202419504

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本 (11)公開編號：TW 202419504 A

(43)公開日： 中華民國 113 (2024) 年 05 月 16 日

(21)申請案號：112129377 (22)申請日： 中華民國 112 (2023) 年 08 月 04 日

(51)Int. Cl.： *C08G59/20 (2006.01)* *C08G59/42 (2006.01)*
C08G59/68 (2006.01) *C08L63/00 (2006.01)*
C08K3/36 (2006.01) *H01L23/29 (2006.01)*
H01L23/31 (2006.01)

(30)優先權：2022/11/10 日本 2022-180433

(71)申請人：日商納美仕股份有限公司 (日本) NAMICS CORPORATION (JP)
日本

(72)發明人：大江貴之 OE, TAKAYUKI (JP) ；齊藤裕 SAITO, YU (JP) ；上村剛 KAMIMURA, TSUYOSHI (JP)

(74)代理人：林志剛

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：9 項 圖式數：0 共 32 頁

(54)名稱

環氧樹脂組成物、電子零件安裝構造體及電子零件安裝構造體之製造方法

(57)摘要

在研磨環氧樹脂組成物的硬化物的表面時，更抑制形成於研磨面的凹洞缺陷的發生。一種環氧樹脂組成物，其係包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料之環氧樹脂組成物，並且在前述環氧樹脂組成物的硬化物的研磨面觀測到的直徑 0.5μm 以上的凹洞的平均存在密度為 1.00 個/mm^2 以下；使用其之電子零件安裝構造體及該電子零件安裝構造體之製造方法。

202419504

【發明摘要】

【中文發明名稱】

環氧樹脂組成物、電子零件安裝構造體及電子零件安裝構造體之製造方法

【中文】

在研磨環氧樹脂組成物的硬化物的表面時，更抑制形成於研磨面的凹洞缺陷的發生。一種環氧樹脂組成物，其係包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料之環氧樹脂組成物，並且在前述環氧樹脂組成物的硬化物的研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下；使用其之電子零件安裝構造體及該電子零件安裝構造體之製造方法。

【指定代表圖】無

【代表圖之符號簡單說明】無

【特徵化學式】無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

環氧樹脂組成物、電子零件安裝構造體及電子零件安裝構造體之製造方法

【技術領域】

【0001】本發明關於一種環氧樹脂組成物、電子零件安裝構造體及電子零件安裝構造體之製造方法。

【先前技術】

【0002】構成半導體裝置的積體電路等的半導體元件，大多是藉由環氧樹脂組成物來密封。另外，也會有經過藉由環氧樹脂組成物將半導體元件以外的電子零件密封的程序來製造電子零件安裝構造體的情形。將半導體元件等的電子零件密封的樹脂密封方法(成形方法)存在有許多種，例如對模穴供給液狀或顆粒狀環氧樹脂，接下來將半導體元件等的電子零件浸泡在熔融狀態的環氧樹脂並成形的壓模法等。然而，近年來採用適合於製造大型樹脂密封品(成形品)的壓模法的機會增加。這是因為晶圓級晶片尺寸封裝技術正在普及。另外，這些安裝技術，有被稱為先晶片(Chip First)或後晶片(Chip Last)的製程。尤其是在先晶片製程中，先將IC晶片等的半導體元件搭載於晶圓上，然後依序實施(i)使用環氧樹脂組成物來密封半導體元件、(ii)研磨藉由密封所形成的環氧樹脂組成物的硬化物表

面、(iii)在藉由研磨所形成的研磨面上形成再配線層。所以，在先晶片製程中，在形成再配線層之前，在藉由對環氧樹脂組成物的硬化物表面進行研磨所形成的研磨面確保高平坦性是重要的。

【0003】另一方面，在形成再配線層之前先形成具有高平坦性的研磨面的技術，已知有例如專利文獻1記載的技術。在專利文獻1記載的技術中，將包含中空粒子的環氧樹脂組成物的硬化物的表面以砂輪機研磨，在所得到的研磨面上25mm^{2}的範圍觀測到直徑大於5μm的孔的數目被控制在一個以下。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0004】

專利文獻1：國際公開第2018/225599號小冊子

【發明內容】

[發明所欲解決的課題]

【0005】另一方面，為了提升將半導體元件等的電子零件以環氧樹脂組成物的硬化物密封所製造出的電子零件安裝構造體的進階性能、信賴性，與以往相比，必須在進一步提高平坦性的研磨面形成再配線層。而且，為了達成此目的，更進一步抑制在研磨面形成的凹洞缺陷會變得重要。

【0006】本發明是鑑於上述狀況而完成，課題為提供

一種環氧樹脂組成物，在研磨該環氧樹脂組成物的硬化物表面時可更加抑制形成於研磨面的凹洞缺陷的發生；使用其之電子零件安裝構造體及該電子零件安裝構造體之製造方法。

[用於解決課題的手段]

【0007】上述課題可藉由以下的本發明來達成。亦即，本發明之環氧樹脂組成物，其係包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料之環氧樹脂組成物，並且在前述環氧樹脂組成物的硬化物的研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【0008】本發明之環氧樹脂組成物的一個實施形態中，前述(C)填料以不含中空填料為佳。

【0009】本發明之環氧樹脂組成物的其他實施形態中，前述(C)填料以包含中空填料為佳，且前述(C)填料中所含的前述中空填料的含有率以100ppm以下為佳。

【0010】本發明之環氧樹脂組成物的其他實施形態中，在常溫下的黏度以1Pa.s以上1000Pa.s以下為佳。

【0011】本發明之環氧樹脂組成物的其他實施形態中，前述環氧樹脂組成物中所含的前述(C)填料成分的含量以55質量%～86質量%為佳。

【0012】本發明之環氧樹脂組成物的其他實施形態中，以液體壓模用為佳。

【0013】本發明之電子零件安裝構造體，具備：電子零件、表面設置有研磨面且將前述電子零件密封之環氧樹脂組成物的硬化物，及形成於前述硬化物的研磨面之再配線層，前述環氧樹脂組成物包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料，在前述研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【0014】本發明之電子零件安裝構造體之製造方法，包含：藉由包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料的環氧樹脂組成物的硬化物將電子零件密封之密封步驟；藉由研磨前述硬化物的表面，形成研磨面之研磨面形成步驟；及在前述研磨面形成再配線層之再配線層形成步驟，在前述研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【0015】本發明之電子零件安裝構造體之製造方法的一個實施形態中，前述密封步驟以藉由壓模法來實施為佳。

[發明之效果]

【0016】依據本發明，可提供一種環氧樹脂組成物，其在研磨環氧樹脂組成物的硬化物表面時，可更加抑制形成於研磨面的凹洞缺陷的發生；使用其之電子零件安裝構造體及該電子零件安裝構造體之製造方法。

【實施方式】

【0017】本實施形態的環氧樹脂組成物，包含：(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料。而且，在該環氧樹脂組成物的硬化物的研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。因此，本實施形態的環氧樹脂組成物，在研磨環氧樹脂組成物的硬化物表面時，可更加抑制形成於研磨面的凹洞缺陷的發生。所以，就結果而言，容易謀求使用本實施形態的環氧樹脂組成物所製造出的電子零件安裝構造體的進階性能、信賴性的提升。

【0018】此處，在本發明說明書中，存在於研磨面的凹洞的平均存在密度，可藉由以下的程序來測定。首先，將環氧樹脂組成物在150℃下熱處理2小時，將所得到的硬化物使用切割裝置加工，準備研磨用試樣(長：1mm、寬：1mm、厚：500μm)。接下來研磨研磨用試樣的表面(長寬：1mm×1mm的表面)。研磨時，作為研磨面完成前實施的最終拋光步驟(Final polish)，藉由使用包含平均粒徑0.5μm以下的無機研磨材的研磨泥來進行研磨處理，而形成作為測定對象的研磨面。藉此準備10個觀察用試樣。

【0019】接下來，使用掃描式電子顯微鏡，以觀察倍率：2000倍來觀察整個觀察用試樣的研磨面(長：1mm，寬：1mm)，計算直徑0.5μm以上的凹洞的個數。然後，對10個觀察用試樣進行同樣的觀察，並將由各觀察用試樣的

觀察所得到的凹洞的個數取平均，求得直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度(個/mm^2)。此外，直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度，從抑制凹洞缺陷的發生，更加提升研磨面的平坦性的觀點看來，以0.80個/mm^2以下為佳，0.60個/mm^2以下為較佳，0.30個/mm^2以下為更佳，0.18個/mm^2以下為特佳，0個/mm^2為最佳。

【0020】此外，在直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度超過0個/mm^2的情況，會有在研磨面形成具有較大直徑的凹洞的可能性。在這樣的情況下，從確保研磨面的平坦性的觀點看來，直徑1.5μm～5.0μm的凹洞的平均存在密度，以0.02個/mm^2以下為佳，0.01個/mm^2為較佳，0個/mm^2為更佳。另外，從同樣的觀點看來，直徑超過5.0μm的凹洞的平均存在密度也以0個/mm^2為佳。

【0021】此外，在本發明申請的時間點，製造具有再配線層的半導體裝置等的電子零件安裝構造體時，形成研磨面(最終拋光)所使用的研磨方法，是以砂輪機研磨為主流(例如日本特開2022-141179號公報/段落0020、0025等、日本特開2019-129179號公報/段落0054～0055)。所以，如專利文獻1(尤其段落0065～0066、表1～2)所揭示般，評估以砂輪機研磨作為最終拋光所形成的研磨面的凹洞缺陷，在謀求本發明申請時間點的電子零件安裝構造體的性能、信賴性的提升方面被認為是有用的。

【0022】然而，藉由讓研磨石高速旋轉並接觸加工對象物來切削表面的研磨方法的砂輪機研磨，被認為在形成

研磨面時，對研磨面表面造成的機械傷害大，結果凹洞缺陷的數目或直徑容易變大。另外，為了提升電子零件安裝構造體的進階性能、信賴性，與以往相比，必須在進一步提高平坦性的研磨面形成再配線層。考慮到這點，本發明人等認為有必要符合下述(1)～(3)所揭示的未來預測。(1)作為形成研磨面時的最終拋光，預測未來可採用研磨時對研磨面的機械傷害比砂輪機研磨還小的研磨方法來代替砂輪機研磨。(2)作為代替砂輪機研磨的最終拋光的研磨方法，從成分效益等的觀點看來，預測使用包含平均粒徑為0.5μm以下(較佳為0.1μm以下)的無機研磨材的研磨泥的研磨處理(滾筒研磨或拋光研磨、化學機械研磨等)會成為主流。(3)關於對研磨面要求的平坦性(換言之是可容許的凹洞缺陷的直徑)，預測未來會變得比以藉由砂輪機研磨形成的研磨面為前提的專利文獻1所揭示的評估基準(亦即容許直徑未達5μm的凹洞缺陷)還更嚴格。

【0023】所以認為，對本實施形態的環氧樹脂組成物來說，將形成於硬化物的研磨面的凹洞缺陷的直徑的容許值降到未達0.5μm，而且評估經過使用包含平均粒徑為0.5μm以下的無機研磨材的研磨泥的最終拋光所形成的研磨面的凹洞缺陷，是極為重要的。而且，如以上說明般，基於未來預測及見解，本發明人等發現了本實施形態的環氧樹脂組成物、電子零件安裝構造體及其製造方法。

【0024】接下來，在以下說明構成本實施形態的環氧樹脂組成物的各成分的細節。

【0025】

(A)環氧樹脂

本實施形態的環氧樹脂組成物所使用的環氧樹脂，只要是一般半導體密封用途所使用的各種環氧樹脂，則並未受到特別限定，從黏度或注入性的觀點看來，以使用液狀環氧樹脂為適合。另外，摻合至環氧樹脂組成物的環氧樹脂，可僅使用一種環氧樹脂或併用兩種以上的環氧樹脂。

【0026】具代表性的環氧樹脂具體例子，可列舉芳香族環氧樹脂及脂肪族環氧樹脂。芳香族環氧樹脂的例子，可列舉對縮水甘油氧基苯基二甲基參雙酚A二縮水甘油醚等的雙酚A型環氧樹脂；雙酚F型環氧樹脂；酚醛型環氧樹脂；芴型環氧樹脂；聯苯芳烷基環氧樹脂；如對第三丁基苯基縮水甘油醚、1,4-苯基二甲醇二縮水甘油醚般的二環氧樹脂；如3,3',5,5'-四甲基-4,4'-二縮水甘油氧基聯苯般的聯苯型環氧樹脂；如二縮水甘油基苯胺、二縮水甘油基甲苯胺、三縮水甘油基對胺酚、四縮水甘油基間苯二胺般的胺酚型環氧樹脂；萘型環氧樹脂；及具有來自植物的骨架的環氧樹脂等，然而並不受限於這些。

【0027】另外，脂肪族環氧樹脂的例子，可列舉脂肪族環氧化合物，具體的例子有烷醇縮水甘油醚〔丁基縮水甘油醚、2-乙基己基縮水甘油醚等〕、烯醇縮水甘油醚〔乙烯基縮水甘油醚、烯丙基縮水甘油醚等〕等的分子內具有一個環氧基的單官能脂肪族環氧化合物；伸烷二醇二縮水甘油醚、聚四亞甲基二醇二縮水甘油醚等的聚伸烷二醇

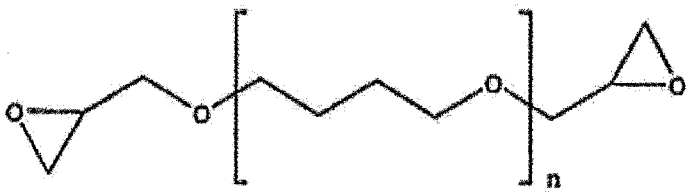
二縮水甘油醚、伸烯二醇二縮水甘油醚等的分子內具有兩個環氧基的二官能脂肪族環氧化合物；三羥甲基丙烷、季戊四醇、二季戊四醇等的三官能以上的醇類的聚縮水甘油醚〔三羥甲基丙烷三縮水甘油醚、季戊四醇三或四縮水甘油醚、二季戊四醇三、四、五或六縮水甘油醚等〕等的分子內具有三個以上環氧基的多官能脂肪族環氧化合物等。

【0028】環氧樹脂組成物中的環氧樹脂的含量，以1質量份～50質量份為佳，5質量份～45質量份為較佳，12質量份～40質量份為更佳。

【0029】另外，在將兩種以上的環氧樹脂組成物組合使用的情況，尤其是將芳香族環氧樹脂與脂肪族環氧樹脂組合使用的情況，從容易使環氧樹脂組成物低黏度化的觀點看來，環氧樹脂以使用由下述一般式(1)所表示的(聚)四亞甲基二醇二縮水甘油醚為佳。

【0030】

【化1】



一般式（1）

【0031】此處，一般式(1)中，n以1～15之自然數為佳。另外，由一般式(1)所表示的(聚)四亞甲基二醇二縮水甘油醚的數量平均分子量，以200～2000為較佳。此外，市售的由一般式(1)所表示的(聚)四亞甲基二醇二縮水甘油

醚，可列舉EPOGOSEY PT一般級等。

【0032】另外，在本實施形態的環氧樹脂組成物中，如後述般，(C)填料以使用最大粒徑為5μm以下的填料為適合。此處，在將最大粒徑為5μm以下的填料大量摻合至環氧樹脂組成物的情況，不只環氧樹脂組成物的黏性容易增加，而且還會有環氧樹脂組成物的調製根本上變得困難的顧慮。然而，即使在這樣的情況下，藉由使用由一般式(1)所表示的(聚)四亞甲基二醇二縮水甘油醚作為環氧樹脂，將最大粒徑為5μm以下的填料大量摻合至環氧樹脂組成物之後，會抑制環氧樹脂組成物黏性的增加，不僅容易調製環氧樹脂組成物，也容易確保適度的黏度或注入性。

【0033】由一般式(1)所表示的(聚)四亞甲基二醇二縮水甘油醚的含量，在將(A)環氧樹脂的總量定為100質量份的情況，從容易確保適度的黏度或注入性的觀點看來，以5.0質量份～50.0質量份為佳，10.0質量份～40.0質量份為較佳。

【0034】

(B)硬化劑及硬化促進劑

在本實施形態的環氧樹脂組成物中，可使用選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分。亦即，可僅使用硬化劑或硬化促進劑之任一者，或將兩者組合使用。

【0035】硬化劑只要是一般使用的各種硬化劑即可，並未受到特別限定。摻合至環氧樹脂組成物的硬化劑，可

僅使用一種硬化劑，或併用兩種以上的硬化劑。硬化劑可列舉例如胺系硬化劑、酸酐系硬化劑、苯酚系硬化劑等。

【0036】胺系硬化劑的具體例子，可列舉三乙烯四胺、四乙五胺、間二甲苯二胺、三甲基六亞甲基二胺、2-甲基五亞甲基二胺等的脂肪族多胺、異佛爾酮二胺、1,3-雙胺基甲基環己烷、雙(4-胺基環己基)甲烷、降莰烯二胺、1,2-二胺基環己烷等的脂環式多胺、N-胺乙基哌嗪、1,4-雙(2-胺基-2-甲基丙基)哌嗪等的哌嗪型多胺、二乙基甲苯二胺、二甲硫基甲苯二胺、4,4'-二胺基-3,3'-二乙基二苯基甲烷、雙(甲硫基)甲苯二胺、二胺基二苯基甲烷、間苯二胺、二胺基二苯碸、二乙基甲苯二胺、三亞甲基雙(4-胺基苯甲酸酯)、聚四亞甲基醚二對胺基苯甲酸酯等的芳香族多胺類。

【0037】酸酐系硬化劑的具體例子，可例示甲基四氫鄰苯二甲酸酐、甲基六氫鄰苯二甲酸酐、甲基四氫鄰苯二甲酸酐等的烷基化四氫鄰苯二甲酸酐、六氫鄰苯二甲酸酐、甲基海米克酸酐、經烯基取代的琥珀酸酐、甲基納迪克酸酐、戊二酸酐等。

【0038】酚系硬化劑的具體例子，是指所有具有酚性羥基的單體、寡聚物、聚合物，可列舉例如苯酚酚醛樹脂及其烷基化物或烯丙基化物、甲酚酚醛樹脂、苯酚芳烷基(包含伸苯基、伸聯苯基骨架)樹脂、萘酚芳烷基樹脂、三酚基甲烷樹脂、二環戊二烯型酚樹脂等。

【0039】摻合至環氧樹脂組成物的硬化劑的摻合量，

以環氧樹脂的化學計量法上的當量比(硬化劑當量/環氧基當量)成為0.01～1.5的量為佳，0.02～1.4的量為較佳。另外，硬化劑相對於由環氧樹脂組成物除去固體成分((C)填料及因應必要添加的其他固體材料)後的液狀成分的摻合比例，以1質量份～80質量份為佳，5質量份～50質量份為較佳。

【0040】硬化促進劑只要是一般使用的各種硬化促進劑即可，並未受到特別限定。摻合至環氧樹脂組成物的硬化促進劑，可僅使用一種硬化促進劑，或併用兩種以上的硬化促進劑。硬化促進劑，可列舉例如咪唑系硬化促進劑、三級胺系硬化促進劑(但是，咪唑系硬化促進劑除外)、磷系硬化促進劑等。

【0041】咪唑系硬化促進劑的具體例子，可列舉咪唑、2-甲基咪唑、2-乙基咪唑、2-異丙基咪唑、2-十一烷基咪唑、2-十二烷基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-苄基咪唑、2,4,5-三甲基咪唑、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-s-三嗪等。

【0042】三級胺系硬化促進劑(但是咪唑系硬化促進劑除外)的具體例子，為具有一個以上的三級胺基的化合物。這樣的三級胺化合物，可列舉甲基二乙胺、二甲基乙胺、三乙胺、三丙胺、三丁胺、三己胺、三乙二胺(1,4-二氮雜二環(2.2.2)辛烷(DABCO))、六亞甲基四胺、N,N,N',N'-四甲基乙二胺,N-甲基吡咯啶、N-甲基哌啶、N,N'-二甲基哌嗪、N-甲基嗎啉,1,8-二氮雜雙環[5.4.0]十一

烯-7(DBU)、1,5-二氮雜雙環[4.3.0]-5-壬烯(DBN)等的脂肪族三級胺化合物；N,N-二甲基苯胺、N,N-二乙基苯胺、苄基二甲胺、三苯胺、吡啶、4-二甲基吡啶、4-羥基吡啶、2,2'-聯吡啶、2,5-二甲基吡嗪、喹啉等的芳香族三級胺化合物。

【0043】磷系硬化促進劑的具體例子，可列舉三苯基膦等的三級膦、四苯基鏻、四苯基硼酸鹽等的鏻鹽。

【0044】硬化促進劑相對於由環氧樹脂組成物除去固體成分((C)填料及因應必要添加的其他固體材料)後的液狀成分的摻合比例，以0.01質量份～50質量份為佳，0.02質量份～40質量份為較佳，0.03質量份～30質量份為更佳。

【0045】

(C)填料

填料只要具有降低環氧樹脂組成物的硬化物的熱膨脹係數的效果，則並未受到特別限定。填料的材質，可列舉二氧化矽、氧化鋁、鋁、氮化鋁、碳化矽、氮化矽等。從可提高填料相對於環氧樹脂組成物的摻合量(填充量)的觀點看來，填料尤其以二氧化矽填料為適合。另外，填料還可藉由矽烷偶合劑等的表面處理劑作表面處理。

【0046】填料的形狀並未受到特別限定，可為球狀、不規則形、鱗片狀等的任一形態。另外，填料的平均粒徑，以0.01μm～10.0μm為佳，0.02μm～5.0μm為較佳，0.03μm～2.0μm為更佳。此外，平均粒徑，意指使用雷射繞射法粒度分佈測定裝置所測得的體積平均粒徑D50(從體

積基準粒度分佈的小粒徑側算起累積50%的粒徑)值。

【0047】此外，研磨環氧樹脂組成物的硬化物的表面時發生凹洞缺陷的原因，認為主要有以下兩個。

<1>研磨過程中，存在於硬化物表面附近的填料(尤其是粒徑相對較大的粗大填料)由硬化物表面脫落，而形成凹洞缺陷

<2>研磨過程中，存在於硬化物表面附近的具有中空構造的填料(以下會有稱為「中空填料」的情形)的外殼被破壞，中空填料的中空部露出外部，而形成凹洞缺陷

【0048】所以，為了抑制上述<1>及<2>所揭示的凹洞缺陷的發生，(a)使用最大粒徑較小的填料、(b)使用不含中空填料的填料，或者(c)在使用包含中空填料的填料的情況，使用中空填料的含有率較低且難以產生具有直徑0.5μm以上的凹洞的最大粒徑的填料是重要的。

【0049】依據上述見解，填料的最大粒徑的上限值，以20.0μm以下為佳，12μm以下為較佳，7.5μm以下為更佳，5.0μm以下為特佳。此外，在將兩種以上的填料組合使用的情況，以所有種類的填料的最大粒徑在上述範圍內為佳。另一方面，最大粒徑的下限值並未受到特別限定，在實用上，只要是超過平均粒徑的值即可，例如以定在平均粒徑的1.1倍～1.4倍值以上為佳。此處，填料的最大粒徑，意指使用雷射繞射法粒度分佈測定裝置所測得的體積平均粒徑D99.95(從體積基準粒度分佈的小粒徑側算起累積99.95%的粒徑)之值。此外，調製環氧樹脂組成物所使

用的填料，可使用預先藉由各種分級處理將平均粒徑或最大粒徑調整成所希望的值的填料。

【0050】另一方面，填料的製造方法有各式各樣的方法，但是這些方法之中，藉由熔融法或爆燃法等所製造出的填料，因為在造粒時混入空氣而形成粒子，會產生中空填料作為無法避免的粒子。含有中空填料的填料，具代表性的有藉由上述製造方法所製造出的二氧化矽填料或氧化鋁填料。所以，從根本地防止來自中空填料的凹洞缺陷的發生的觀點看來，最適合使用造粒時不產生中空填料的填料，換言之就是不含中空填料作為無法避免的粒子的填料(中空填料含有率為0ppm的填料)。這樣的填料，可列舉例如藉由濕式法(溶膠凝膠法等)所製造出的填料。

【0051】環氧樹脂組成物所使用的填料包含中空填料(作為無法避免的粒子)的情況，從抑制凹洞缺陷的發生的觀點看來，中空填料的含有率以100ppm以下為佳，50ppm以下為較佳，5ppm以下為更佳，含有率之值愈小愈好。此外，在將兩種以上的填料組合使用的情況，以填料總量為基準，中空填料的含有率以100ppm以下為佳。另外，調製環氧樹脂組成物所使用的包含中空粒子的填料，還可使用預先藉由破壞分級或濕式分級等的精密分級處理來降低具有大的中空部的中空填料的含有率之填料。

【0052】環氧樹脂組成物中所含的填料的含量，從降低硬化物的熱膨脹係數，而且容易調製出具有適度流動性的環氧樹脂組成物的觀點看來，以50質量%～95質量%為

佳，55質量%～86質量%為較佳，60質量%～84質量%為更佳。

【0053】

(D)其他成分

在本實施形態的環氧樹脂組成物中，可因應必要進一步摻合上述(A)～(C)成分以外的其他成分。其他成分並未受到特別限定，可例示例如離子補集劑、整平劑、抗氧化劑、消泡劑、阻燃劑、著色劑、反應性稀釋劑、彈性體等。其他成分的摻合量，可因應其種類適當地選擇。

【0054】本實施形態的環氧樹脂組成物，可將(A)～(C)成分及因應必要使用的(D)其他成分混合攪拌來調製。混合攪拌時可適當地利用輥磨機或行星式攪拌機等的周知的混合攪拌手段。另外，在將各成分混合攪拌的情況，可將構成環氧樹脂組成物的所有成分同時混合攪拌，或可將所有的成分當中僅一部分的成分混合攪拌，調製出初級混合物之後，對該初級混合物進一步添加其餘的成分，並混合攪拌。此外，在調製環氧樹脂組成物所使用的填料的含量超過86質量%的情況，依照填料以外的成分的種類、量，或者混合攪拌所使用的混合攪拌裝置或其條件的不同，會有難以調製環氧樹脂組成物的情形。所以，從不會大幅依存於填料以外的成分的種類、量，或者混合攪拌所使用的混合攪拌裝置或其條件，容易安定地調製環氧樹脂組成物的觀點看來，環氧樹脂的調製所使用的填料的含量，以設定在86質量%以下為佳，設定在84質量%以下為

較佳。

【0055】本實施形態的環氧樹脂組成物的黏度，從使用性及注入性的觀點看來，在常溫(25℃)下的黏度以1Pa·s～1000Pa·s為佳，5Pa·s～800Pa·s為較佳，7Pa·s～700Pa·s為更佳。

【0056】另外，本實施形態的環氧樹脂組成物，適合利用於將半導體元件等的電子零件藉由環氧樹脂組成物的硬化物密封之後，研磨硬化物的表面，然後經過在形成於硬化物表面的研磨面形成再配線層的程序，製造出半導體裝置等的電磁零件安裝構造體的程序。然而，本實施形態的環氧樹脂組成物，在上述程序中，以藉由壓模法製造電磁零件安裝構造體的壓模用的環氧樹脂組成物為更適合。

【0057】本實施形態的電子零件安裝構造體，具備：電子零件、表面設置有研磨面且將電子零件密封之環氧樹脂組成物的硬化物，及形成於硬化物的研磨面之再配線層。此處，環氧樹脂組成物包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料。然後，在研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.0個/mm^2以下。此外，具代表性的電子零件可列舉半導體元件，然而當然也可利用半導體元件以外的各種電子元件。另外，具代表性的電子零件安裝構造體可列舉半導體裝置。

【0058】另外，本實施形態的電子零件安裝構造體之製造方法，包含：藉由包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化

劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料的環氧樹脂組成物的硬化物密封之密封步驟；藉由研磨硬化物的表面，形成研磨面之研磨面形成步驟；及在研磨面形成再配線層之再配線層形成步驟。此處，在研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。此外，密封步驟以藉由壓模法來實施為適合。

【0059】在本實施形態的電子零件安裝構造體及其製造方法之中，直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度，從抑制凹洞缺陷的發生，更加提升研磨面的平坦性的觀點看來，0.80個/mm^2以下為佳，0.60個/mm^2以下為較佳，0.30個/mm^2以下為更佳，0.18個/mm^2以下為特佳，0個/mm^2為最佳。此外，在直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度超過0個/mm^2的情況，可能會在研磨面形成具有較大直徑的凹洞。在這樣的情況下，從確保研磨面的平坦性的觀點看來，直徑1.5μm～5.0μm的凹洞的平均存在密度，也以0.02個/mm^2以下為佳，0.01個/mm^2為較佳，0個/mm^2為更佳。另外，從同樣的觀點看來，直徑超過5.0μm的凹洞的平均存在密度也以0個/mm^2為佳。

【0060】另外，在本實施形態的電子零件安裝構造體及其製造方法中，研磨面可藉由使用包含平均粒徑為0.5μm以下(較佳為0.1μm以下)的無機研磨材的研磨泥進行研磨處理作為最終拋光而形成。然後，除了將最終拋光的條件定為上述條件之外，形成研磨面時的研磨條件並未受到特別限定。例如在研磨面形成步驟中，可實施多階段

(多步驟)的研磨處理，或可僅實施單階段(單步驟)的研磨處理(亦即僅最終拋光)，然而在實用上，以實施多階段的研磨處理為佳。此情況下，以所使用的研磨泥中所含的研磨材的粒徑隨著步驟進行逐漸變小等方式，進行對研磨面的機械傷害較小的研磨處理為佳。

【0061】另外，最終拋光也包括在內，在研磨面形成步驟的各步驟中使用研磨泥的情況，研磨泥中所含的無機研磨材的材質，只要是周知的材質，則可沒有特別限制地利用，可利用例如鑽石、氧化鋁、二氧化矽等。此外，研磨泥以使用包含由鑽石形成的無機研磨材的研磨泥為適合。

[實施例]

【0062】以下列舉實施例來說明本發明的具體例子，然而本發明並不侷限於以下說明的實施例。

【0063】

1.環氧樹脂組成物的調製

使用輥磨機將原料以成為表1～表2所示的摻合比率的方式混合攪拌，而調製出實施例1～18及比較例1的環氧樹脂組成物。此外，作為原料使用的(A)～(C)成分的細節如以下所述。另外，作為(C)成分所使用的填料，是將市售的填料不作分級處理直接使用。

【0064】

2.調製環氧樹脂組成物所使用的原料成分

(A)環氧樹脂

·環氧樹脂A(YDF8170，雙酚F型液狀環氧樹脂，日鐵Chemical & Material股份有限公司製，環氧當量158g/eq)

·環氧樹脂B(jER630，胺酚型液狀環氧樹脂，三菱化學股份有限公司製，環氧當量98g/eq)

·環氧樹脂C(EPOGOSEY PT一般級，聚四亞甲基二醇二縮水甘油醚，四日市合成股份有限公司製，環氧當量440g/eq)

·環氧樹脂D(RE410S，雙酚A型液狀環氧樹脂，日本化藥公司製，環氧當量178g/eq)

【0065】

(B)硬化劑及硬化促進劑

·硬化劑A(HN-2200，酸酐系硬化劑，昭和電工Materials股份有限公司製)

·硬化促進劑A(2P4MZ，2-苯基-4-甲基咪唑，四國化成工業股份有限公司製)

·硬化促進劑B(2MZA，2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-s-三嗪，四國化成工業股份有限公司製)

【0066】

(C)填料

·填料A：二氧化矽填料(平均粒徑1.8μm，最大粒徑5.0μm，填料的製造法：爆燃法)，製品名SE605H-SMG，Admatechs股份有限公司製

·填料B：二氧化矽填料(平均粒徑0.3μm，最大粒徑

1.0μm，填料的製造法：爆燃法)，製品名SE101G-SMO，Admatechs股份有限公司製

·填料C：二氧化矽填料(平均粒徑0.5μm，最大粒徑0.7μm，填料的製造法：溶膠凝膠法)，製品名KE-S50SG，日本觸媒股份有限公司製

·填料D：二氧化矽填料(平均粒徑0.6μm，最大粒徑3.0μm，填料的製造法：爆燃法)，製品名SE203G-SEJ，Admatechs股份有限公司製

·填料E：二氧化矽填料(平均粒徑10.0μm，最大粒徑20.0μm，填料的製造法：爆燃法)，製品名STW7010-20，日鐵Chemical & Material股份有限公司製)

·填料F：二氧化矽填料(平均粒徑2.0μm，最大粒徑10.0μm，填料的製造法：爆燃法)，製品名SE6200，Admatechs股份有限公司製)

·填料G：二氧化矽填料(平均粒徑4.0μm，最大粒徑10.0μm，填料的製造法：熔融法)，製品名40SM-E2，Admatechs股份有限公司製)

·填料H：二氧化矽填料(平均粒徑5.0μm，最大粒徑25.0μm，填料的製造法：熔融法)，製品名FB5SDX，DENKA股份有限公司製)

【0067】

3.各種評估、測定方法

3.1凹洞的平均存在密度

(1)觀察用試樣的製作

依照以下的程序來製作觀察凹洞的平均存在密度(個/mm^2)所使用的觀察用試樣。首先，將各實施例及比較例的環氧樹脂組成物在150℃下熱處理2小時，使用切割裝置將所得到的硬化物加工，而準備好切割加工後的硬化物(長：1mm，寬：1mm，厚：500μm)。接下來，在三啓公司製的透明杯(外徑：25mmf×高：23mm，型號No. 010-0250)的底部放置切割加工後的硬化物，並且讓長寬：1mm×1mm的一面朝下。然後，讓埋入用雙液型環氧樹脂流進透明杯，在常溫下放置一晚，將切割加工後的硬化物的周圍以環氧樹脂的硬化物固定，而得到研磨用試樣。接下來，將研磨用試樣之硬化物露出的一側的表面研磨，製作出10個觀察用試樣。此外，將研磨用試樣的表面研磨而形成研磨面(硬化物的研磨面區域為長寬：1mm×1mm)時的研磨條件如以下所述。

【0068】

(2)研磨面的形成及研磨條件

對於研磨用試樣的表面，使用struers自動研磨裝置(TEGRAMIN-20，struers公司製)，依照步驟1至步驟4的順序進行四階段研磨處理。此外，各步驟所使用的研磨用耗材及研磨時間如以下所述。

步驟1：

研磨用耗材　耐水研磨紙＃600

研磨時間　3分鐘

步驟2：

研磨用耗材　鑽石研磨泥(日本Engis股份有限公司製，6-PC，6μ研磨泥(粒徑範圍：4～8μm))

研磨時間　6分鐘

步驟3：

研磨用耗材　鑽石研磨泥(日本Engis股份有限公司製，1-PC，1μ研磨泥(粒徑範圍：0～2μm))

研磨時間　3分鐘

步驟4(最終拋光)：

研磨用耗材　鑽石研磨泥(BUEHLER公司製，Masterprep，平均粒徑0.05μm)

研磨時間　2分鐘

【0069】此外，步驟1～4的轉速及研磨荷重如以下所述。

轉速：150rpm

研磨荷重：10N

【0070】

(3)研磨面的觀察

觀察用試樣的研磨面的觀察，是藉由掃描式電子顯微鏡(S-3400N，日立High-Tech Fielding公司製)以觀察倍率2000倍、加速電壓15kv來實施。然後，將觀察範圍定為被埋進觀察用試樣中的硬化物的整個研磨面(長：1mm×寬：1mm)，進行觀察。

【0071】

(4)凹洞個數的測量及凹洞的平均存在密度的計算

對於觀察用試樣的研磨面(硬化物部分的研磨面)，測量直徑0.5μm以上的凹洞的個數。對10個觀察用試樣進行該測量，將藉由各觀察用試樣的觀察所得到的凹洞個數取平均，求得直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度(個/mm^2)。另外，也以同樣的程序，求得直徑1.5μm～5.0μm的凹洞的平均存在密度(個/mm^2)。

【0072】

3.2填料的平均粒徑及最大粒徑

各實施例及比較例的環氧樹脂組成物的調製所使用的填料的平均粒徑及最大粒徑，是使用雷射繞射法粒度分佈測定裝置(Beckman Coulter公司製，LS13320)，依照以下的程序作測定。首先，將5mg的填料摻合至分散劑(在純水中添加Aerosol OT(富士薄膜和光純藥股份有限公司製)0.5質量%而成的水溶液)50mg，使用超音波分散機分散10分鐘，以準備好測定用樣品。然後，使用該測定樣品，以流速50ml/秒鐘、測定時間90秒鐘、溶劑為純水、溶劑折射率1.333的條件實施測定。藉此得到體積基準粒度分佈。然後，將體積平均粒徑D50(從體積基準粒度分佈的小粒徑側算起累積50%的粒徑)定為平均粒徑，求得體積平均粒徑D99.95(從體積基準粒度分佈的小粒徑側算起累積99.95%的粒徑)定為最大粒徑。

【0073】

3.3環氧樹脂組成物的黏度

各實施例及比較例的環氧樹脂組成物的黏度，是使用

Brookfield公司製的HB-DV型黏度計(型號：HB-DV1)，在液溫25℃、轉速10rpm的條件下，在剛調製好環氧樹脂組成物時作測定。

【0074】

3.4填料中所含的中空填料的含有率

填料中所含的中空填料的含有率，是依照以下的程序測定。首先，秤量Solmix AP-1(有機溶劑、乙醇/甲醇/IPA(異丙醇)的混合物，日本Alcohol販賣公司製)40g與填料10g置於同一個試樣瓶中，以攪拌裝置並以轉速2000rpm進行攪拌2分鐘，調製出混合液。攪拌處理後，將由攪拌裝置取出的試樣瓶在溫度25℃的環境下靜置24小時。靜置後，將試樣瓶內浮出混合液液面的填料以滴管和混合液一起採取，並裝進重量已知的容器。然後，將裝有濕潤狀態的填料的容器置於設定在150℃的乾燥機內，藉由加熱使濕潤狀態的填料中所含的溶劑(Solmix AP-1)揮發，而得到乾燥物(殘渣物)。測量裝有殘渣物的容器的重量，由該重量與容器的重量之差求得殘渣物的重量。然後，求得由填料10g所得到的殘渣物的重量的比例(ppm)，定為填料中所含的中空填料的含有率。

【0075】

4.評估結果

在表1～2中，一併揭示了環氧樹脂組成物的組成等，和所使用的填料的平均粒徑、最大粒徑及中空填料的含有率、環氧樹脂組成物的黏度、直徑0.5μm以上的凹洞的平

均存在密度，以及直徑1.5μm～5.0μm的凹洞的平均存在密度。此外，由藉由掃描式電子顯微鏡得到的研磨面觀察結果，判明了在各實施例及比較例中，在研磨面觀察到的直徑0.5μm以上的凹洞，大部分是來自中空填料。另外，在任一實施例中，皆沒有完全觀察到直徑超過5.0μm的凹洞。

【0076】

【表1】

			實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	實施例5	實施例6	實施例7	實施例8	實施例9	實施例10
(A)成分	環氧樹脂A	YDF8170	19.23		9.62	9.62	8.66	5.77	8.66	5.77	7.20	4.60
	環氧樹脂B	jER630		19.23	9.62	9.62	8.66	5.77	8.66	5.77	7.20	4.60
	環氧樹脂C	EPOGOSEY					1.92	7.69	1.92	7.69	9.63	6.15
	環氧樹脂D	RE410S										
(B)成分	硬化促進劑A	2P4MZ	0.77	0.77	0.77		0.77	0.77			0.97	0.62
	硬化促進劑B	2MZA				0.77			0.77	0.77		
	硬化劑A	HN2200										
(C)成分	填料A	SE605H-SMG	80.00	80.00	80.00	80.00	80.00	80.00	80.00	80.00	75.00	84.00
硬化促進劑 [phr]			4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
當量 e.q.			0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
合計 [質量份]			100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
填料的平均粒徑 (D50) [μm]			1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8
填料的最大粒徑 (D99.95) [μm]			5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
環氧樹脂組成物的黏度 [Pa.s]			700	500	600	600	350	50	350	50	14	490
中空填料的含有率 [ppm]			0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
直徑0.5μm以上的凹洞的存在密度 [個/mm^2]			0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
直徑1.5μm～5μm的凹洞的存在密度 [個/mm^2]			—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

【0077】

【表2】

			實施例11	實施例12	實施例13	實施例14	實施例15	實施例16	實施例17	實施例18	比較例1
(A)成分	環氧樹脂A	YDF8170	5.06	15.14	15.14	11.83	11.83	15.14	15.14	4.60	21.7
	環氧樹脂B	jER630	5.06	15.14	15.14	11.82	11.82	15.14	15.14	4.60	21.6
	環氧樹脂C	EPOGOSEY	1.30	3.37	3.37	10.00	10.00	3.37	3.37	6.15	4.81
	環氧樹脂D	RE410S									
(B)成分	硬化促進劑A	2P4MZ	0.78	1.35		1.35		1.35		0.62	1.93
	硬化促進劑B	2MZA			1.35		1.35		1.35		
	硬化劑A	HN2200	7.80								
(C)成分	填料A	SE605H-SMG	80.00								
	填料B	SE1010-SMO		65.00	65.00						
	填料C	KES-50SG				65.00	65.00				
	填料D	SE2030-SEJ						65.00	65.00		
	填料E	STW7010-20								84.00	
	填料F	SE6200									
	填料G	40SM-E2									
	填料H	FB5SDX									50.00
硬化促進劑 [phr]			4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
當量 e.q.			0.9	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
合計 [質量份]			100.0	100.0	100.0	100.00	100.0	100.0	100.0	100.0	50.0
填料的平均粒徑 (D50) [μm]			1.8	0.3	0.3	0.5	0.5	0.6	0.6	10.0	5.0
填料的最大粒徑 (D99.95) [μm]			5.0	1.0	1.0	0.7	0.7	3.0	3.0	20.0	25.0
環氧樹脂組成物的黏度 [Pa.s]			360	430	430	400	400	80	80	7	5
中空填料的含有率 [ppm]			0	10	10	0	0	45	45	20	200
直徑0.5μm以上的凹洞的存在密度 [個/mm²]			0.00	0.16	0.16	0.00	0.00	0.70	0.70	0.52	6.60
直徑1.5μm～5μm的凹洞的存在密度 [個/mm²]			—	0	0	—	—	0	0	0	3.3

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種環氧樹脂組成物，其係包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料之環氧樹脂組成物，並且

在前述環氧樹脂組成物的硬化物的研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【請求項2】如請求項1之環氧樹脂組成物，其中前述(C)填料不含中空填料。

【請求項3】如請求項1之環氧樹脂組成物，其中前述(C)填料包含中空填料，且前述(C)填料中所含的前述中空填料的含有率為100ppm以下。

【請求項4】如請求項1～3中任一項之環氧樹脂組成物，其中在常溫下的黏度為1Pa.s以上1000Pa.s以下。

【請求項5】如請求項1～4中任一項之環氧樹脂組成物，其中前述環氧樹脂組成物中所含的前述(C)填料成分的含量為55質量%～86質量%。

【請求項6】如請求項1～5中任一項之環氧樹脂組成物，其係液體壓模用。

【請求項7】一種電子零件安裝構造體，其具備：電子零件、表面設置有研磨面且將前述電子零件密封之環氧樹脂組成物的硬化物，及形成於前述硬化物的研磨面之再配線層，

前述環氧樹脂組成物包含：

(A)環氧樹脂、

(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分，及

(C)填料，

在前述研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【請求項8】一種電子零件安裝構造體之製造方法，其包含：

藉由包含(A)環氧樹脂、(B)選自由硬化劑及硬化促進劑所成的群組中的至少一種成分及(C)填料之環氧樹脂組成物的硬化物將電子零件密封之密封步驟；

藉由研磨前述硬化物的表面形成研磨面之研磨面形成步驟；及

在前述研磨面形成再配線層之再配線層形成步驟，

在前述研磨面觀測到的直徑0.5μm以上的凹洞的平均存在密度為1.00個/mm^2以下。

【請求項9】如請求項8之電子零件安裝構造體之製造方法，其中前述密封步驟係藉由壓模法來實施。