

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7635709号
(P7635709)

(45)発行日 令和7年2月26日(2025.2.26)

(24)登録日 令和7年2月17日(2025.2.17)

(51)国際特許分類
 C 0 8 G 59/40 (2006.01)
 H 0 1 L 23/29 (2006.01)
 H 0 1 L 23/31 (2006.01)
 H 0 1 L 21/56 (2006.01)

F I
 C 0 8 G 59/40
 H 0 1 L 23/30 R
 H 0 1 L 21/56 R

請求項の数 5 (全20頁)

(21)出願番号 特願2021-527800(P2021-527800)
 (86)(22)出願日 令和2年6月26日(2020.6.26)
 (86)国際出願番号 PCT/JP2020/025356
 (87)国際公開番号 WO2020/262654
 (87)国際公開日 令和2年12月30日(2020.12.30)
 審査請求日 令和5年6月23日(2023.6.23)
 (31)優先権主張番号 特願2019-118699(P2019-118699)
 (32)優先日 令和1年6月26日(2019.6.26)
 (33)優先権主張国・地域又は機関
 日本国(JP)

(73)特許権者 000004455
 株式会社レゾナック
 東京都港区東新橋一丁目9番1号
 (74)代理人 110001519
 弁理士法人太陽国際特許事務所
 斎藤 貴大
 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号
 日立化成株式会社内
 山浦 格
 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号
 日立化成株式会社内
 (72)発明者 春日 圭一
 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号
 日立化成株式会社内
 (72)発明者 佐藤 貴浩
 審査官

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 封止用樹脂組成物、電子部品装置及び電子部品装置の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

エポキシ樹脂と、活性エステル化合物を含む硬化剤とを含有し、前記活性エステル化合物の前記エポキシ樹脂に対する当量比(活性エステル化合物/エポキシ樹脂)が0.5以上0.64以下である、封止用樹脂組成物。

【請求項2】

前記硬化剤がフェノール硬化剤をさらに含む、請求項1に記載の封止用樹脂組成物。

【請求項3】

前記硬化剤全体の前記エポキシ樹脂に対する当量比(硬化剤全体/エポキシ樹脂)が0.5~1.2である、請求項1又は請求項2に記載の封止用樹脂組成物。

10

【請求項4】

支持部材と、前記支持部材上に配置された素子と、前記素子を封止している請求項1~請求項3のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物の硬化物と、を備える電子部品装置。

【請求項5】

素子を支持部材上に配置する工程と、前記素子を請求項1~請求項3のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物で封止する工程と、を含む電子部品装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、封止用樹脂組成物、電子部品装置及び電子部品装置の製造方法に関する。

20

【背景技術】

【0002】

通信のために発信された電波が誘電体において熱変換されることで発生する伝送損失の量は、周波数と比誘電率の平方根と誘電正接との積として表される。つまり伝送信号は周波数に比例して熱に変わりやすいので、伝送損失を抑制するために高周波帯ほど通信部材の材料に低誘電特性が要求される。

【0003】

例えば特許文献1～2には、エポキシ樹脂用硬化剤として活性エステル樹脂を含有する熱硬化性樹脂組成物が開示されており、硬化物の誘電正接を低く抑えることができるとされている。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】特開2012-246367号公報

【文献】特開2014-114352号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

情報通信分野においては、チャンネル数の増加と伝送される情報量の増加にともなって電波の高周波化が進行している。現在、第5世代移動通信システム(5G)の検討が世界的に進められており、使用する周波帯の候補に約30GHz～70GHzの範囲の幾つかが挙げられている。今後は無線通信の主流がこれほどの高周波帯での通信になるため、通信部材の製造に用いる材料にはさらなる誘電正接の低さが求められている。

20

さらに、これらの材料はパッケージの作製工程におけるプロセス適用性を満たす必要がある。例えば、半導体パッケージ作製の際に基板とチップとを封止用樹脂組成物で封止したのちに再配線層を形成する場合があり、その際にアルカリ性溶液が用いられる。しかしながら、活性エステル化合物を硬化剤として用いた封止用樹脂組成物は、アルカリ性溶液に対する耐薬液性に改善の余地がある。

【0006】

本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、誘電正接が低く、耐薬液性に優れる硬化物が得られる封止用樹脂組成物、これを用いて封止された電子部品装置、及びこれを用いて封止する電子部品装置の製造方法を提供することを課題とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0007】

前記課題を解決するための具体的手段には、以下の態様が含まれる。

<1>エポキシ樹脂と、活性エステル化合物を含む硬化剤とを含有し、前記活性エステル化合物の前記エポキシ樹脂に対する当量比(活性エステル化合物/エポキシ樹脂)が0.9以下である、封止用樹脂組成物。

<2>前記活性エステル化合物の前記エポキシ樹脂に対する当量比(活性エステル化合物/エポキシ樹脂)が0.5以上である、<1>に記載の封止用樹脂組成物。

40

<3>前記硬化剤全体の前記エポキシ樹脂に対する当量比(硬化剤全体/エポキシ樹脂)が0.5～1.2である、<1>又は<2>に記載の封止用樹脂組成物。

<4>支持部材と、前記支持部材上に配置された素子と、前記素子を封止している<1>～<3>のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物の硬化物と、を備える電子部品装置。

<5>素子を支持部材上に配置する工程と、前記素子を<1>～<3>のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物で封止する工程と、を含む電子部品装置の製造方法。

【発明の効果】

【0008】

本開示によれば、誘電正接が低く、耐薬液性に優れる硬化物が得られる封止用樹脂組成物、これを用いて封止された電子部品装置、及びこれを用いて封止する電子部品装置の製

50

造方法が提供される。

【発明を実施するための形態】

【0009】

本開示において「工程」との語には、他の工程から独立した工程に加え、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の目的が達成されれば、当該工程も含まれる。

本開示において「～」を用いて示された数値範囲には、「～」の前後に記載される数値がそれぞれ最小値及び最大値として含まれる。

本開示中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてよい。また、本開示中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてよい。

本開示において各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、各成分の含有率又は含有量は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率又は含有量を意味する。

本開示において各成分に該当する粒子は複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する粒子が複数種存在する場合、各成分の粒径は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の粒子の混合物についての値を意味する。

【0010】

本開示において「活性エステル化合物」とは、エポキシ基と反応しうるエステル基（活性エステル基）を1分子中に1個以上有し、エポキシ樹脂の硬化作用を有する化合物をいう。

【0011】

<封止用樹脂組成物>

本開示の封止用樹脂組成物は、エポキシ樹脂と、活性エステル化合物を含む硬化剤とを含有し、前記活性エステル化合物の前記エポキシ樹脂に対する当量比（活性エステル化合物／エポキシ樹脂）が0.9以下である、封止用樹脂組成物である。

【0012】

本発明者らの検討の結果、上記構成を有する封止用樹脂組成物を硬化して得られる硬化物は誘電正接が低く、かつ耐薬液性に優れていることがわかった。その理由は必ずしも明らかではないが、以下のように考えられる。

【0013】

まず、本開示の封止用樹脂組成物は、硬化剤として活性エステル化合物を含んでいる。エポキシ樹脂の硬化剤として一般的に用いられるフェノール硬化剤、アミン硬化剤等は、エポキシ樹脂との反応において2級水酸基を生じる。これに対してエポキシ樹脂と活性エステル化合物との反応では、2級水酸基よりも極性が低いエステル基が生じる。このため、本開示の封止用樹脂組成物は、2級水酸基を発生させる硬化剤のみを含有する封止用樹脂組成物に比べて、硬化物の誘電正接を低く抑えることができる。

【0014】

さらに、本開示の封止用樹脂組成物は、活性エステル化合物のエポキシ樹脂に対する当量比が0.9を超える封止用樹脂組成物に比べて耐薬液性に優れている。その理由は必ずしも明らかではないが、以下のように考えられる。

【0015】

エポキシ樹脂の硬化剤として活性エステル化合物を用いた封止用樹脂組成物では、エポキシ基と活性エステル基との反応により硬化物中にエステル基が生成する。エステル基はアルカリ条件下において加水分解が進行するため、耐薬液性の低下の原因になると考えられる。本開示の封止用樹脂組成物では、エポキシ基に対する活性エステル基の数が一定水準以下に抑えられている。このため、エポキシ基と活性エステル基との反応によるエステル基の生成が抑制されて、良好な耐薬液性が維持されると考えられる。

【0016】

良好な耐薬液性を得る観点からは、封止用樹脂組成物中の活性エステル化合物のエポキ

10

20

30

40

50

シ樹脂に対する当量比（活性エステル化合物／エポキシ樹脂）は0.8以下であってもよく、0.7以下であってもよい。

封止用樹脂組成物中の活性エステル化合物のエポキシ樹脂に対する当量比（活性エステル化合物／エポキシ樹脂）の下限値は、特に制限されない。硬化物の誘電正接を低減する観点からは、0.5以上であってもよく、0.6以上であってもよい。

【0017】

本開示の封止用樹脂組成物は、硬化剤として活性エステル化合物のみを含んでいても、活性エステル化合物以外の硬化剤（フェノール硬化剤、アミン硬化剤、酸無水物硬化剤等）をさらに含んでいてもよい。封止用樹脂組成物が硬化剤として活性エステル化合物と、活性エステル化合物以外の硬化剤とを含む場合、硬化剤全体のエポキシ樹脂に対する当量比（硬化剤全体／エポキシ樹脂）は特に制限されない。例えば、0.5～1.2の範囲内であってもよい。

10

【0018】

本開示の封止用樹脂組成物は、活性エステル化合物のエポキシ樹脂に対する当量比が0.9以下であるため、活性エステル基と反応しないエポキシ基を含んでいる。活性エステル基と反応しないエポキシ基は、活性エステル化合物以外の硬化剤の官能基（水酸基等）と反応しても、エポキシ基の自己重合反応を生じてもよい。エポキシ基の自己重合反応は、エポキシ基と活性エステル基との反応に先んじて進行してエーテル結合を生じる。エーテル結合はアルカリ条件下で加水分解しないため、良好な耐薬液性が維持される。

20

【0019】

（エポキシ樹脂）

本開示の封止用樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂の種類は特に制限されない。

エポキシ樹脂として具体的には、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール化合物及び-ナフトール、-ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等の脂肪族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものであるノボラック型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等）；上記フェノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂；上記フェノール化合物及びナフトール化合物と、アルデヒド化合物とを酸性触媒下で共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものである共重合型エポキシ樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールF等のジグリシジルエーテルであるジフェニルメタン型エポキシ樹脂；アルキル置換又は非置換のビフェノールのジグリシジルエーテルであるビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン系フェノール化合物のジグリシジルエーテルであるスチルベン型エポキシ樹脂；ビスフェノールS等のジグリシジルエーテルである硫黄原子含有エポキシ樹脂；ブタンジオール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等のアルコール類のグリシジルエーテルであるエポキシ樹脂；フタル酸、イソフタル酸、テトラヒドロフタル酸等の多価カルボン酸化合物のグリシジルエステルであるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；アニリン、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等の窒素原子に結合した活性水素をグリシジル基で置換したものであるグリシジルアミン型エポキシ樹脂；ジシクロペントジエンとフェノール化合物の共縮合樹脂をエポキシ化したものであるジシクロペントジエン型エポキシ樹脂；分子内のオレフィン結合をエポキシ化したものであるビニルシクロヘキセンジエポキシド、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、2-(3,4-エポキシ)シクロヘキシル-5,5-スピロ(3,4-エポキシ)シクロヘキサン-m-ジオキサン等の脂環型エポキシ樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるパラキシリレン変性エポキシ樹脂；メタキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるメタキ

30

40

50

シリレン変性エポキシ樹脂；テルペン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるテルペン変性エポキシ樹脂；ジシクロペニタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるジシクロペニタジエン変性エポキシ樹脂；シクロペニタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるシクロペニタジエン変性エポキシ樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルである多環芳香環変性エポキシ樹脂；ナフタレン環含有フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるナフタレン型エポキシ樹脂；ハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂；ハイドロキノン型エポキシ樹脂；トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂；フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるアラルキル型エポキシ樹脂；などが挙げられる。さらにはアクリル樹脂のエポキシ化物等もエポキシ樹脂として挙げられる。これらのエポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0020】

エポキシ樹脂のエポキシ当量（分子量／エポキシ基数）は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性及び電気的信頼等の各種特性バランスの観点からは、100g／eq～1000g／eqであることが好ましく、150g／eq～500g／eqであることがより好ましい。

【0021】

エポキシ樹脂のエポキシ当量は、JIS K 7236：2009に準じた方法で測定される値とする。

【0022】

エポキシ樹脂の軟化点又は融点は特に制限されない。成形性と耐リフロー性の観点からは40～180であることが好ましく、封止用樹脂組成物の調製の際の取扱い性の観点からは50～130であることがより好ましい。

【0023】

エポキシ樹脂の融点又は軟化点は、JIS K 7234：1986及びJIS K 7233：1986に記載の単一円筒回転粘度計法により測定される値とする。

【0024】

封止用樹脂組成物中のエポキシ樹脂の含有率は、強度、流動性、耐熱性、成形性等の観点から0.5質量%～50質量%であることが好ましく、2質量%～30質量%であることがより好ましい。

【0025】

（硬化剤）

本開示の封止用樹脂組成物は、硬化剤として少なくとも活性エステル化合物を含む。本開示の封止用樹脂組成物は、活性エステル化合物以外の硬化剤を含んでもよい。

【0026】

本開示の封止用樹脂組成物は、先述のとおり、硬化剤として活性エステル化合物を用いることによって、硬化物の誘電正接を低く抑えることができる。

また、硬化物中の極性基は硬化物の吸水性を高めるところ、硬化剤として活性エステル化合物を用いることによって硬化物の極性基濃度を抑えることができ、硬化物の吸水性を抑制することができる。そして、硬化物の吸水性を抑制すること、つまりは極性分子であるH₂Oの含有量を抑制することにより、硬化物の誘電正接をさらに低く抑えることができる。硬化物の吸水率は、0%～0.35%が好ましく、0%～0.30%がより好ましく、0%～0.25%がさらに好ましい。ここで硬化物の吸水率は、プレッシャークッカ一試験（121、2.1気圧、24時間）によって求める質量増加率である。

【0027】

活性エステル化合物は、エポキシ基と反応するエステル基を分子中に1個以上有する化合物であればその種類は特に制限されない。

【0028】

活性エステル化合物としては、フェノールエステル化合物、チオフェノールエステル化

10

20

30

40

50

合物、N-ヒドロキシアミンエステル化合物、複素環ヒドロキシ化合物のエステル化物等が挙げられる。

〔 0 0 2 9 〕

活性エステル化合物としては、例えば、脂肪族カルボン酸及び芳香族カルボン酸の少なくとも1種と脂肪族ヒドロキシ化合物及び芳香族ヒドロキシ化合物の少なくとも1種から得られるエステル化合物が挙げられる。脂肪族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、脂肪族鎖を有することによりエポキシ樹脂との相溶性に優れる傾向にある。芳香族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、芳香環を有することにより耐熱性に優れる傾向にある。

(0 0 3 0)

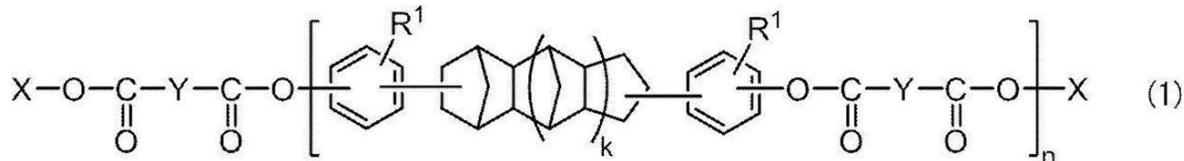
活性エステル化合物の具体例としては、芳香族カルボン酸と芳香族ヒドロキシ化合物のフェノール性水酸基との縮合反応にて得られる芳香族エステルが挙げられる。中でも、ベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、ジフェニルプロパン、ジフェニルメタン、ジフェニルエーテル、ジフェニルスルホン酸等の芳香環の水素原子の2～4個をカルボキシ基で置換した芳香族カルボン酸成分と、前記した芳香環の水素原子の1個を水酸基で置換した1価フェノールと、前記した芳香環の水素原子の2～4個を水酸基で置換した多価フェノールとの混合物を原材料として、芳香族カルボン酸と芳香族ヒドロキシ化合物のフェノール性水酸基との縮合反応にて得られる芳香族エステルが好ましい。すなわち、上記芳香族カルボン酸成分由来の構造単位と上記1価フェノール由来の構造単位と上記多価フェノール由来の構造単位とを有する芳香族エステルが好ましい。

【 0 0 3 1 】

活性エステル化合物の具体例としては、特開2012-246367号公報に記載されている、脂肪族環状炭化水素基を介してフェノール化合物が結節された分子構造を有するフェノール樹脂と、芳香族ジカルボン酸又はそのハライドと、芳香族モノヒドロキシ化合物とを反応させて得られる構造を有する活性エステル樹脂が挙げられる。当該活性エステル樹脂としては、下記の構造式(1)で表される化合物が好ましい。

〔 0 0 3 2 〕

【化 1 】



【 0 0 3 3 】

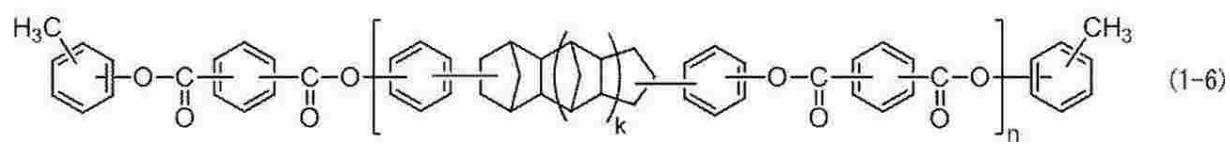
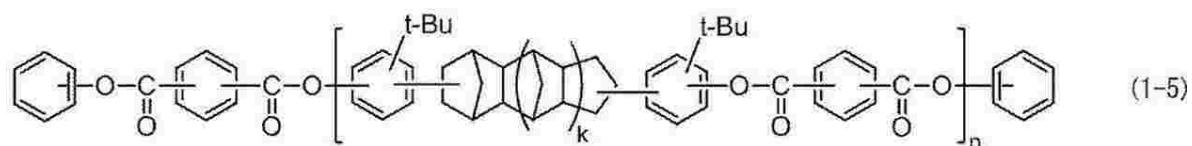
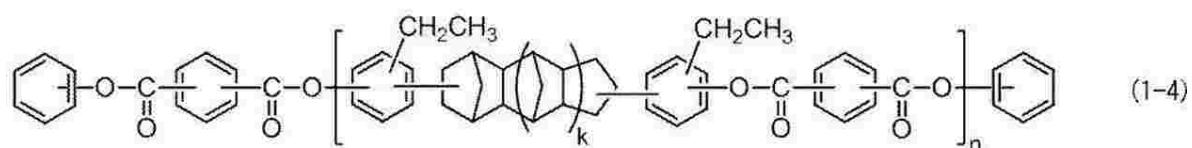
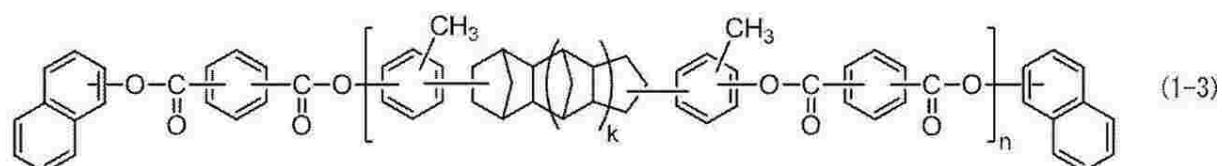
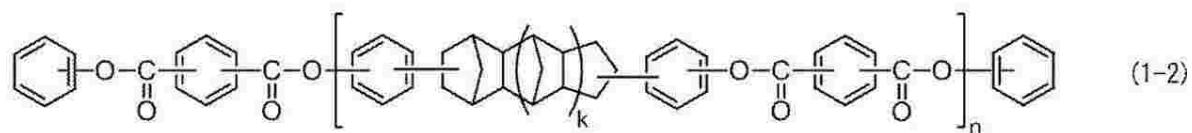
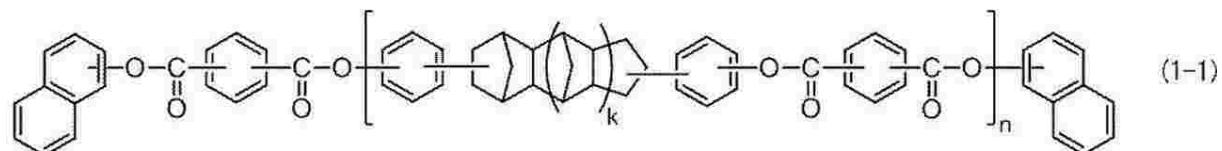
構造式(1)中、R¹は炭素数1～4のアルキル基であり、Xはベンゼン環、ナフタレン環、炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環、又はビフェニル基であり、Yはベンゼン環、ナフタレン環、又は炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環であり、kは0又は1であり、nは繰り返し数の平均を表し0.25～1.5である。

(0 0 3 4)

構造式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物(1-1)～(1-10)が挙げられる。構造式中のt-Buは、tert-ブチル基である。

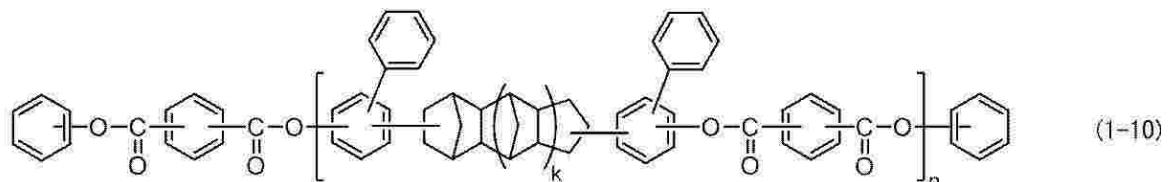
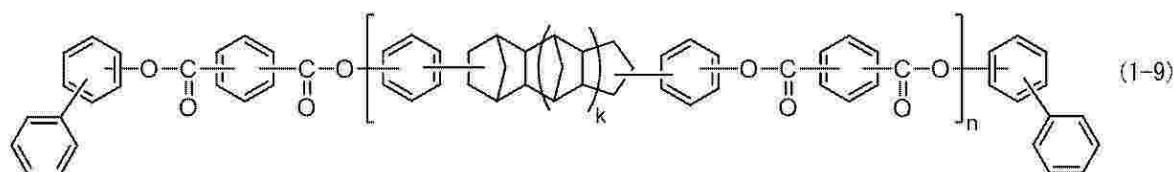
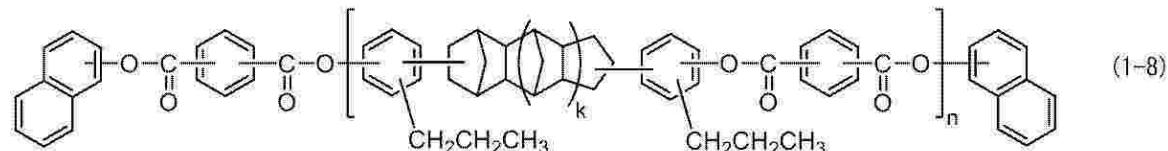
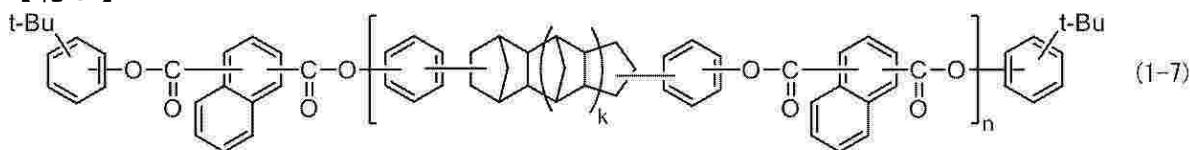
(0 0 3 5)

【化 2】



【0036】

【化 3】

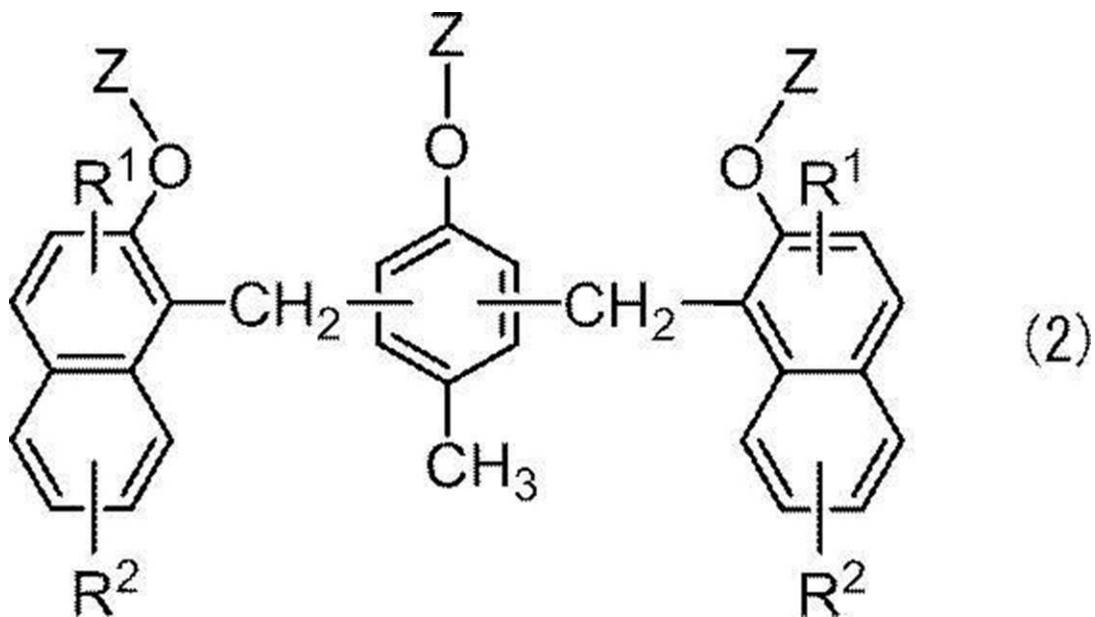


【0037】

活性エステル化合物の別の具体例としては、特開2014-114352号公報に記載されている、下記の構造式(2)で表される化合物及び下記の構造式(3)で表される化合物が挙げられる。

【0038】

【化4】



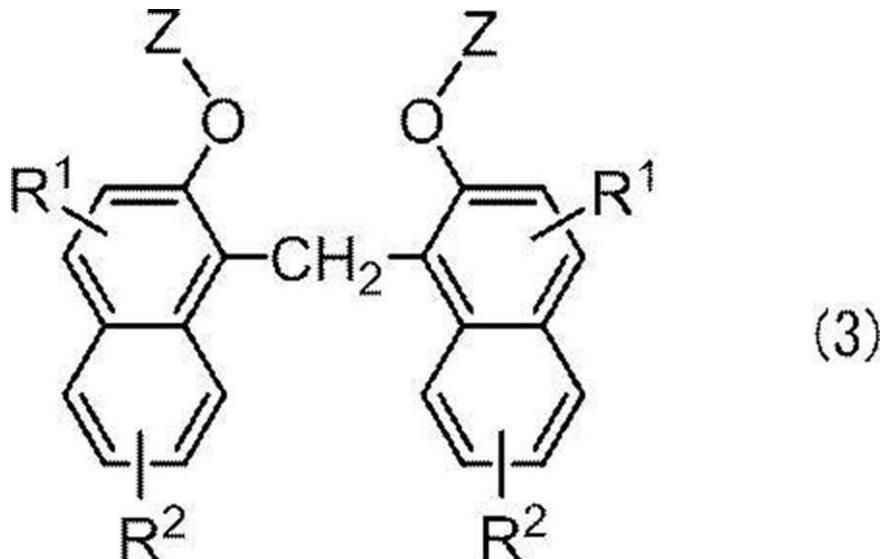
【0039】

構造式(2)中、R¹及びR²はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数1～4のアルコキシ基であり、Zはベンゾイル基、ナフトイル基、炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゾイル基又はナフトイル基、及び炭素数2～6のア

シル基からなる群から選ばれるエステル形成構造部位 (z 1)、又は水素原子 (z 2) であり、Z のうち少なくとも 1 個はエステル形成構造部位 (z 1) である。

【0040】

【化5】



【0041】

構造式 (3) 中、R¹ 及び R² はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、又は炭素数 1 ~ 4 のアルコキシ基であり、Z はベンゾイル基、ナフトイル基、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基で置換されたベンゾイル基又はナフトイル基、及び炭素数 2 ~ 6 のアシル基からなる群から選ばれるエステル形成構造部位 (z 1)、又は水素原子 (z 2) であり、Z のうち少なくとも 1 個はエステル形成構造部位 (z 1) である。

【0042】

構造式 (2) で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物 (2-1) ~ (2-6) が挙げられる。

【0043】

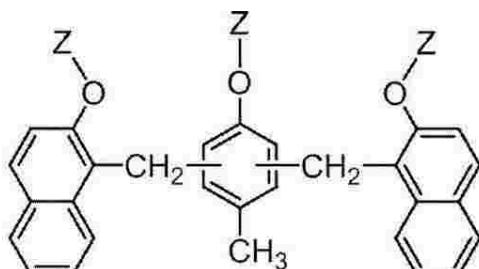
20

30

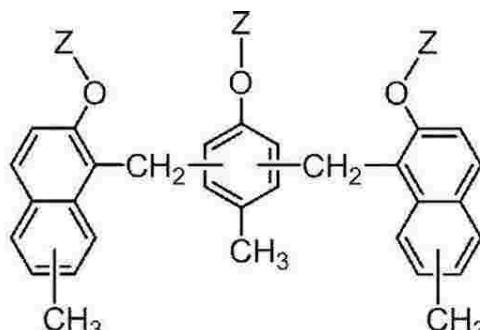
40

50

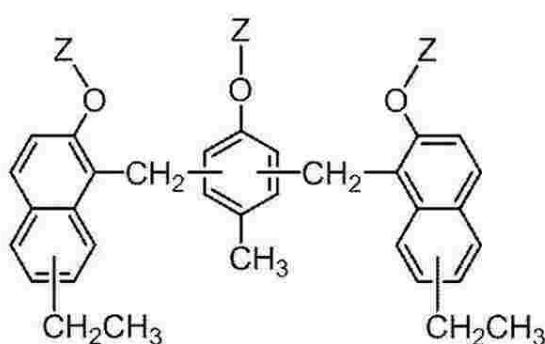
【化6】



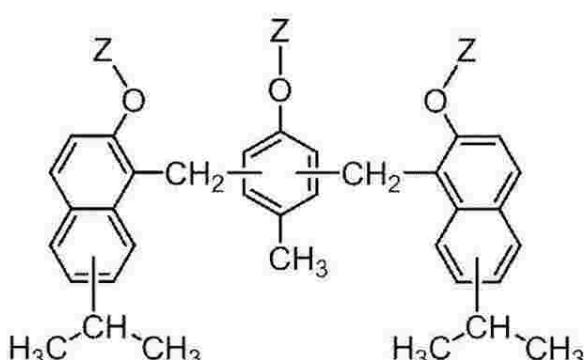
(2-1)



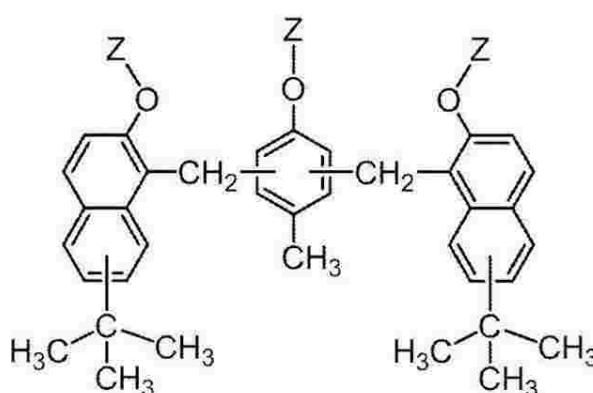
(2-2)



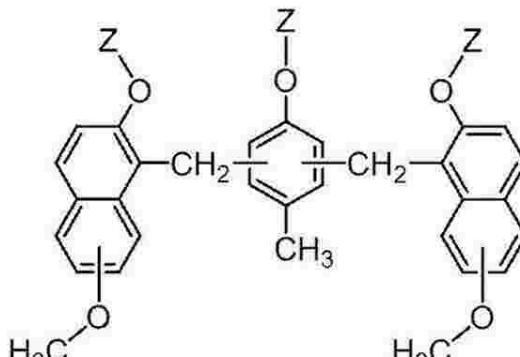
(2-3)



(2-4)



(2-5)



(2-6)

【0044】

構造式(3)で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物(3-1)～(3-6)が挙げられる。

【0045】

10

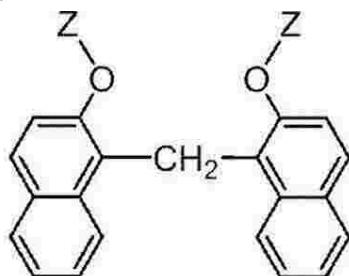
20

30

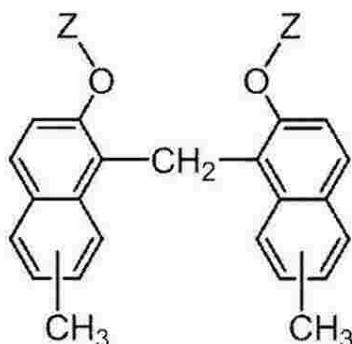
40

50

【化7】

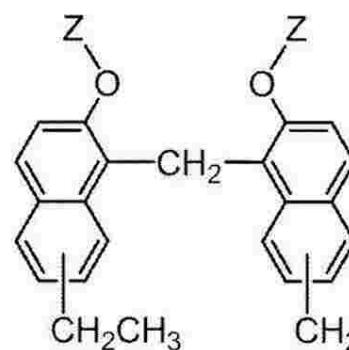


(3-1)

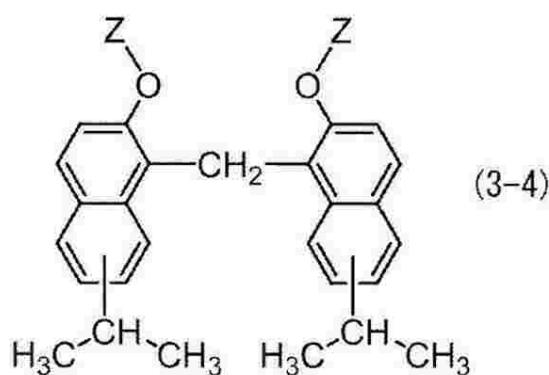


(3-2)

10

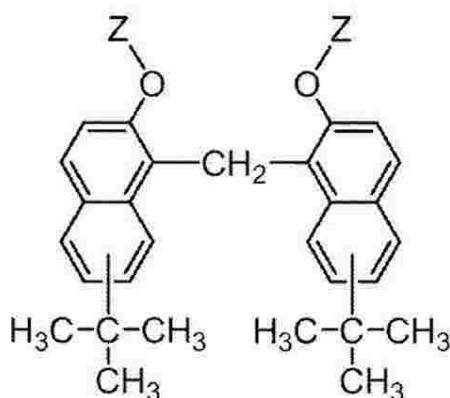


(3-3)

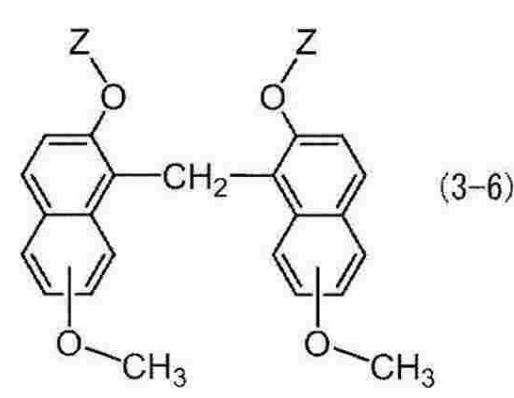


(3-4)

20



(3-5)



(3-6)

30

【0046】

活性エステル化合物としては、市販品を用いてもよい。活性エステル化合物の市販品としては、ジシクロペントジエン型ジフェノール構造を含む活性エステル化合物として「EXB9451」、「EXB9460」、「EXB9460S」、「HPC-8000-65T」(DIC株式会社製)；芳香族構造を含む活性エステル化合物として「EXB9416-70BK」、「EXB-8」、「EXB-9425」(DIC株式会社製)；フェノールノボラックのアセチル化物を含む活性エステル化合物として「DC808」(三菱ケミカル株式会社製)；フェノールノボラックのベンゾイル化物を含む活性エステル化合物として「YLH1026」(三菱ケミカル株式会社製)等が挙げられる。

40

【0047】

活性エステル化合物は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0048】

活性エステル化合物のエステル当量(分子量/活性エステル基数)は、特に制限されな

50

い。成形性、耐リフロー性、電気的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、150 g / eq ~ 400 g / eq が好ましく、170 g / eq ~ 300 g / eq がより好ましく、200 g / eq ~ 250 g / eq がさらに好ましい。

【0049】

活性エステル化合物のエステル当量は、JIS K 0070 : 1992 に準じた方法により測定される値とする。

【0050】

硬化剤は、活性エステル化合物以外のその他の硬化剤を含んでもよい。この場合、その他の硬化剤の種類は特に制限されず、封止用樹脂組成物の所望の特性等に応じて選択できる。その他の硬化剤としては、フェノール硬化剤、アミン硬化剤、酸無水物硬化剤、ポリメルカブタン硬化剤、ポリアミノアミド硬化剤、イソシアネート硬化剤、ロックイソシアネート硬化剤等が挙げられる。

10

【0051】

フェノール硬化剤として具体的には、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、置換又は非置換のビフェノール等の多価フェノール化合物；フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール化合物及び - ナフトール、 - ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等のアルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック型フェノール樹脂；上記フェノール性化合物と、ジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ビフェニル等とから合成され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等のアラルキル型フェノール樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂、メタキシリレン変性フェノール樹脂；メラミン変性フェノール樹脂；テルペン変性フェノール樹脂；上記フェノール性化合物と、ジシクロペンタジエンとから共重合により合成されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂及びジシクロペンタジエン型ナフトール樹脂；シクロペンタジエン変性フェノール樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂；ビフェニル型フェノール樹脂；上記フェノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂；これら2種以上を共重合して得たフェノール樹脂などが挙げられる。これらのフェノール硬化剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてよい。

20

【0052】

その他の硬化剤の官能基当量(フェノール硬化剤の場合は水酸基当量)は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性、電気的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、70 g / eq ~ 1000 g / eq であることが好ましく、80 g / eq ~ 500 g / eq であることがより好ましい。

30

【0053】

その他の硬化剤の官能基当量(フェノール硬化剤の場合は水酸基当量)は、JIS K 0070 : 1992 に準じた方法により測定される値とする。

40

【0054】

硬化剤の軟化点又は融点は、特に制限されない。成形性と耐リフロー性の観点からは、40 ~ 180 であることが好ましく、封止用樹脂組成物の製造時における取扱い性の観点からは、50 ~ 160 であることがより好ましい。

【0055】

硬化剤の融点又は軟化点は、JIS K 7234 : 1986 及び JIS K 7233 : 1986 に記載の单一円筒回転粘度計法により測定される値とする。

【0056】

活性エステル化合物及びその他の硬化剤の全質量に対する活性エステル化合物の含有率は、硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、50質量%以上であることが好ましく、6

50

0質量%以上であることがより好ましく、70質量%以上であることがさらに好ましい。

【0057】

エポキシ樹脂、活性エステル化合物及びその他の硬化剤の全質量に対するエポキシ樹脂及び活性エステル化合物の合計含有率は、硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、70質量%以上であることが好ましく、75質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましい。

【0058】

(硬化促進剤)

封止用樹脂組成物は、硬化促進剤を含んでもよい。硬化促進剤の種類は特に制限されず、エポキシ樹脂又は硬化剤の種類、封止用樹脂組成物の所望の特性等に応じて選択できる。

【0059】

硬化促進剤としては、1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]ノネン-5(DBN)、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7(DBU)等のジアザビシクロアルケン、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルヒドロキシイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール等の環状アミジン化合物；前記環状アミジン化合物の誘導体；前記環状アミジン化合物又はその誘導体のフェノールノボラック塩；これらの化合物に無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5-トルキノン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジメチルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノン、フェニル-1,4-ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニルメタンなどの、結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；DBUのテトラフェニルボレート塩、DBNのテトラフェニルボレート塩、2-エチル-4-メチルイミダゾールのテトラフェニルボレート塩、N-メチルモルホリンのテトラフェニルボレート塩等の環状アミジニウム化合物；ピリジン、トリエチルアミン、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール等の三級アミン化合物；前記三級アミン化合物の誘導体；酢酸テトラ-n-ブチルアンモニウム、リン酸テトラ-n-ブチルアンモニウム、酢酸テトラエチルアンモニウム、安息香酸テトラ-n-ヘキシリアンモニウム、水酸化テトラプロピルアンモニウム等のアンモニウム塩化合物；トリフェニルホスフィン、ジフェニル(p-トリル)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、トリス(アルキル・アルコキシフェニル)ホスフィン、トリス(ジアルキルフェニル)ホスフィン、トリス(トリアルキルフェニル)ホスフィン、トリス(テトラアルキルフェニル)ホスフィン、トリス(ジアルコキシフェニル)ホスフィン、トリス(トリアルコキシフェニル)ホスフィン、トリス(テトラアルコキシフェニル)ホスフィン、トリアルキルホスフィン、ジアルキルアリールホスフィン、アルキルジアリールホスフィン等の三級ホスフィン；前記三級ホスフィンと有機ボロン類との錯体等のホスフィン化合物；前記三級ホスフィン又は前記ホスフィン化合物と無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5-トルキノン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジメチルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノン、フェニル-1,4-ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニルメタンなどの、結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；前記三級ホスフィン又は前記ホスフィン化合物と4-ブロモフェノール、3-ブロモフェノール、2-ブロモフェノール、4-クロロフェノール、3-クロロフェノール、2-クロロフェノール、4-ヨウ化フェノール、3-ヨウ化フェノール、2-ヨウ化フェノール、4-ブロモ-2-メチルフェノール、4-ブロモ-3-メチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジメチルフェノール、4-ブロモ-3,5-ジメチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジ-tert-ブチルフェノール、4-クロロ-1-ナフトール、1-ブロモ-2-ナフトール、6-ブロモ-2-ナフトール、4-ブロモ-4'-ヒドロキシビフェニル等のハロゲン化フェノール化合物を反応させ

10

20

30

40

50

た後に、脱ハロゲン化水素の工程を経て得られる、分子内分極を有する化合物；テトラフェニルホスホニウム等のテトラ置換ホスホニウム、テトラ-*p*-トリルボレート等のホウ素原子に結合したフェニル基がないテトラ置換ホスホニウム及びテトラ置換ボレート；テトラフェニルホスホニウムとフェノール化合物との塩などが挙げられる。

【0060】

封止用樹脂組成物が硬化促進剤を含む場合、その量は、樹脂成分100質量部（エポキシ樹脂と硬化剤の合計量）に対して0.1質量部～30質量部であることが好ましく、1質量部～15質量部であることがより好ましい。硬化促進剤の量が樹脂成分100質量部に対して0.1質量部以上であると、短時間で良好に硬化する傾向にある。硬化促進剤の量が樹脂成分100質量部に対して30質量部以下であると、硬化速度が速すぎず良好な成形品が得られる傾向にある。

10

【0061】

（無機充填材）

本開示の封止用樹脂組成物は、無機充填材を含有してもよい。無機充填材の種類は、特に制限されない。具体的には、溶融シリカ、結晶シリカ、ガラス、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、タルク、クレー、マイカ等の無機材料が挙げられる。難燃効果を有する無機充填材を用いてもよい。難燃効果を有する無機充填材としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、マグネシウムと亜鉛の複合水酸化物等の複合金属水酸化物、硼酸亜鉛などが挙げられる。

【0062】

無機充填材の中でも、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカ等のシリカが好ましく、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましい。無機充填材は1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。無機充填材の形態としては粉末、粉末を球形化したビーズ、繊維等が挙げられる。

20

【0063】

無機充填材が粒子状である場合、その平均粒径は、特に制限されない。例えば、平均粒径が0.2μm～100μmであることが好ましく、0.5μm～50μmであることがより好ましい。平均粒径が0.2μm以上であると、封止用樹脂組成物の粘度の上昇がより抑制される傾向がある。平均粒径が100μm以下であると、充填性がより向上する傾向にある。無機充填材の平均粒径は、レーザー散乱回折法粒度分布測定装置により、体積平均粒径（D50）として求める。

30

【0064】

封止用樹脂組成物に含まれる無機充填材の含有率は特に制限されない。流動性及び強度の観点からは、封止用樹脂組成物全体の30体積%～90体積%であることが好ましく、35体積%～85体積%であることがより好ましく、40体積%～80体積%であることがさらに好ましい。無機充填材の含有率が封止用樹脂組成物全体の30体積%以上であると、硬化物の熱膨張係数、熱伝導率、弾性率等の特性がより向上する傾向にある。無機充填材の含有率が封止用樹脂組成物全体の90体積%以下であると、封止用樹脂組成物の粘度の上昇が抑制され、流動性がより向上して成形性がより良好になる傾向にある。

40

【0065】

〔各種添加剤〕

封止用樹脂組成物は、上述の成分に加えて、以下に例示するカップリング剤、イオン交換体、離型剤、難燃剤、着色剤等の各種添加剤を含んでもよい。封止用樹脂組成物は、以下に例示する添加剤以外にも必要に応じて当技術分野で周知の各種添加剤を含んでもよい。

【0066】

（カップリング剤）

封止用樹脂組成物は、カップリング剤を含んでもよい。樹脂成分と無機充填材との接着性を高める観点からは、封止用樹脂組成物はカップリング剤を含むことが好ましい。カップリング剤としては、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン、ジシラザン等のシラン系化合物、チタン系化合物、

50

アルミニウムキレート化合物、アルミニウム／ジルコニウム系化合物などの公知のカップリング剤が挙げられる。

【0067】

封止用樹脂組成物がカップリング剤を含む場合、カップリング剤の量は、無機充填材100質量部に対して0.05質量部～1.5質量部であることが好ましく、0.1質量部～1.0質量部であることがより好ましい。カップリング剤の量が無機充填材100質量部に対して0.05質量部以上であると、フレームとの接着性がより向上する傾向にある。カップリング剤の量が無機充填材100質量部に対して1.5質量部以下であると、パッケージの成形性がより向上する傾向にある。

【0068】

(イオン交換体)

封止用樹脂組成物は、イオン交換体を含んでもよい。封止用樹脂組成物は、封止される素子を備える電子部品装置の耐湿性及び高温放置特性を向上させる観点から、イオン交換体を含むことが好ましい。イオン交換体は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ハイドロタルサイト化合物、並びにマグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム及びビスマスからなる群より選ばれる少なくとも1種の元素の含水酸化物等が挙げられる。イオン交換体は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。中でも、下記一般式(A)で表されるハイドロタルサイトが好ましい。

【0069】



【0070】

封止用樹脂組成物がイオン交換体を含む場合、その含有量は、ハロゲンイオン等のイオンを捕捉するのに充分な量であれば特に制限はない。例えば、樹脂成分100質量部(エポキシ樹脂と硬化剤の合計量)に対して0.1質量部～3.0質量部であることが好ましく、1質量部～1.0質量部であることがより好ましい。

【0071】

(離型剤)

封止用樹脂組成物は、成形時における金型との良好な離型性を得る観点から、離型剤を含んでもよい。離型剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸等の高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、酸化ポリエチレン、非酸化ポリエチレン等のポリオレフィン系ワックスなどが挙げられる。離型剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0072】

封止用樹脂組成物が離型剤を含む場合、その量は樹脂成分100質量部(エポキシ樹脂と硬化剤の合計量)に対して0.01質量部～1.0質量部が好ましく、0.1質量部～5質量部がより好ましい。離型剤の量が樹脂成分100質量部に対して0.01質量部以上であると、離型性が充分に得られる傾向にある。1.0質量部以下であると、より良好な接着性が得られる傾向にある。

【0073】

(難燃剤)

封止用樹脂組成物は、難燃剤を含んでもよい。難燃剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ハロゲン原子、アンチモン原子、窒素原子又はリン原子を含む有機又は無機の化合物、金属水酸化物等が挙げられる。難燃剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0074】

封止用樹脂組成物が難燃剤を含む場合、その量は、所望の難燃効果を得るのに充分な量であれば特に制限されない。例えば、樹脂成分100質量部(エポキシ樹脂と硬化剤の合計量)に対して1質量部～3.0質量部であることが好ましく、2質量部～2.0質量部であ

10

20

30

40

50

ることがより好ましい。

【0075】

(着色剤)

封止用樹脂組成物は、着色剤を含んでもよい。着色剤としてはカーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の公知の着色剤を挙げることができる。着色剤の含有量は目的等に応じて適宜選択できる。着色剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0076】

(封止用樹脂組成物の調製方法)

封止用樹脂組成物の調製方法は、特に制限されない。一般的な手法としては、所定の配合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって溶融混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。より具体的には、例えば、上述した成分の所定量を均一に攪拌及び混合し、予め70～140に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。

10

【0077】

封止用樹脂組成物は、常温常圧下（例えば、25、大気圧下）において固体であることが好ましい。封止用樹脂組成物が固体である場合の形状は特に制限されず、粉状、粒状、タブレット状等が挙げられる。封止用樹脂組成物がタブレット状である場合の寸法及び質量は、パッケージの成形条件に合うような寸法及び質量となるようにすることが取り扱い性の観点から好ましい。

20

【0078】

<電子部品装置>

本開示の一実施形態である電子部品装置は、素子と、前記素子を封止している本開示の封止用樹脂組成物の硬化物と、を備える。

【0079】

電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ、有機基板等の支持部材に、素子（半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子など）を搭載して得られた素子部を封止用樹脂組成物で封止したものが挙げられる。

30

より具体的には、リードフレーム上に素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部とリード部とをワイヤボンディング、バンプ等で接続した後、封止用樹脂組成物を用いてトランスファ成形等によって封止した構造を有するDIP (Dual In line Package)、PLCC (Plastic Leaded Chip Carrier)、QFP (Quad Flat Package)、SOP (Small Outline Package)、SOJ (Small Outline J-lead package)、TSOP (Thin Small Outline Package)、TQFP (Thin Quad Flat Package) 等の一般的な樹脂封止型IC；テープキャリアにバンプで接続した素子を封止用樹脂組成物で封止した構造を有するTCP (Tape Carrier Package)；支持部材上に形成した配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンディング、はんだ等で接続した素子を、封止用樹脂組成物で封止した構造を有するCOB (Chip On Board) モジュール、ハイブリッドIC、マルチチップモジュール等；裏面に配線板接続用の端子を形成した支持部材の表面に素子を搭載し、バンプ又はワイヤボンディングにより素子と支持部材に形成された配線とを接続した後、封止用樹脂組成物で素子を封止した構造を有するBGA (Ball Grid Array)、CSP (Chip Size Package)、MCP (Multi Chip Package) などが挙げられる。また、プリント配線板においても封止用樹脂組成物を好適に使用することができる。

40

【0080】

<電子部品装置の製造方法>

50

本開示の電子部品装置の製造方法は、素子を支持部材上に配置する工程と、前記素子を本開示の封止用樹脂組成物で封止する工程と、を含む。

【0081】

上記各工程を実施する方法は特に制限されず、一般的な手法により行うことができる。また、電子部品装置の製造に使用する支持部材及び素子の種類は特に制限されず、電子部品装置の製造に一般的に用いられる支持部材及び素子を使用できる。

【0082】

本開示の封止用樹脂組成物を用いて素子を封止する方法としては、低圧トランスファ成形法、インジェクション成形法、圧縮成形法等が挙げられる。これらの中では、低圧トランスファ成形法が一般的である。

10

【実施例】

【0083】

以下、上記実施形態を実施例により具体的に説明するが、上記実施形態の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0084】

<封止用樹脂組成物の調製>

下記に示す成分を表1に示す配合割合(質量部)で混合し、実施例と比較例の封止用樹脂組成物を調製した。

【0085】

- ・エポキシ樹脂1：トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、エポキシ当量167g/eq(三菱ケミカル株式会社、品名「1032H60」)
- ・エポキシ樹脂2：ビフェニル型エポキシ樹脂、エポキシ当量186g/eq(三菱ケミカル株式会社、品名「YX-4000」)

20

【0086】

- ・硬化剤1：D I C株式会社製の活性エステル化合物
- ・硬化剤2：明和化成株式会社製のフェノール硬化剤、品名「MEHC7851-SS」
- ・硬化促進剤1：2-エチル-4-メチルイミダゾール(四国化成株式会社)
- ・硬化促進剤2：トリフェニルホスフィン/p-ベンゾキノン付加物

【0087】

- ・カップリング剤1：3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン(信越化学工業株式会社、品名「KBM-503」)
- ・カップリング剤2：N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン(信越化学工業株式会社、品名「KBM-573」)
- ・離型剤：モンタン酸エステルワックス(クラリアントジャパン株式会社、品名「HW-E」)
- ・着色剤：カーボンブラック(三菱ケミカル株式会社、品名「MA600」)
- ・充填材1：溶融シリカ(体積平均粒径6μm)
- ・充填剤2：溶融シリカ(体積平均粒径0.6μm)
- ・充填剤3：溶融シリカ(体積平均粒径1.1.2μm)

30

【0088】

40

<封止用樹脂組成物の性能評価>

(比誘電率及び誘電正接の測定)

封止用樹脂組成物をトランスファ成形機に仕込み、金型温度175、成形圧力2.5MPa、硬化時間600秒の条件で成形し、後硬化を175で6時間行い、板状の硬化物(縦12.5mm、横25mm、厚さ約0.2mm)を得た。板状の硬化物を試験片として、誘電率測定装置(Agilent社、品名「ネットワークアナライザN5227A」)を用いて、温度25±3下、60GHzでの比誘電率と誘電正接を測定した。

【0089】

(スパイラルフロー試験)

EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、封止用樹脂組成物

50

を金型温度180°C、成形圧力6.9 MPa、硬化時間120秒の条件で成形し、流動距離(inch)を求めた。

【0090】

(耐薬液性試験)

封止用樹脂組成物をトランスファ成形機に仕込み、金型温度180°C、成形圧力6.9 MPa、硬化時間90秒の条件で成形し、後硬化を175°Cで6時間行い、棒状の硬化物(5mm×5mm×20mm)を得た。棒状の硬化物を試験片として、DMSO(ジメチルスルホキシド)/TMAH(水酸化テトラメチルアンモニウム、25%AQ.)=92/8(質量比)の混合溶液に、80°Cの条件で1時間浸漬させた。浸漬前の質量を基準として、1時間後の試験片の質量から下記式により残存率(質量%)を算出した。

$$\text{残存率(質量\%)} = (\text{浸漬後の質量(g)} / \text{浸漬前の質量(g)}) \times 100$$

【0091】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2
組成	活性エステル化合物 ／エポキシ樹脂	0.7	0.5	0.6	0.64	0.5	0.0	1.0
	(活性エステル化合物+フェノール化合物)／エポキシ樹脂	0.7	0.5	0.7	0.7	0.7	1.0	1.0
	エポキシ樹脂1	75	75	75	75	75	75	75
	エポキシ樹脂2	25	25	25	25	25	25	25
	硬化剤1	85	60	70	78	55	-	120
	硬化剤2	-	-	10	5	20	115	-
	硬化促進剤1	1.5	1	1.5	1.5	1.5	-	2.2
	硬化促進剤2	-	-	-	-	-	3.1	-
	カップリング剤1	5	5	5	5	5	5	5
	カップリング剤2	3	3	3	3	3	3	3
	離型剤	3	3	3	3	3	3	3
	着色剤	3	3	3	3	3	3	3
	充填材1	460	410	460	460	460	550	550
	充填材2	120	100	120	120	120	140	140
	充填材3	580	510	580	580	580	660	690
評価	比誘電率(60GHz)	3.5	3.4	3.4	3.4	3.5	3.5	3.5
	誘電正接(60GHz)	0.005	0.006	0.006	0.006	0.006	0.01	0.004
	残存率(質量%)	46	98	98	98	100	100	10
	流動距離(inch)	48	51	60	60	60	50	52

【0092】

表1に示すように、硬化剤として活性エステル化合物を含む封止用樹脂組成物は、硬化剤として活性エステル化合物を含まない比較例1の封止用樹脂組成物に比べ、硬化物の誘電正接の値が低かった。

硬化剤として活性エステル化合物を含み、かつ活性エステル化合物のエポキシ樹脂に対する当量比が0.9以下である実施例の封止用樹脂組成物は、活性エステル化合物のエポキシ樹脂に対する当量比が1.0である比較例2の封止用樹脂組成物に比べ、硬化物の耐薬液性に優れていた。

【0093】

日本国特許出願第2019-118699号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。

本明細書に記載された全ての文献、特許出願、および技術規格は、個々の文献、特許出願、および技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同

10

20

30

40

50

程度に、本明細書中に援用されて取り込まれる。

10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (56)参考文献
- 特開2012-246367 (JP, A)
特開2010-111859 (JP, A)
特開2019-006895 (JP, A)
特開2015-106698 (JP, A)
特開平11-349666 (JP, A)
特開2014-208764 (JP, A)
特開2018-100421 (JP, A)
特開2012-246497 (JP, A)
特開2018-172519 (JP, A)
特開2016-079384 (JP, A)
国際公開第2018/173500 (WO, A1)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
- C08G59/00 - 59/72
H01L23/29
H01L21/56