1.00		
フォスファゼン化合物				1.00
着色剤	0.30	0.30	0.30	0.30
離型剤	0.10	0.10	0.10	0.10
スパイラルフロー(cm)	103	97	82	102
耐燃性試験 ΣF(秒)	34	12	51	11
耐燃性試験 Fmax(秒)	7	3	10	3
耐燃性試験 クラス	V-0	V-0	V-1	V-0
連続成型性試験	250	175	300	150
耐半田性試験1(n=6中の不良数)	0/6	0/6	3/6	0/6
耐半田性試験2(n=6中の不良数)	2/6	0/6	6/6	1/6
高温保管特性(n=10中の不良数)	1/10	8/10	0/10	0/10

[0111] 実施例１～１１は、一般式（１）および一般式（２）で表される構造単位を有する、フェノール樹脂（Ａ）と、エポキシ樹脂（Ｂ）と、無機充填剤（Ｃ）とを含む樹脂組成物であり、フェノール樹脂（Ａ）の構造単位の割合を変更したもの、エポキシ樹脂（Ｂ）の種類を変更したもの、化合物（Ｄ）の種類を変更したもの、化合物（Ｅ）を含むもの、或いは、難燃剤を変更したものであるが、いずれにおいても、流動性（スパイラルフロー）、耐燃性、連続成型性、耐半田性、高温保管特性のバランスに優れた結果が得られた。

一方、フェニレン骨格を有するナフタレンジオールアラルキル樹脂を硬化剤に用いた比較例１は、水酸基密度が高いために吸湿しやいと考えられ、結果として耐半田性結果が十分でないこと、さらに、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との相溶性が十分でないために連続成型性が不十分な結果となった。ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂を硬化剤に用いた比較例２は、低硬化性かつ高親油性であるために、連続成型時に金型表面に樹脂成分が蓄積しやすく、結果として連続成型性が十分でなく、さらにガラス転移点温度が低いために高温保管特性も十分ではない。トリフェニルメタン型フェノール樹脂を硬化剤に用いた比較例３は、架橋密度が高いために燃焼時に樹脂表面にクラックが生じて耐燃性が十分でなく、また水酸基密度と架橋密度が高いために、吸水性が高く、かつ半田リフロー温度における熱応力も高いために耐半田性が十分でない。

[0112] 上記の結果のとおり、本願発明のフェノール樹脂（Ａ）を用いた樹脂組成物を用いた場合においてのみ、流動性（スパイラルフロー）、耐燃性、連続成型性、耐半田性、および高温保管特性のバランスに優れる結果が得られるものであり、期待できる範疇を超えた顕著な効果となっている。

[0113] なお、以下に参考例として実施例１ないし３の樹脂組成物を用いて行った固着性、および吸水性の評価結果を示す。

参考例１、および２から明らかなように実施例１、及び２の樹脂組成物を用いたものは前記特性の優れたバランスに加え、耐固着性にも優れる結果となった。

一方、参考例３に示す実施例３に用いた樹脂組成物は、低吸水性に優れることから更なる過酷な条件における耐半田性にも優れることが期待できる。

従って、より高い信頼性が要求される半導体封止材料に好適に適用できると推察する。

[0114]

[表4]

表4

		参考例1	参考例2	参考例3
エポキシ樹脂1		9.25	9.34	8.65
フェノール樹脂1		3.25		
フェノール樹脂2			3.16	
フェノール樹脂3				3.85
無機充填剤1		86.50	86.50	86.50
化合物(D1)		0.40	0.40	0.40
シランカップリング剤1		0.10	0.10	0.10
シランカップリング剤2		0.05	0.05	0.05
シランカップリング剤3		0.05	0.05	0.05
着色剤		0.30	0.30	0.30
離型剤		0.10	0.10	0.10
	単位			
耐固着性評価(25℃)	(点)	0	2.5	0
耐固着性評価(30℃)	(点)	3.5	6.5	0.5
煮沸吸水率	(%)	0.27	0.27	0.24

[0115] 本発明に従うと、良好な流動性（スパイラルフロー）、耐燃性、耐半田性を有するとともに連続成型性と高温保管特性に優れる、半導体封止用樹脂組成物を得ることができるため、半導体装置封止用として好適である。

[0116] なお、当然ながら、上述した実施の形態および複数の変形例は、その内容が相反しない範囲で組み合わせることができる。また、上述した実施の形態および変形例では、各部の構造などを具体的に説明したが、その構造などは本願発明を満足する範囲で各種に変更することができる。

この出願は、平成２１年６月２２日に出願された日本特許出願特願２００９－１４８０４８を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

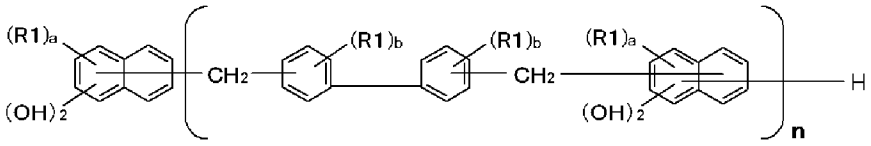
請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表される成分を含むフェノール樹脂（Ａ）と、

エポキシ樹脂（Ｂ）と、

無機充填剤（Ｃ）と、を含むことを特徴とする半導体封止用樹脂組成物。

[化1]

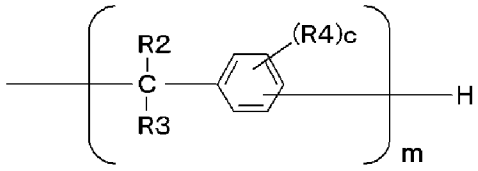


（1）

（一般式（１）において、同一のナフタレン基に結合する２個の水酸基は、ナフタレン環上の異なる炭素原子に結合しており、Ｒ１は、互いに独立して、炭素数１～６０の炭化水素基であり、ａは互いに独立し、０～５の整数、ｂは、互いに独立し０～４の整数である。ｎは１～１０の整数である。）

[請求項2] 前記フェノール樹脂（Ａ）は、前記一般式（１）におけるＲ１が下記一般式（２）で表される基である成分を含む、請求項１に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[化2]



（2）

（一般式（２）において、Ｒ２およびＲ３は、互いに独立し、水素原子、炭素数１～３の炭化水素基であり、Ｒ４は、互いに独立し、炭素数１～３の炭化水素基であり、ｃは、互いに独立し、０～４の整数、ｍは１～５の整数である。）

[請求項3] 前記フェノール樹脂（Ａ）は、ｎ＝０～２の成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、５０質量%以上１００質量%以下含有するものであ

る請求項１または２に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[請求項4] 前記フェノール樹脂（Ａ）は、ｎ＝０の成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、２５質量%以上７０質量%以下含むものである請求項１ないし３のいずれか１項に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[請求項5] 前記フェノール樹脂（Ａ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定方法における面積換算法において、Ｒ１が前記一般式（２）で表される基である成分を、全フェノール樹脂（Ａ）中に、２０面積%以上８０面積%以下含有するものである請求項２ないし４のいずれか１項に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[請求項6] 請求項１ないし５のいずれか１項に記載の半導体封止用樹脂組成物を用い、半導体素子を封止してなる半導体装置。