

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年10月5日(05.10.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/190321 A1

- (51) 国際特許分類:
C09J 5/06 (2006.01) C09J 163/00 (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01) C09J 7/35 (2018.01)
C09J 11/06 (2006.01) H01L 21/52 (2006.01)
C09J 11/08 (2006.01) H01L 21/301 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/012170
- (22) 国際出願日: 2023年3月27日(27.03.2023)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2022-055427 2022年3月30日(30.03.2022) JP
- (71) 出願人: 古河電気工業株式会社(FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 森田 稔(MORITA, Minoru); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 大淵 俊弥(OHBUCHI, Shunya); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 弁理士法人イイダアンドパートナーズ, 外(IIDA & PARTNERS et al.); 〒1050004 東京都港区新橋3丁目1番10号 石井ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS,

(54) Title: COMPOSITION FOR THERMALLY CONDUCTIVE FILM-LIKE ADHESIVES, THERMALLY CONDUCTIVE FILM-LIKE ADHESIVE, SEMICONDUCTOR PACKAGE USING THERMALLY CONDUCTIVE FILM-LIKE ADHESIVE AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 熱伝導性フィルム状接着剤用組成物及び熱伝導性フィルム状接着剤、並びに、熱伝導性フィルム状接着剤を用いた半導体パッケージ及びその製造方法



(57) Abstract: The present invention provides a composition for thermally conductive film-like adhesives, the composition containing an epoxy resin (A), an epoxy resin curing agent (B), a polymer component (C), a polyhedral alumina filler (D) and a silane coupling agent (E), wherein: the proportion of the polyhedral alumina filler (D) in the sum of the respective contents of the epoxy resin (A), the epoxy resin curing agent (B), the polymer component (C), the polyhedral alumina filler (D) and the silane coupling agent (E) is 20% by volume to 70% by volume; and the addition factor of the silane coupling agent is 1.0 to 10. The present invention also provides: a film-like adhesive which uses this composition for thermally conductive film-like adhesives; a semiconductor package; and a method for producing a semiconductor package.

(57) 要約: エポキシ樹脂 (A)、エポキシ樹脂硬化剤 (B)、高分子成分 (C)、多面体状アルミナフィラー (D)、及びシランカップリング剤 (E) を含有し、前記エポキシ樹脂 (A)、前記エポキシ樹脂硬化剤 (B)、前記高分子成分 (C)、前記多面体状アルミナフィラー (D)、及び前記シランカップリング剤 (E) の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー (D) の割合が20~70体積%であり、シランカップリング剤配合倍数が1.0~10である、熱伝導性フィルム状接着剤用組成物、これを用いたフィルム状接着剤、半導体パッケージ及びその製造方法。

MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

熱伝導性フィルム状接着剤用組成物及び熱伝導性フィルム状接着剤、並びに、熱伝導性フィルム状接着剤を用いた半導体パッケージ及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導性フィルム状接着剤用組成物及び熱伝導性フィルム状接着剤、並びに、熱伝導性フィルム状接着剤を用いた半導体パッケージ及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、半導体チップを多段に積層したスタックドMCP (Multi Chip Package) が普及しており、携帯電話、携帯オーディオ機器用のメモリパッケージとして搭載されている。また、携帯電話等の多機能化に伴い、パッケージの高密度化・高集積化も推し進められている。これに伴い、半導体チップの多段積層化が進行している。

[0003] このようなメモリパッケージの製造過程における配線基板と半導体チップとの接着や半導体チップ間の接着には、熱硬化性のフィルム状接着剤（ダイアタッチフィルム、ダイボンドフィルム）が使用されている。チップの多段積層化に伴い、ダイアタッチフィルムはより薄型状に形成することが求められている。また、ウェハ配線ルールの微細化に伴い、半導体素子表面には熱が発生しやすくなっている。それゆえ、熱をパッケージ外部へ逃がすために、ダイアタッチフィルムには熱伝導性のフィラーが配合され、高熱伝導性を実現している。

[0004] いわゆるダイアタッチフィルム用途を意図した熱硬化性のフィルム状接着剤の材料として、例えば、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂の硬化剤、高分子化合物及び無機充填材（無機フィラー）を組み合わせた組成が知られている（例えば特許文献1、2）。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2014-234482号公報
特許文献2：国際公開第2021/033368号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] 高熱伝導性ダイアタッチフィルムを実現する手段の一つとして、熱伝導性の無機充填材をより多く配合することが考えられる。本発明者らが、無機充填材を含有する接着剤用組成物について、無機充填材の種類、形状に着目してさらに検討したところ、多面体状アルミナフィラーを用いると、特許文献1及び2で使用されている真球状のアルミナフィラーを用いた場合に比較して熱伝導率をより高めることができることが分かってきた。一方で、多面体状アルミナフィラーの配合は安定した接着力の発現を難しくし、被着体との間で十分な接着力が得られない問題があることが分かってきた。
- [0007] 本発明は、無機充填材として多面体状アルミナフィラーを含有し、優れた熱伝導性に加え、被着体との間で優れた接着力を示す熱伝導性フィルム状接着剤、及び、このフィルム状接着剤の調製に好適な熱伝導性フィルム状接着剤用組成物を提供することを課題とする。また本発明は、上記熱伝導性フィルム状接着剤を用いた半導体パッケージ及びその製造方法を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

- [0008] 本発明者らは上記課題に鑑み鋭意検討を重ねた結果、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、及び高分子成分に対して、多面体状アルミナフィラーを含有させた接着剤用組成物において、シランカップリング剤を多面体状アルミナフィラーに対して特定範囲の過剰量で含有させることにより、上記課題を解決できることを見出した。

本発明は上記知見に基づきさらに検討を重ねて完成されるに至ったもので

ある。

[0009] 本発明の上記課題は下記的手段により解決される。

[1]

少なくともエポキシ樹脂 (A)、エポキシ樹脂硬化剤 (B)、高分子成分 (C)、多面体状アルミナフィラー (D)、及びシランカップリング剤 (E) を含有し、

前記エポキシ樹脂 (A)、前記エポキシ樹脂硬化剤 (B)、前記高分子成分 (C)、前記多面体状アルミナフィラー (D)、及び前記シランカップリング剤 (E) の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー (D) の割合が20～70体積%であり、

下記(式1)で示されるシランカップリング剤配合倍数が1.0～10である、熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

(式1)

シランカップリング剤配合倍数 = シランカップリング剤 (E) 配合量 (g) / シランカップリング剤 (E) 必要量 (g)

(式11)

シランカップリング剤 (E) 必要量 (g) = [多面体状アルミナフィラー (D) 配合量 (g) × 多面体状アルミナフィラー (D) の比表面積 (m²/g)] / シランカップリング剤 (E) の最小被覆面積 (m²/g)

[2]

前記熱伝導性フィルム状接着剤用組成物により得られた熱伝導性フィルム状接着剤を25℃から5℃/分の昇温速度で昇温したとき、120℃における熔融粘度が250～10000 Pa・sの範囲に達し、

前記熱伝導性フィルム状接着剤の熱伝導率が1.0 W/m・K以上である、[1]に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

[3]

前記熱伝導性フィルム状接着剤の25℃におけるダイシエア強度が20MPa以上である、〔1〕又は〔2〕に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

〔4〕

前記エポキシ樹脂（A）、前記エポキシ樹脂硬化剤（B）、前記高分子成分（C）、前記多面体状アルミナフィラー（D）、及び前記シランカップリング剤（E）の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー（D）の割合が50～70体積%である、〔1〕～〔3〕のいずれか1項に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

〔5〕

〔1〕～〔4〕のいずれか1項に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物により得られてなる熱伝導性フィルム状接着剤。

〔6〕

厚みが1～80μmの範囲である、〔5〕に記載の熱伝導性フィルム状接着剤。

〔7〕

表面に半導体回路が形成された半導体ウェハの裏面に、〔5〕又は〔6〕に記載の熱伝導性フィルム状接着剤を熱圧着して接着剤層を設け、この接着剤層を介してダイシングフィルムを設ける第1の工程と、

前記半導体ウェハと前記接着剤層とを一体にダイシングすることにより、前記ダイシングフィルム上に、フィルム状接着剤片と半導体チップとを備える接着剤層付き半導体チップを得る第2の工程と、

前記接着剤層付き半導体チップを前記ダイシングフィルムから剥離して前記接着剤層付き半導体チップと配線基板とを前記接着剤層を介して熱圧着する第3の工程と、

前記接着剤層を熱硬化する第4の工程と、
を含む、半導体パッケージの製造方法。

〔8〕

〔7〕に記載の製造方法により得られる、半導体パッケージ。

[0010] 本発明において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

発明の効果

[0011] 本発明の熱伝導性フィルム状接着剤は、無機充填材として多面体状アルミナフィラーを含有し、優れた熱伝導性に加え、被着体との間で優れた接着力を示す。本発明の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物は、上記熱伝導性フィルム状接着剤を得るのに好適である。

本発明の半導体パッケージの製造方法によれば、熱伝導性に優れ、接着信頼性にも優れた半導体パッケージを得ることができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、本発明の半導体パッケージの製造方法の第1の工程の好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

[図2]図2は、本発明の半導体パッケージの製造方法の第2の工程の好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

[図3]図3は、本発明の半導体パッケージの製造方法の第3の工程の好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

[図4]図4は、本発明の半導体パッケージの製造方法のボンディングワイヤーを接続する工程の好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

[図5]図5は、本発明の半導体パッケージの製造方法の多段積層実施形態例を示す概略縦断面図である。

[図6]図6は、本発明の半導体パッケージの製造方法の別の多段積層実施形態例を示す概略縦断面図である。

[図7]図7は、本発明の半導体パッケージの製造方法により製造される半導体パッケージの好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

発明を実施するための形態

[0013] [熱伝導性フィルム状接着剤用組成物]

本発明の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物（以下、本発明の接着剤用組

成物ともいう)は、本発明の熱伝導性フィルム状接着剤(以下、本発明のフィルム状接着剤という)の形成に好適な組成物である。

本発明の接着剤用組成物は、少なくともエポキシ樹脂(A)、エポキシ樹脂硬化剤(B)、高分子成分(C)、多面体状アルミナフィラー(D)及びシランカップリング剤(E)を含有する。また、エポキシ樹脂(A)、エポキシ樹脂硬化剤(B)、高分子成分(C)、多面体状アルミナフィラー(D)、及びシランカップリング剤(E)の各含有量の合計に占める多面体状アルミナフィラー(D)の割合が20~70体積%に制御される。さらに、シランカップリング剤(E)の含有量が、下記(式I)で示されるシランカップリング剤配合倍数が1.0~10となるように制御される。

(式I)

シランカップリング剤配合倍数 = シランカップリング剤(E)配合量(g) / シランカップリング剤(E)必要量(g)

(式II)

シランカップリング剤(E)必要量(g) = (多面体状アルミナフィラー(D)配合量(g) × 多面体状アルミナフィラー(D)の比表面積(m²/g)) / シランカップリング剤(E)の最小被覆面積(m²/g)

多面体状アルミナフィラー(D)の比表面積は、Brunauer-Emmett-Teller法(BET法)にて、JIS Z 8830:2013(ISO 9277:2010)の「キャリアガス法」に準拠して、窒素ガスを使用して、測定される値である。測定条件は実施例に記載の条件を採用できる。

シランカップリング剤(E)の最小被覆面積は、シランカップリング剤(E)1gが材料表面上にて反応、吸着等したときに、シランカップリング剤(E)が材料表面を被覆する面積を意味する。具体的には次式により算出さ

れる。

最小被覆面積 (m^2/g) = $6.02 \times 10^{23} \times 13 \times 10^{-20} / \text{シランカップリング剤の分子量}$

本発明の接着剤組成物は、硬化前の状態にある。よって、上記(式1)で示されるシランカップリング剤配合倍数及びシランカップリング剤(E)配合量は、いずれも硬化前の本発明の接着剤組成物における値である。「硬化前」の意味は、後述する「熱伝導性フィルム状接着剤」についての「硬化前」の意味と同様である。

[0014] シランカップリング剤配合倍数が上記範囲にあることにより、多面体状アルミナフィラー(D)の広い接触面積に起因する優れた熱伝導性を引き出しながら、被着体に対する接着力もより高めることができる。また、本発明のフィルム状接着剤を半導体パッケージに組み込んだ際には、被着体との間にボイドを生じにくいものとする。

シランカップリング剤配合倍数は、1.1~9.0が好ましく、1.3~8.0がより好ましく、1.5~7.0がさらに好ましく、1.5~4.0が特に好ましく、1.6~2.5が最も好ましい。

また、上記のシランカップリング剤(E)必要量は、0.20~3.50gが好ましく、0.40~3.20gがより好ましく、0.60~3.10gがさらに好ましく、0.60~3.00gがさらに好ましく、0.80~2.00gがさらに好ましく、0.90~1.55gが特に好ましい。上記のシランカップリング剤(E)必要量は、0.90~3.20gとすることもでき、1.40~3.10gとすることもできる。

[0015] 以下、接着剤用組成物に含まれる各成分について説明する。

[0016] <エポキシ樹脂(A)>

上記エポキシ樹脂(A)は、エポキシ基を持つ熱硬化型の樹脂であり、エポキシ当量は500g/eq以下であることが好ましい。エポキシ樹脂(A)

)は液体、固体又は半固体のいずれであってもよい。本発明において液体とは、軟化点が25℃未満であることをいい、固体とは、軟化点が60℃以上であることをいい、半固体とは、軟化点が上記液体の軟化点と固体の軟化点との間(25℃以上60℃未満)にあることをいう。本発明で使用するエポキシ樹脂(A)としては、好適な温度範囲(例えば60~120℃)で低溶解粘度に到達することができるフィルム状接着剤を得る観点から、軟化点が100℃以下であることが好ましい。なお、本発明において、軟化点とは、軟化点試験(環球式)法(測定条件:JIS-K7234:1986に準拠)により測定した値である。

[0017] 本発明で使用するエポキシ樹脂(A)において、熱硬化体の架橋密度を高める観点から、エポキシ当量は150~450g/eqであることが好ましい。なお、本発明において、エポキシ当量とは、1グラム当量のエポキシ基を含む樹脂のグラム数(g/eq)をいう。

エポキシ樹脂(A)の重量平均分子量は、通常、10000未満が好ましく、5000以下がより好ましい。下限値に特に制限はないが、300以上が实际的である。

重量平均分子量は、GPC(Gel Permeation Chromatography)分析による値である(以下、特に断らない場合には他の樹脂についても同様)。

[0018] エポキシ樹脂(A)の骨格としては、フェノールノボラック型、オルソクレゾールノボラック型、クレゾールノボラック型、ジシクロペンタジエン型、ビフェニル型、フルオレンビスフェノール型、トリアジン型、ナフトール型、ナフトレンジオール型、トリフェニルメタン型、テトラフェニル型、ビスフェノールA型、ビスフェノールF型、ビスフェノールAD型、ビスフェノールS型、トリメチロールメタン型等が挙げられる。このうち、樹脂の結晶性が低く、良好な外観を有するフィルム状接着剤を得られるという観点から、トリフェニルメタン型、ビスフェノールA型、クレゾールノボラック型、オルソクレゾールノボラック型が好ましい。

[0019] エポキシ樹脂（A）の含有量は、本発明の接着剤用組成物のうち、フィルム状接着剤を構成する成分（具体的には溶媒以外の成分、すなわち固形分）の総含有量100質量部中、3～70質量部が好ましく、5～50質量部が好ましく、8～30質量部がより好ましく、8～20質量部とすることも好ましい。

[0020] <エポキシ樹脂硬化剤（B）>

上記エポキシ樹脂硬化剤（B）としては、アミン類、酸無水物類、多価フェノール類等の任意の硬化剤を用いることができる。本発明では、低熔融粘度で、かつある温度を超える高温で硬化性を発揮し、速硬化性を有し、さらに、室温での長期保存が可能な保存安定性の高いフィルム状接着剤とする観点から、潜在性硬化剤を用いることが好ましい。

潜在性硬化剤としては、ジシアンジアミド化合物、イミダゾール化合物、硬化触媒複合系多価フェノール化合物、ヒドラジド化合物、三弗化ホウ素—アミン錯体、アミンイミド化合物、ポリアミン塩、及びこれらの変性物やマイクロカプセル型のものを挙げることができる。これらは1種を単独で用いても、もしくは2種以上を組み合わせ用いてもよい。より優れた潜在性（室温での安定性に優れ、かつ、加熱により硬化性を発揮する性質）を有し、硬化速度がより速い観点から、イミダゾール化合物を用いることがより好ましい。

[0021] 接着剤用組成物中のエポキシ樹脂硬化剤（B）の含有量は、硬化剤の種類、反応形態に応じて適宜に設定すればよい。例えば、エポキシ樹脂（A）100質量部に対して0.5～100質量部とすることができ、1～80質量部としてもよく、2～50質量部としてもよく、4～20質量部とすることも好ましい。また、エポキシ樹脂硬化剤（B）としてイミダゾール化合物を用いる場合には、エポキシ樹脂（A）100質量部に対してイミダゾール化合物を0.5～10質量部とすることが好ましく、2～9質量部とすることがより好ましい。エポキシ樹脂硬化剤（B）の含有量を上記好ましい下限値以上とすることにより硬化時間をより短くすることができ、他方、上記好ま

しい上限値以下とすることにより、過剰の硬化剤のフィルム状接着剤中への残留を抑えることができる。結果、残留硬化剤の水分の吸着が抑えられ、半導体装置の信頼性の向上を図ることができる。

[0022] <高分子成分 (C)>

上記高分子成分 (C) としては、フィルム状接着剤を形成した際に、常温 (25℃) でのフィルムタック性 (少しの温度変化でもフィルム状態が変化しやすい性質) を抑制し、十分な接着性および造膜性 (フィルム形成性) を付与する成分であればよい。天然ゴム、ブチルゴム、イソプレンゴム、クロロプレンゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-(メタ)アクリル酸共重合体、エチレン-(メタ)アクリル酸エステル共重合体、ポリブタジエン樹脂、ポリカーボネート樹脂、熱可塑性ポリイミド樹脂、6-ナイロンや6,6-ナイロン等のポリアミド樹脂、フェノキシ樹脂、(メタ)アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート及びポリブチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ポリアミドイミド樹脂、フッ素樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられる。これらの高分子成分 (C) は単独で用いてもよく、また2種以上を組み合わせ用いてもよい。高分子成分 (C) としては、フェノキシ樹脂、(メタ)アクリル樹脂、及びポリウレタン樹脂が好ましい。

[0023] 高分子成分 (C) の質量平均分子量は、10000以上である。上限値に特に制限はないが、5000000以下が实际的である。

上記高分子成分 (C) の質量平均分子量は、GPC [ゲル浸透クロマトグラフィー (Gel Permeation Chromatography)] によるポリスチレン換算で求めた値である。以降、具体的な高分子成分 (C) の質量平均分子量の値も同義である。

また、上記高分子成分 (C) のガラス転移温度 (T_g) は、100℃未満が好ましく、90℃未満がより好ましい。下限は、0℃以上が好ましく、10℃以上がより好ましい。

上記高分子成分 (C) のガラス転移温度は、昇温速度0.1℃/分でDSCにより測定されたガラス転移温度である。以降、具体的な高分子成分 (C)

) のガラス転移温度の値も同義である。

なお、本発明においてエポキシ樹脂 (A) と高分子成分 (C) のうちフェノキシ樹脂等のエポキシ基を有し得る樹脂とは、エポキシ当量が 500 g/eq 以下である樹脂がエポキシ樹脂 (A) に、該当しないものが成分 (C) に、それぞれ分類される。

[0024] (フェノキシ樹脂)

フェノキシ樹脂は、エポキシ樹脂 (A) と構造が類似していることから相容性が良好な点で、高分子成分 (C) として好ましい。フェノキシ樹脂を含有すると、接着性にも優れた効果を発揮することができる。

フェノキシ樹脂は常法により得ることができる。例えば、フェノキシ樹脂は、ビスフェノールもしくはビフェノール化合物とエピクロルヒドリンのようなエピハロヒドリンとの反応、液状エポキシ樹脂とビスフェノールもしくはビフェノール化合物との反応で得ることができる。

[0025] フェノキシ樹脂の質量平均分子量は、 10000 以上が好ましく、 $10000 \sim 100,000$ がより好ましい。

また、フェノキシ樹脂中に僅かに残存するエポキシ基の量は、エポキシ当量で、 5000 g/eq 以上が好ましい。

[0026] フェノキシ樹脂のガラス転移温度 (T_g) は、 100°C 未満が好ましく、 90°C 未満がより好ましい。下限は、 0°C 以上が好ましく、 10°C 以上がより好ましい。

[0027] ((メタ) アクリル樹脂)

(メタ) アクリル樹脂に特に制限はなく、フィルム状接着剤のフィルム成分として公知の (メタ) アクリル共重合体からなる樹脂を広く用いることができる。

上記 (メタ) アクリル樹脂としては、ポリ (メタ) アクリル酸エステル系あるいはその誘導体が挙げられる。例えば、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、アクリル酸、メタクリ

ル酸、イタコン酸、グリシジルメタクリレート、グリシジルアクリレートなどをモノマー成分とする共重合体が挙げられる。

また、環状骨格を有する（メタ）アクリル酸エステル：例えば、（メタ）アクリル酸シクロアルキルエステル、（メタ）アクリル酸ベンジルエステル、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチル（メタ）アクリレート、イミド（メタ）アクリレートなどをモノマーとして用いた共重合体も好ましい。

また、アルキル基の炭素数が1～18である（メタ）アクリル酸アルキルエステル：例えば、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸プロピル及び（メタ）アクリル酸ブチル、等もモノマー成分として好ましい。

また酢酸ビニル、（メタ）アクリロニトリル、スチレン等と共重合されていてもよい。

（メタ）アクリル樹脂は水酸基を有している方が、エポキシ樹脂との相溶性の点で好ましい。

[0028] （メタ）アクリル共重合体の質量平均分子量は10,000～2,000,000であることが好ましく、100,000～1,500,000であることがより好ましい。上記質量平均分子量を上記好ましい範囲内とすることにより、タック性を低減でき、熔融粘度の上昇も抑制することができる。

（メタ）アクリル共重合体のガラス転移温度は、好ましくは -35°C ～ 50°C 、より好ましくは -10°C ～ 50°C 、さらに好ましくは 0°C ～ 40°C 、特に好ましくは 0°C ～ 30°C の範囲にある。上記ガラス転移温度を上記好ましい範囲内とすることにより、タック性を低減でき、半導体ウェハとフィルム状接着剤との間等におけるボイドの発生を抑制することができる。

[0029] （ポリウレタン樹脂）

ポリウレタン樹脂は、主鎖中にウレタン（カルバミド酸エステル）結合を持つ重合体である。ポリウレタン樹脂は、ポリオール由来の構成単位と、ポ

リイソシアネート由来の構成単位とを有し、さらにポリカルボン酸由来の構成単位を有していてもよい。ポリウレタン樹脂は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いてもよい。

ポリウレタン樹脂のT_gは通常は100℃以下であり、60℃以下が好ましく、50℃以下がより好ましく、45℃以下であることも好ましい。

[0030] ポリウレタン樹脂の重量平均分子量は特に制限されず、通常は5000～500000の範囲内にあるものが用いられる。

[0031] ポリウレタン樹脂は、常法により合成でき、また、市場から入手することもできる。ポリウレタン樹脂として適用できる市販品として、ダイナレオVA-9320M、ダイナレオVA-9310MF、ダイナレオVA-9303MF（いずれもトーヨーケム社製）などを挙げるができる。

[0032] エポキシ樹脂（A）100質量部に対する高分子成分（C）の含有量は、1～40質量部が好ましく、5～35質量部がより好ましく、10～30質量部がさらに好ましい。含有量をこのような範囲とすることで、硬化前の熱伝導性フィルム状接着剤の剛性と柔軟性を調整することができる。フィルム状態が良好（フィルムタック性が低減）となり、フィルム脆弱性も抑制することができる。

[0033] <多面体状アルミナフィラー（D）>

多面体状アルミナフィラー（D）は、アルミナ（酸化アルミニウム）を含む無機粉末であって、その形状が多面体状である。本発明において、「多面体」とは、複数の平面を有する立体をいう。多面体は少なくとも2つの平面を有していればよく、4つ以上の平面を有していることが好ましく、8つ以上の平面を有していることがより好ましい。多面体を構成する平面の数の上限は特に限定されないが、例えば20程度が実際的である。平面の形状は、特に限定されず、多角形（三角形、四角形、五角形、六角形など）を挙げることができる。多面体は、平面に加えて曲面を有していてもよい。多面体は、板状、柱状、角柱、円柱、正多面体等が挙げられる。多面体状アルミナフィラー（D）には、真球状アルミナフィラーが、上記成分（A）～（E）の

各含有量の合計に占める真球状アルミナフィラーの割合として1～50体積%程度であれば含まれていてもよい。すなわち、多面体状アルミナフィラー（D）には、多面体状のアルミナフィラーと球状のアルミナフィラーとが含まれていてもよく、このような場合には、多面体状のアルミナフィラーと球状のアルミナフィラーとを合わせて、多面体状アルミナフィラー（D）という。多面体アルミナフィラー（D）中に含まれる真球状アルミナフィラーは、上記割合として40体積%以下とすることができ、30体積%以下とすることができ、10体積%以下とすることができ、5体積%以下とすることもできる。多面体状アルミナフィラー（D）中に含まれる真球状アルミナフィラーは、多面体状アルミナフィラー（D）の全量の80質量%以下とでき、50質量%以下とでき、30質量%とでき、20質量%以下とでき、10質量%以下とできる。また、多面体状アルミナフィラー（D）中に含まれるすべてのアルミナフィラーを多面体状のアルミナフィラーとすることもできる。後述する多面体状アルミナフィラー（D）の平均粒径の好ましい範囲は、真球状アルミナフィラーの平均粒径にも妥当するものである。

多面体状アルミナフィラーの形状は、走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて観察することにより確認することができ、平面を2つ以上確認できる場合に「多面体」とであると判断できる。

多面体状アルミナフィラー（D）を用いることにより、フィラー間の接触面積の増大などに起因して、真球状のアルミナフィラーを用いた場合に比較して、同じ充填量であっても熱伝導性を向上させることが可能となる。

[0034] 多面体状アルミナフィラー（D）の平均粒径（ d_{50} ）は特に限定されないが、フィルム状接着剤の薄型化の観点から、 $0.01\sim 6.0\mu\text{m}$ が好ましく、 $0.01\sim 5.0\mu\text{m}$ が好ましく、 $0.1\sim 4.0\mu\text{m}$ がより好ましく、 $0.3\sim 3.5\mu\text{m}$ がさらに好ましい。平均粒径（ d_{50} ）とは、いわゆるメジアン径であり、レーザー回折・散乱法により粒度分布を測定し、累積分布において粒子の全体積を100%としたときに50%累積となるときの粒径を意味する。

多面体状アルミナフィラー（D）は、複数種類の異なる平均粒径（ d_{50} ）のものを組み合わせて使用することが好ましく、2種類の異なる平均粒径（ d_{50} ）のものを組み合わせて使用することがより好ましい。このようにすることで、接着剤層中の多面体状アルミナフィラー（D）の含有量をより高めて熱伝導性を向上させることができる。

多面体状アルミナフィラー（D）として、2種類の異なる平均粒径（ d_{50} ）を組み合わせて用いる場合、例えば、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に大きい多面体状アルミナフィラー（D1）の平均粒径は、 $1.0 \sim 8.0 \mu\text{m}$ が好ましく、 $2.0 \sim 6.0 \mu\text{m}$ がより好ましく、 $2.5 \sim 5.0 \mu\text{m}$ がさらに好ましく、 $2.5 \sim 4.0 \mu\text{m}$ がさらに好ましい。平均粒径（ d_{50} ）が相対的に小さい多面体状アルミナフィラー（D2）の平均粒径（ d_{50} ）は、 $0.10 \sim 0.80 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.20 \sim 0.70 \mu\text{m}$ がより好ましく、 $0.30 \sim 0.70 \mu\text{m}$ がさらに好ましく、 $0.35 \sim 0.65 \mu\text{m}$ がさらに好ましい。

さらに、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に小さい多面体状アルミナフィラー（D2）の含有量に対する、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に大きい多面体状アルミナフィラー（D1）の含有量の比の値（ $D1/D2$ ）（質量比）は、 $2 \sim 6$ が好ましく、 $3 \sim 5$ がより好ましい。

多面体状アルミナフィラー（D）として、複数種類の異なる平均粒径（ d_{50} ）のアルミナフィラーを組み合わせて使用する場合、少なくとも1種を真球状アルミナフィラーとすることができる。例えば、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に大きい多面体状アルミナフィラーに代えて、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に大きい真球状アルミナフィラーを使用することができ、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に小さい多面体状アルミナフィラーに代えて、平均粒径（ d_{50} ）が相対的に小さい真球状アルミナフィラーを使用することができる。

本発明において、「真球状」とは、上記「多面体」に該当せず、真球度が $0.5 \sim 1.0$ であること（好ましくは $0.6 \sim 1.0$ 、より好ましくは 0

、 $0.7 \sim 1.0$ 、さらに好ましくは $0.8 \sim 1.0$ であること)をいう。真球度は、走査電子顕微鏡を用いてアルミナフィラーを観察し、その面積と周囲長に基づき求めることができる。具体的な方法は以下の通りである。

(アルミナフィラーの真球度)

アルミナフィラーをガラスプレート上に少量載せて、走査電子顕微鏡(型番: FlexSEM 1000II、日立ハイテク社製)にて倍率を10000倍として観察する。観察画像に基づき、粒子解析ソフトを用いて、個々のアルミナフィラーについて、それぞれの面積と周囲長を測定し、下記式(1)及び(2)により個々の無機充填材の凹凸度を算出する。

$$\text{アルミナフィラーの凹凸度} = (\text{周囲長}^2 \times \text{面積}) \times 1 / 4\pi \dots (1)$$

$$\text{アルミナフィラーの真球度} = 1 / \text{アルミナフィラーの凹凸度} \dots (2)$$

観察画像内にあるアルミナフィラーを無作為に10個観察し、10個のアルミナフィラーの真球度の算術平均値を、アルミナフィラーの真球度とする。

[0035] 多面体状アルミナフィラー(D)は、表面処理や表面改質されていてもよく、このような表面処理や表面改質に用いる表面処理剤としては、シランカップリング剤やリン酸もしくはリン酸化合物、界面活性剤が挙げられ、本明細書において記載する事項以外は、例えば、国際公開第2018/203527号における熱伝導フィラーの項又は国際公開第2017/158994号の窒化アルミニウム充填材の項における、シランカップリング剤、リン酸もしくはリン酸化合物及び界面活性剤の記載を適用することができる。

[0036] シランカップリング剤としては、無機充填材の表面処理に使用されるものを特に制限なく使用することができる。

[0037] 本発明では、エポキシ樹脂(A)、エポキシ樹脂硬化剤(B)、高分子成分(C)、多面体状アルミナフィラー(D)、及びシランカップリング剤(E)の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー(D)の割合が、20~70体積%である。上記多面体状アルミナフィラー(D)の含有割合が上記下限値以上であると、フィルム状接着剤に所望とする熱伝導率及

び熔融粘度を付与することができ、半導体パッケージからの放熱効果が得られる。また、上記上限値以下であると、フィルム状接着剤に所望とする熔融粘度を付与することができ、被着体との接着力を高めることができる。

成分(A)～(E)の各含有量の合計に占める上記多面体状アルミナフィラー(D)の割合は、40～70体積%が好ましく、45～70体積%がより好ましく、50～70体積%がさらに好ましく、55～70体積%がさらに好ましく、55～65体積%であることがさらに好ましい。

上記多面体状アルミナフィラー(D)の含有量(体積%)は、各成分(A)～(E)の含有質量と比重から算出することができる。

[0038] <シランカップリング剤(E)>

本発明の接着剤用組成物は、シランカップリング剤(E)を含有している。本発明においては、多面体状アルミナフィラー(D)の表面処理に用いたシランカップリング剤(配合する多面体状アルミナフィラー(D)の表面にすでに結合ないし吸着しているシランカップリング剤)は、シランカップリング剤(E)に含めないものとする。

シランカップリング剤とは、ケイ素原子にアルコキシ基、アリアルオキシ基のような加水分解性基が少なくとも1つ結合したものであり、これに加えて、アルキル基、アルケニル基、アリアル基が結合してもよい。アルキル基は、アミノ基、アルコキシ基、エポキシ基、(メタ)アクリロイルオキシ基を置換基として有するものが好ましく、アミノ基(好ましくはフェニルアミノ基)、アルコキシ基(好ましくはグリシジルオキシ基)、(メタ)アクリロイルオキシ基を置換基として有するものがより好ましく、アミノ基を置換基として有するものが特に好ましい。

シランカップリング剤は、例えば、2-(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、3-グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシジルオキシプロピルトリエトキシシラン、3-グリシジルオキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシジルオキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキ

シシラン、メチルトリメトキシシシラン、メチルトリエトキシシシラン、フェニルトリメトキシシシラン、フェニルトリエトキシシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシシラン、3-メタクリロイルオキプロピルメチルジメトキシシシラン、3-メタクリロイルオキプロピルトリメトキシシシラン、3-メタクリロイルオキプロピルメチルジエトキシシシラン、3-メタクリロイルオキプロピルトリエトキシシシラン、ビニルトリメトキシシシランなどが挙げられる。

[0039] シランカップリング剤 (E) は、上述の (式 1) で表されるシランカップリング剤配合倍数を満たすように配合される。

[0040] (その他の添加物)

本発明の接着剤用組成物は、エポキシ樹脂 (A)、エポキシ樹脂硬化剤 (B)、高分子成分 (C)、多面体状アルミナフィラー (D)、及びシランカップリング剤 (E) の他に、本発明の効果を損なわない範囲で、有機溶媒 (メチルエチルケトン等)、イオントラップ剤 (イオン捕捉剤)、硬化触媒、粘度調整剤、酸化防止剤、難燃剤、着色剤等の、その他の添加物をさらに含有していてもよい。例えば、国際公開第 2017/158994 号に記載された、「その他の添加物」を含むことができる。

[0041] 本発明の接着剤用組成物中に占める、エポキシ樹脂 (A)、エポキシ樹脂硬化剤 (B)、高分子成分 (C)、多面体状アルミナフィラー (D) 及びシランカップリング剤 (E) の各含有量の合計の割合は、例えば、60 質量%以上とすることができ、70 質量%以上が好ましく、80 質量%以上がさらに好ましく、90 質量%以上とすることもできる。また、上記割合は 100 質量%でもよく、95 質量%以下とすることもできる。

本発明の接着剤用組成物は、本発明のフィルム状接着剤を得るために好適に用いることができる。ただし、フィルム状接着剤に限定されず、例えば、液状ないしペースト状の接着剤を得るためにも好適に用いることができる。

[0042] 本発明の接着剤用組成物は、上記各成分を、エポキシ樹脂 (A) が事実上、硬化しない温度において混合することにより得ることができる。混合の順

は特に限定されない。エポキシ樹脂（A）、高分子成分（C）等の樹脂成分を必要に応じて溶媒と共に混合し、その後、多面体状アルミナフィラー（D）、エポキシ樹脂硬化剤（B）及びシランカップリング剤（E）を混合してもよい。この場合、エポキシ樹脂硬化剤（B）の存在下での混合を、エポキシ樹脂（A）が事実上、硬化しない温度で行えばよく、エポキシ樹脂硬化剤（B）の非存在下での樹脂成分の混合はより高い温度で行ってもよい。

[0043] 本発明の接着剤用組成物は、エポキシ樹脂（A）の硬化を抑制する観点から、使用前（フィルム状接着剤とする前）には10℃以下の温度条件下で保管されることが好ましい。

[0044] [熱伝導性フィルム状接着剤]

本発明の熱伝導性フィルム状接着剤は、本発明の接着剤用組成物より得られてなるフィルム状の接着剤である。したがって、上述の、エポキシ樹脂（A）、エポキシ樹脂硬化剤（B）、高分子成分（C）、多面体状アルミナフィラー（D）及びシランカップリング剤（E）を含有してなる。その他、本発明の接着剤用組成物においてその他の添加物として記載する添加物のうち、有機溶媒以外の添加物を含有していてもよい。

[0045] より具体的には、本発明の熱伝導性フィルム状接着剤は次の通り特定されるものである。

少なくともエポキシ樹脂（A）、エポキシ樹脂硬化剤（B）、高分子成分（C）、多面体状アルミナフィラー（D）、及びシランカップリング剤（E）を含有し、

前記エポキシ樹脂（A）、前記エポキシ樹脂硬化剤（B）、前記高分子成分（C）、前記多面体状アルミナフィラー（D）、及び前記シランカップリング剤（E）の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー（D）の割合が20～70体積%であり、

下記（式1）で示されるシランカップリング剤配合倍数が1.0～10である、熱伝導性フィルム状接着剤。

（式1）

シランカップリング剤配合倍数＝シランカップリング剤（E）配合量（g）／シランカップリング剤（E）必要量（g）

（式 11）

シランカップリング剤（E）必要量（g）＝〔多面体状アルミナフィラー（D）配合量（g）×多面体状アルミナフィラー（D）の比表面積（ m^2/g ）〕／シランカップリング剤（E）の最小被覆面積（ m^2/g ）

[0046] 有機溶媒を含有する接着剤用組成物を用いて本発明のフィルム状接着剤を形成する場合は、溶媒は通常、乾燥により接着剤用組成物から除去される。したがって、本発明のフィルム状接着剤中の溶媒の含有量は1000ppm（ppmは質量基準）以下であり、通常は0.1～1000ppmである。

ここで、本発明において「フィルム」とは、厚み200 μm 以下の薄膜を意味する。形状、大きさ等は、特に制限されず、使用態様にあわせて適宜調整することができる。

本発明のフィルム状接着剤は硬化前の状態、すなわちBステージの状態にある。

[0047] 本発明において、硬化前のフィルム状接着剤とは、エポキシ樹脂（A）が熱硬化する前の状態にあるものをいう。熱硬化前のフィルム状接着剤とは、具体的には、フィルム状接着剤を調製後、25℃以上の温度条件に72時間以上曝されておらず、かつ、30℃を越える温度条件に曝されていないフィルム状接着剤を意味する。一方、硬化後のフィルム状接着剤とは、エポキシ樹脂（A）が熱硬化した状態にあるものをいう。なお、上記の説明は、本発明の接着剤用組成物の特性を明確にするためのものであり、本発明のフィルム状接着剤が、25℃以上の温度条件に72時間以上曝されておらず、かつ、30℃を越える温度条件に曝されていないものに限定されるものではない。

[0048] 本発明のフィルム状接着剤は、半導体製造工程においてダイアタッチフィ

ルムとして好適に用いることができる。

- [0049] 本発明のフィルム状接着剤は、ダイアタッチ性を高める観点から、熱硬化前のフィルム状接着剤を25℃から5℃/分の昇温速度で昇温したとき、120℃における溶融粘度が250～10000 Pa・sの範囲にあることが好ましく、500～10000 Pa・sの範囲にあることがより好ましく、600～9200 Pa・sの範囲にあることがより好ましく、700～8000 Pa・sの範囲にあることがさらに好ましく、2000～7200 Pa・sの範囲にあることが特に好ましい。

溶融粘度は、後述する実施例に記載の方法により決定することができる。

溶融粘度は、多面体状アルミナフィラー（D）の含有量、さらには、多面体状アルミナフィラー（D）の粒径に加え、エポキシ樹脂（A）、エポキシ樹脂硬化剤（B）、高分子成分（C）及びシランカップリング剤（E）等の、共存する化合物もしくは樹脂の種類やこれらの含有量により適宜に制御できる。

- [0050] 本発明のフィルム状接着剤は、熱伝導率が1.0 W/m・K以上であることが好ましく、1.0～5.0 W/m・Kがより好ましく、1.5～4.5 W/m・Kがより好ましく、1.7～4.5 W/m・Kがさらに好ましく、2.3～4.2 W/m・Kが特に好ましい。

- [0051] 本発明における熱伝導率は、実施例に記載の方法により決定されるものである。すなわち、フィルム状接着剤を介して2枚のシリコンチップを接着して、シリコンチップ/フィルム状接着剤/シリコンチップ構造とした上でフィルム状接着剤を熱硬化させて模擬半導体パッケージの形態とする。模擬半導体パッケージ形態におけるフィルム状接着剤の熱抵抗を、Mentor Graphics 社製 DynTIM Tester（+T3Ster）を用いて、測定する。熱抵抗の測定条件は、実施例に記載の測定条件を用いることができる。

ここで、一般的に熱伝導率はサンプルの厚みと熱抵抗の値より下記式（3）により算出できる。

式 (3)

λ (W/m · K、熱伝導率) = L (m、サンプル厚み) / R (m² · K / W、サンプル熱抵抗)

本発明では、フィルム状接着剤の厚みを10 μm、20 μm、及び50 μmとして、各厚みにおける熱抵抗を測定し、得られた各厚みにおける熱抵抗を厚みに対してプロットして、最小二乗法により近似直線を得、その傾きの逆数として熱伝導率（パッケージ形態熱伝導率）を算出する。このようにすることにより、測定に用いた機器（フィルム状接着剤の上下に配したシリコンチップを含む）による熱抵抗をキャンセルでき、フィルム状接着剤それ自体の熱伝導率を正確に測定することができる。

上記測定方法によれば、実際の使用環境（実装状態）により近い状態で、フィルム状接着剤そのものの熱伝導性を評価することができる。

[0052] 本発明のフィルム状接着剤は、25℃におけるダイシエア強度が20 MPa以上であることが好ましい。ダイシエア強度が上記範囲にあると、被着体に半導体チップを確実に接着できる点で好ましい。

ダイシエア強度は、実施例に記載の方法により測定することができる。

[0053] 本発明のフィルム状接着剤は、厚みが1～80 μmであることが好ましく、1～50 μmであることがより好ましく、1～20 μmであることがより好ましい。

フィルム状接着剤の厚みは、接触・リニアゲージ方式（卓上型接触式厚み計測装置）により測定することができる。

[0054] 本発明のフィルム状接着剤は、本発明の接着剤用組成物（ワニス）を調製し、この組成物を、離型処理された基材フィルム上に塗布し、必要に応じて乾燥させて形成することができる。接着剤用組成物は、通常は有機溶媒を含有する。

離型処理された基材フィルムとしては、得られるフィルム状接着剤のカバーフィルムとして機能するものであればよく、公知のものを適宜採用することができる。例えば、離型処理されたポリプロピレン（PP）、離型処理さ

れたポリエチレン（PE）、離型処理されたポリエチレンテレフタレート（PET）が挙げられる。

塗工方法としては、公知の方法を適宜採用することができ、例えば、ロールナイフコーター、グラビアコーター、ダイコーター、リバースコーター等を用いた方法が挙げられる。

乾燥は、エポキシ樹脂（A）を硬化せずに、接着剤用組成物から有機溶媒を除去してフィルム状接着剤とできればよく、例えば、80～150℃の温度で1～20分保持することにより行うことができる。

[0055] 本発明のフィルム状接着剤は、本発明のフィルム状接着剤単独で構成されていてもよく、フィルム状接着剤の少なくとも一方の面に上述の離型処理された基材フィルムが貼り合わされてなる形態であってもよい。さらに、ダイシングフィルムと一体として、ダイシング・ダイアタッチフィルムの形態としてもよい。また、本発明のフィルム状接着剤は、フィルムを適当な大きさに切り出した形態であってもよく、フィルムをロール状に巻いてなる形態であってもよい。

[0056] 本発明のフィルム状接着剤は、エポキシ樹脂（A）の硬化を抑制する観点から、使用前（硬化前）には10℃以下の温度条件下で保管されることが好ましい。

[0057] [半導体パッケージ及びその製造方法]

次いで、図面を参照しながら本発明の半導体パッケージ及びその製造方法の好適な実施形態について詳細に説明する。なお、以下の説明及び図面中、同一又は相当する要素には同一の符号を付し、重複する説明は省略する。図1～図7は、本発明の半導体パッケージの製造方法の各工程の好適な一実施形態を示す概略縦断面図である。

[0058] 本発明の半導体パッケージの製造方法においては、先ず、第1の工程として、図1に示すように、表面に少なくとも1つの半導体回路が形成された半導体ウェハ1の裏面（すなわち、半導体ウェハ1の半導体回路が形成されていない面）に、本発明のフィルム状接着剤2（ダイアタッチフィルム2）を

熱圧着して接着剤層（フィルム状接着剤2）を設け、次いで、この接着剤層（フィルム状接着剤2）を介して、ダイシングフィルム3（ダイシングテープ3）を設ける。図1では、フィルム状接着剤2をダイシングフィルム3よりも小さく示しているが、両フィルムの大きさ（面積）は、目的に応じて適宜に設定される。熱圧着の条件は、エポキシ樹脂（A）が事実上熱硬化しない温度で行う。例えば、70℃程度で、圧力0.3MPa程度の条件が挙げられる。

半導体ウェハ1としては、表面に少なくとも1つの半導体回路が形成された半導体ウェハを適宜用いることができ、例えば、シリコンウェハ、SiCウェハ、GaAsウェハ、GaNウェハが挙げられる。本発明のフィルム状接着剤（ダイアタッチフィルム）を半導体ウェハ1の裏面に設けるには、例えば、ロールラミネーター、マニュアルラミネーターのような公知の装置を適宜用いることができる。

上記においては、ダイアタッチフィルムとダイシングフィルムとを別々に貼り付けているが、本発明のフィルム状接着剤がダイシング・ダイアタッチフィルムの形態である場合には、フィルム状接着剤とダイシングフィルムとを一体に貼り付けることができる。

[0059] 次いで、第2の工程として、図2に示すように、半導体ウェハ1と接着剤層（ダイアタッチフィルム2）とを一体にダイシングすることにより、ダイシングフィルム3上に、半導体ウェハが個片化された半導体チップ4と、フィルム状接着剤2が個片化されたフィルム状接着剤片2とを備える接着剤層付き半導体チップ5を得る。ダイシング装置は特に制限されず、通常のダイシング装置を適宜に用いることができる。

[0060] 次いで、第3の工程として、接着剤層付き半導体チップ5をダイシングフィルム3から剥離する。この際、必要によりダイシングフィルムをエネルギー線で硬化して粘着力を低減してもよい。剥離は、接着剤層付き半導体チップ5をピックアップすることにより行うことができる。次いで、図3に示すように、接着剤層付き半導体チップ5と配線基板6とをフィルム状接着剤片

2を介して熱圧着し、配線基板6に接着剤層付き半導体チップ5を実装する。配線基板6としては、表面に半導体回路が形成された基板を適宜用いることができ、例えば、プリント回路基板（PCB）、各種リードフレーム、及び、基板表面に抵抗素子やコンデンサー等の電子部品が搭載された基板が挙げられる。

このような配線基板6に接着剤層付き半導体チップ5を実装する方法としては特に制限されず、従来の熱圧着による実装方法を適宜に採用することができる。

[0061] 次いで、第4の工程として、フィルム状接着剤片2を熱硬化させる。熱硬化の温度としては、フィルム状接着剤片2の熱硬化開始温度以上であれば特に制限がなく、使用するエポキシ樹脂（A）、高分子成分（C）及びエポキシ硬化剤（B）の種類により適宜に調整される。例えば、100～180℃が好ましく、より短時間で硬化させる観点からは140～180℃がより好ましい。温度が高すぎると、硬化過程にフィルム状接着剤片2中の成分が揮発して発泡しやすくなる傾向にある。この熱硬化処理の時間は、加熱温度に応じて適宜に設定すればよく、例えば、10～120分間とすることができる。

[0062] 本発明の半導体パッケージの製造方法では、図4に示すように、配線基板6と接着剤層付き半導体チップ5とをボンディングワイヤー7を介して接続することが好ましい。このような接続方法としては特に制限されず、従来公知の方法、例えば、ワイヤーボンディング方式の方法、TAB（Tape Automated Bonding）方式の方法等を適宜採用することができる。

[0063] また、搭載された半導体チップ4の表面に、別の半導体チップ4を熱圧着、熱硬化し、再度ワイヤーボンディング方式により配線基板6と接続することにより、複数個積層することもできる。例えば、図5に示すように半導体チップをずらして積層する方法、もしくは図6に示すように2層目以降のフィルム状接着剤片2を厚くすることで、ボンディングワイヤー7を埋め込み

ながら積層する方法等がある。

[0064] 本発明の半導体パッケージの製造方法では、図7に示すように、封止樹脂8により配線基板6と接着剤層付き半導体チップ5とを封止することが好ましく、このようにして半導体パッケージ9を得ることができる。封止樹脂8としては特に制限されず、半導体パッケージの製造に用いることができる適宜公知の封止樹脂を用いることができる。また、封止樹脂8による封止方法としても特に制限されず、通常行われている方法を採用することができる。

本発明の半導体パッケージは、上述の半導体パッケージの製造法により製造され、半導体チップと配線基板、又は半導体チップ間の少なくとも1か所が、本発明のフィルム状接着剤の熱硬化体により接着されている。

実施例

[0065] 以下、実施例及び比較例に基づいて本発明をより具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

実施例及び比較例において、室温とは25℃を意味し、MEKはメチルエチルケトン、IPAはイソプロピルアルコール、PETはポリエチレンテレフタレートである。「%」、「部」は、特に断りのない限り質量基準である。

[0066] (実施例1)

トリフェニルメタン型エポキシ樹脂(商品名: EPPN-501H、重量平均分子量: 1000、軟化点: 55℃、固体、エポキシ当量: 167g/eq、日本化薬(株)製)56質量部、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(商品名: YD-128、重量平均分子量: 400、軟化点: 25℃以下、液体、エポキシ当量: 190g/eq、新日化エポキシ製造(株)製)49質量部、及び、ビスフェノールA型フェノキシ樹脂(商品名: YP-50、重量平均分子量: 70000、Tg: 84℃、新日化エポキシ製造(株)製)30質量部、MEK 67質量部を1000mlのセパラブルフラスコ中において、温度110℃で2時間加熱攪拌し、樹脂ワニスを得た。

次いで、この樹脂ワニスの全量(202質量部)を800mlのプラネタ

リーミキサーに移し、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）：3.5 μm 、比表面積：0.6 m^2/g 、住友化学（株）製）205質量部、イミダゾール型硬化剤（商品名：2PHZ-PW、四国化成（株）製）8.5質量部、シランカップリング剤（3-グリシジルオキシトリメトキシシラン、商品名：KBM-403、シランカップリング剤最小被覆面積：330 m^2/g 、信越化学工業（株）製）3.0質量部を加えて室温において1時間攪拌混合後、真空脱泡して混合ワニス（接着剤用組成物）を得た。

次いで、得られた混合ワニスを厚さ38 μm の離型処理されたPETフィルム上に塗布して加熱乾燥（130°Cで10分間保持）し、フィルム状接着剤の厚さが10 μm 、20 μm 、又は50 μm である剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0067]（実施例2）

多面体状アルミナフィラーの配合量を319質量部としたこと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0068]（実施例3）

多面体状アルミナフィラーの配合量を478質量部としたこと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0069]（実施例4）

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）：3.5 μm 、比表面積：0.6 m^2/g 、住友化学（株）製）383質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒径（ d_{50} ）：0.58 μm 、比表面積：3.2 m^2/g 、住友化学（株）製）96質量部を使用したこと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0070]（実施例5）

シランカップリング剤の配合量を4.5質量部とし、フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）：3.5 μm 、比表面積：0.6 m^2/g 、住友化学（株）製）580質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒径（ d_{50} ）：0.58 μm 、比表面積：3.2 m^2/g 、住友化学（株）製）145質量部を使用したこと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0071]（実施例6）

シランカップリング剤の配合量を5.5質量部とし、フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）：3.5 μm 、比表面積：0.6 m^2/g 、住友化学（株）製）725質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒径（ d_{50} ）：0.58 μm 、比表面積：3.2 m^2/g 、住友化学（株）製）181質量部を使用したこと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0072]（実施例7）

シランカップリング剤として、シランカップリング剤（ビニルトリメトキシシラン、商品名：KBM-1003、シランカップリング剤最小被覆面積：515 m^2/g 、信越化学工業（株）製）3.0質量部を使用したこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0073]（実施例8）

シランカップリング剤として、シランカップリング剤（3-アミノプロピルトリメトキシシラン、商品名：KBM-903、シランカップリング剤最小被覆面積：353 m^2/g 、信越化学工業（株）製）3.0質量部を使用したこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0074]（実施例9）

シランカップリング剤として、シランカップリング剤（3-グリシジルオキシプロピルメチルジメトキシシラン、商品名：KBM-402、シランカップリング剤最小被覆面積：354 m²/g、信越化学工業（株）製）3.0質量部を使用したこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0075]（実施例10）

フェノキシ樹脂に代えて、ウレタン樹脂溶液（商品名：ダイナレオVA-9310MF、重量平均分子量：110000、T_g：27℃、貯蔵弾性率：289 MPa、溶媒：MEK/IPA混合溶媒、トーヨーケム（株）製）120質量部（うちウレタン樹脂30質量部）を配合したこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0076]（実施例11）

フェノキシ樹脂に代えて、アクリル樹脂（商品名：SG-280EK23、重量平均分子量：800000、T_g：-29℃、貯蔵弾性率：6.5 MPa、ナガセケムテックス（株）製）30質量部を配合し、シクロヘキサノン90質量部を配合したこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0077]（実施例12）

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（d₅₀）：3.5 μm、比表面積：0.6 m²/g、住友化学（株）製）383質量部及び真球状アルミナフィラー（商品名：AO502、平均粒径（d₅₀）：0.2 μm、比表面積：8.0 m²/g、真球度0.99、アドマテックス社製）96質量部を配合し、シランカップリング剤の配合量を5.0質量部としたこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。実施例12において、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、高分子成分、シランカップリング剤、及び無機充填材の各含有量の合計に占める真球状アルミナフィラーの割合（体積%）は、

10体積%であった。

[0078] (実施例13)

フィラーとして、真球状アルミナフィラー（商品名：AZ2-75、平均粒径（ d_{50} ）： $3.0\mu\text{m}$ 、比表面積： $1.3\text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、日鉄ケミカル&マテリアル社製）383質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒径（ d_{50} ）： $0.58\mu\text{m}$ 、比表面積： $3.2\text{m}^2/\text{g}$ 、住友化学（株）製）96質量部を配合し、シランカップリング剤の配合量を5.0質量部としたこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。実施例13において、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、高分子成分、シランカップリング剤、及び無機充填材の各含有量の合計に占める真球状アルミナフィラーの割合（体積%）は、40体積%であった。

[0079] (比較例1)

多面体状アルミナフィラーの配合量を470質量部とし、シランカップリング剤の配合量を0.4質量部としたこと以外は、実施例3と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0080] (比較例2)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）： $3.5\mu\text{m}$ 、比表面積： $0.6\text{m}^2/\text{g}$ 、住友化学（株）製）375質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒径（ d_{50} ）： $0.58\mu\text{m}$ 、比表面積： $3.2\text{m}^2/\text{g}$ 、住友化学（株）製）94質量部を配合し、シランカップリング剤を使用しなかったこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0081] (比較例3)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）： $3.5\mu\text{m}$ 、比表面積： $0.6\text{m}^2/\text{g}$ 、住友化学（株）製）568質量部及び多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-05、平均粒

径 (d50) : 0.58 μm 、比表面積 : 3.2 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 142 質量部を配合し、シランカップリング剤の配合量を 1.2 質量部としたこと以外は、実施例 5 と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0082] (比較例 4)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-3、平均粒径 (d50) : 3.5 μm 、比表面積 : 0.6 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 428 質量部及び多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-05、平均粒径 (d50) : 0.58 μm 、比表面積 : 3.2 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 107 質量部を配合し、シランカップリング剤の配合量を 20.0 質量部としたこと以外は、実施例 8 と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0083] (比較例 5)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-3、平均粒径 (d50) : 3.5 μm 、比表面積 : 0.6 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 1160 質量部及び多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-05、平均粒径 (d50) : 0.58 μm 、比表面積 : 3.2 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 290 質量部を配合し、シランカップリング剤 4.5 質量部を使用したこと以外は、実施例 8 と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0084] (比較例 6)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-3、平均粒径 (d50) : 3.5 μm 、比表面積 : 0.6 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 377 質量部及び多面体状アルミナフィラー (商品名 : AA-05、平均粒径 (d50) : 0.58 μm 、比表面積 : 3.2 m^2/g 、住友化学 (株) 製) 94 質量部を配合し、シランカップリング剤の配合量を 0.8 質量部としたこと以外は、実施例 4 と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0085] (参考例1)

フィラーとして、真球状アルミナフィラー（商品名：AZ2-75、平均粒径（ d_{50} ）： $3.0\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $1.3\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、日鉄ケミカル&マテリアル社製）378質量部及び真球状アルミナフィラー（商品名：ASFP-05S、平均粒径（ d_{50} ）： $0.6\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $3.6\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、デンカ社製）95質量部を用い、シランカップリング剤の配合量を1.3質量部としたこと以外は、実施例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0086] (参考例2)

フィラーとして、真球状アルミナフィラー（商品名：AZ2-75、平均粒径（ d_{50} ）： $3.0\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $1.3\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、日鉄ケミカル&マテリアル社製）570質量部及び真球状アルミナフィラー（商品名：ASFP-05S、平均粒径（ d_{50} ）： $0.6\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $3.6\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、デンカ社製）143質量部を用い、シランカップリング剤の配合量を2.0質量部としたこと以外は、実施例5と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0087] (参考例3)

フィラーとして、真球状アルミナフィラー（商品名：AZ2-75、平均粒径（ d_{50} ）： $3.0\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $1.3\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、日鉄ケミカル&マテリアル社製）708質量部及び真球状アルミナフィラー（商品名：ASFP-05S、平均粒径（ d_{50} ）： $0.6\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $3.6\ \text{m}^2/\text{g}$ 、真球度：0.99、デンカ社製）177質量部を用い、シランカップリング剤の配合量を2.4質量部としたこと以外は、実施例6と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0088] (参考例4)

フィラーとして、多面体状アルミナフィラー（商品名：AA-3、平均粒径（ d_{50} ）： $3.5\ \mu\text{m}$ 、比表面積： $0.6\ \text{m}^2/\text{g}$ 、住友化学（株）製）201質量部を用い、シランカップリング剤の配合量を0.2質量部とした

こと以外は、実施例1と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0089] (参考例5)

フィラーとして、真球状アルミナフィラー（商品名：AZ2-75、平均粒径（ d_{50} ）：3.0 μm 、比表面積：1.3 m^2/g 、真球度：0.99、日鉄ケミカル&マテリアル社製）202質量部を用い、シランカップリング剤の配合量を0.4質量部としたこと以外は、参考例4と同様にして接着剤用組成物及び剥離フィルム付フィルム状接着剤を得た。

[0090] 各実施例、比較例、及び参考例で作成されたフィルム状接着剤の組成を表1～3に示す。空欄は、その成分を含有していないことを意味する。

表1～3中に示された「無機充填材含有量」は、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂硬化剤、高分子成分、シランカップリング剤、及び無機充填材の各含有量の合計に占める無機充填材の割合（体積%）を示す。

[0091] [試験例]

[0092] 各実施例、比較例、及び参考例において、無機充填材の比表面積の測定、フィルム状接着剤の120℃における溶融粘度の測定、バルク熱伝導率の測定、ダイシェア強度の測定、パッケージ組立性評価、熱伝導率（パッケージ形態）の評価は、それぞれ以下の通りに実施した。

[0093] (無機充填材の比表面積の測定)

各実施例、比較例、及び参考例に用いた無機充填材の比表面積は、BET法にてJIS Z 8830:2013 (ISO 9277:2010)に則り、下記条件により測定した。

測定機器：4連式比表面積・細孔分布測定装置 NOVA-TOUCH型 (Quantachrome社製)

使用ガス：窒素ガス

冷媒（温度）：液体窒素（77.35 K）

前処理条件：110℃、6時間以上真空脱気

測定相対圧力： $0.05 < P/P_0 < 0.3$

[0094] (溶融粘度の測定)

各実施例、比較例、及び参考例において得られた $10\mu\text{m}$ のフィルム状接着剤を縦 5.0cm ×横 5.0cm のサイズの正方形に切り取って、剥離フィルムを剥がしてからフィルム状接着剤同士を積層し、 70°C のステージ上で、ハンドローラーにて貼り合わせて、厚さが約 1.0mm である試験片を得た。この試験片について、レオメーター（RS6000（商品名）、Haake社製）を用い、温度範囲 $20\sim 250^\circ\text{C}$ 、昇温速度 $5^\circ\text{C}/\text{分}$ での粘性抵抗の変化を測定し、得られた温度－粘性抵抗曲線から、 120°C における溶融粘度（ $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ）を算出した。

[0095] (バルク熱伝導率の測定)

本試験は、フィルム状接着剤単体の熱伝導性を評価する試験である。

各実施例、比較例、及び参考例において得られた厚さ $10\mu\text{m}$ のフィルム状接着剤を一辺 50mm 以上の四角片に切り取り、切り取った四角片（フィルム状接着剤）を厚みが 5mm 以上になるように積層して積層体を得た。得られた積層体を、直径 50mm 、厚さ 5mm の円盤状金型の上に置き、圧縮プレス成型機を用いて温度 150°C 、圧力 2MPa において 10 分間加熱して取り出した後、さらに乾燥機中において温度 180°C で 1 時間加熱することによりフィルム状接着剤を熱硬化させ、直径 50mm 、厚さ 5mm の円盤状試験片を得た。

この試験片について、熱伝導率測定装置（商品名：HC-110、英弘精機（株）製）を用いて、熱流計法（JIS A 1412：2016に準拠）により熱伝導率（ $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ）を測定した。

本試験では、エポキシ樹脂を完全に硬化させるため、上記高温条件で熱硬化させた。

[0096] (ダイシエア強度評価)

各実施例、比較例、及び参考例において得られた $10\mu\text{m}$ の剥離フィルム付フィルム状接着剤を、先ず、マニュアルラミネーター（商品名：FM-1

14、テクノビジョン社製)を用いて、温度70℃、圧力0.3MPaの条件で、ダミーシリコンウェハ(8インチサイズ、厚さ365μm)の一方の面に接着させた。その後、フィルム状接着剤から剥離フィルムを剥離した後、同マニュアルラミネーターを用いて、室温、圧力0.3MPaの条件で、フィルム状接着剤の前記ダミーシリコンウェハとは反対側の面上にダイシングテープ(商品名:K-13、古河電気工業(株)製)及びダイシングフレーム(商品名:DTF2-8-1H001、DISCO社製)を接着させた。次いで、2軸のダイシングブレード(Z1:NBC-ZH2050(27HEDD)、DISCO社製/Z2:NBC-ZH127F-SE(BC)、DISCO社製)が設置されたダイシング装置(商品名:DFD-6340、DISCO社製)を用いて2mm×2mmのサイズの正方形になるようにダミーシリコンウェハ側からダイシングを実施して、ダイシングフィルム上に、個片化されたフィルム状接着剤(接着剤層)付きのダミーチップ(半導体チップ)を得た。

別途、ダミーシリコンウェハ(8インチサイズ、厚さ365μm)の実装面とは反対側の面に、マニュアルラミネーターを用いて、室温、圧力0.3MPaの条件で、ダイシングテープ(商品名:K-8、古河電気工業(株)製)及びダイシングフレーム(商品名:DTF2-8-1H001、DISCO社製)を接着させた。次いで、2軸のダイシングブレード(Z1:NBC-ZH2050(27HEDD)、DISCO社製/Z2:NBC-ZH127F-SE(BC)、DISCO社製)が設置されたダイシング装置(商品名:DFD-6340、DISCO社製)を用いて12mm×12mmのサイズの正方形になるようにシリコンウェハ側からダイシングを実施して、ダイシングフィルム上に、個片化されたシリコンチップを得た。

次いで、ダイボンダー(商品名:DB-800、(株)日立ハイテクノロジーズ製)にて、前記フィルム状接着剤付ダミーチップをダイシングテープからピックアップし、120℃、圧力0.5MPa(荷重200gf)、時間1.0秒の条件において、前記フィルム状接着剤付きダミーチップのフィ

ルム状接着剤側と、12mm×12mmサイズのシリコンチップの実装面側（凹凸のある面）とを貼り合わせるように、熱圧着した。この際、12mm×12mmサイズのシリコンチップの実装面側に、上記2mm×2mmのサイズのフィルム状接着剤付きダミーチップが2個、離間して配置されるようにした。こうして、2個のフィルム状接着剤付きダミーチップを1つの12mm×12mmのシリコンチップ上に実装したサンプルを得た。各実施例、比較例、及び参考例につきこのサンプルを4個作製した。これらのサンプルを乾燥機中に配置して温度120℃で2時間加熱することによりフィルム状接着剤を熱硬化させた。本試験では、熱硬化工程中のボイド発生を抑制する観点から、バルク熱硬化試験よりも、低温度かつ長時間の条件で熱硬化させた。

その後、前記フィルム状接着剤付ダミーチップの対シリコン表面に対するダイシェア強度をボンドテスター（商品名：4000万能型ボンドテスター、デージ（株））を用いて測定した。8個のフィルム状接着剤付ダミーチップについてダイシェア強度を測定し、さらにそれらの平均値を算出し（平均ダイシェア強度）、下記基準にて評価した。

— 評価基準 —

AA：平均ダイシェア強度が20MPa以上であり、8個全てのフィルム状接着剤付ダミーチップのダイシェア強度が20MPa以上である。

A：平均ダイシェア強度が20MPa以上であるが、ダイシェア強度が20MPa以上のフィルム状接着剤付ダミーチップが5～7個である。

B：平均ダイシェア強度が20MPa未満である。

[0097]（パッケージ組立性試験）

本試験は、フィルム状接着剤付ダミーチップを、フィルム状接着剤を介してシリコンチップに接着することによって、半導体パッケージの組み立てを模擬的に再現し、フィルム状接着剤とシリコンチップ（基板）との界面にお

けるボイドを指標にパッケージ組立性を評価する試験である。

各実施例、比較例、及び参考例において得られた厚さ $10\mu\text{m}$ の剥離フィルム付フィルム状接着剤を、先ず、マニュアルラミネーター（商品名：FM-114、テクノビジョン社製）を用いて、温度 70°C 、圧力 0.3MPa の条件で、ダミーシリコンウェハ（8インチサイズ、厚さ $365\mu\text{m}$ ）の一方の面に接着させた。その後、フィルム状接着剤から剥離フィルムを剥離した後、同マニュアルラミネーターを用いて室温、圧力 0.3MPa の条件で、フィルム状接着剤の前記ダミーシリコンウェハとは反対側の面上にダイシングテープ（商品名：K-13、古河電気工業（株）製）及びダイシングフレーム（商品名：DTF2-8-1H001、DISCO社製）を接着させた。次いで、2軸のダイシングブレード（Z1：NBC-ZH2050（27HEDD）、DISCO社製／Z2：NBC-ZH127F-SE（BC）、DISCO社製）が設置されたダイシング装置（商品名：DFD-6340、DISCO社製）を用いて $10\text{mm}\times 10\text{mm}$ のサイズの正方形になるようにダミーシリコンウェハ側からダイシングを実施して、ダイシングフィルム上に、個片化されたフィルム状接着剤付ダミーチップを得た。

別途、ダミーシリコンウェハ（8インチサイズ、厚さ $365\mu\text{m}$ ）の実装面とは反対側の面に、マニュアルラミネーターを用いて、室温、圧力 0.3MPa の条件で、ダイシングテープ（商品名：K-8、古河電気工業（株）製）及びダイシングフレーム（商品名：DTF2-8-1H001、DISCO社製）を接着させた。次いで、2軸のダイシングブレード（Z1：NBC-ZH2050（27HEDD）、DISCO社製／Z2：NBC-ZH127F-SE（BC）、DISCO社製）が設置されたダイシング装置（商品名：DFD-6340、DISCO社製）を用いて $12\text{mm}\times 12\text{mm}$ のサイズの正方形になるようにシリコンウェハ側からダイシングを実施して、ダイシングフィルム上に、個片化されたシリコンチップを得た。

次いで、ダイボンダー（商品名：DB-800、（株）日立ハイテクノロジーズ製）にて、前記フィルム状接着剤付ダミーチップをダイシングテープ

からピックアップし、120℃、圧力1.0MPa（荷重1000gf）、時間1.5秒の条件において、前記フィルム状接着剤付きダミーチップのフィルム状接着剤側と、12mm×12mmサイズのシリコンチップの実装面側とを貼り合わせるように、熱圧着した。この際、12mm×12mmサイズのシリコンチップの実装面内の中央に、10mm×10mmのフィルム状接着剤付ダミーチップが配置されるようにした。これを乾燥機中に配置して温度120℃で2時間加熱することによりフィルム状接着剤を熱硬化させた。本試験では、熱硬化工程中のボイド発生を抑制する観点から、バルク熱硬化試験よりも、低温度かつ長時間の条件で熱硬化させた。このようにしてダミーチップとシリコンチップとをフィルム状接着剤を介して積層した模擬半導体パッケージを得た。

このようにして得られた模擬半導体パッケージについて、超音波探傷装置（SAT）（日立パワーソリューションズ製 FS300III（商品名））を用いて、フィルム状接着剤とシリコンチップ実装面との界面におけるボイドの有無を観察した。観察は、周波数100MHzのプロブ又は周波数50MHzのプロブを用いて行った。5個の模擬半導体パッケージについて観察を行い、下記評価基準に基づいて、評価を行った。周波数100MHzのプロブの方が、周波数50MHzのプロブよりも小さなボイドを観察することができる。本試験において、評価ランク「A」が合格レベルである。

— 評価基準 —

AA：周波数100MHzプロブを用いて観察した際に、5個の模擬半導体パッケージの全てにおいてボイドが観察されない。

A：上記「AA」の基準を満たさないが、周波数50MHzプロブを用いて観察した際に、5個の模擬半導体パッケージの全てにおいてボイドが観察されない。

B：周波数50MHzプロブを用いて観察した際に、1～4個の模擬

半導体パッケージにおいてボイドが観察される。

C：周波数50MHzプローブを用いて観察した際に、5個の模擬半導体パッケージの全てにおいてボイドが観察される。

[0098] (パッケージ形態熱伝導率試験)

本試験は、フィルム状接着剤付ダミーチップを、フィルム状接着剤を介してシリコンチップに接着することにより、フィルム状接着剤が2枚のシリコンチップで挟持された、模擬半導体パッケージの形態（シリコンチップ（上述のダミーチップ）／フィルム状接着剤／シリコンチップ）とし、この形態におけるフィルム状接着剤の熱伝導率を評価する試験である。

各実施例、比較例、及び参考例において作製した、フィルム状接着剤の厚みを10 μ m、20 μ m、及び50 μ mとした3種類の剥離フィル付きフィルム状接着剤について、これらをそれぞれ上記パッケージ組立性試験と同方法にて模擬半導体パッケージの形態とした。これら模擬半導体パッケージをMentor Graphics社製DynTIM Tester（+T3Ster）を用いて、各模擬半導体パッケージにおけるフィルム状接着剤の熱抵抗を下記条件にて測定した。

雰囲気：大気中

測定方向：厚み方向

測定温度：23 $^{\circ}$ C（低温側ベース温度）

温度上昇：5～15 $^{\circ}$ C（サンプルの上下面温度差）

本試験においては、得られた熱抵抗の値を厚みに対してプロットして、その傾きの逆数としてパッケージ形態熱伝導率を算出した。こうすることにより、測定に用いた機器（フィルム状接着剤の上下に配した半導体チップ及びシリコンチップを含む）による熱抵抗をキャンセルし、フィルム状接着剤それ自体の熱伝導率を測定した。

このようにして得られたパッケージ形態熱伝導率を、下記評価基準に基づいて、評価した。

— 評価基準 —

AAA : パッケージ形態熱伝導率が $2.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上

AA : パッケージ形態熱伝導率が $1.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上 $2.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

A : パッケージ形態熱伝導率が $1.0 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上 $1.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

B : パッケージ形態熱伝導率が $0.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上 $1.0 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

C : パッケージ形態熱伝導率が $0.5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

[0099] 上記の各試験結果を下表に示す。

[0100]

[表1]

		実施例												
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
フィルム状接着剤組成物 (無機部)	エポキシ樹脂	EPPN-501H (トリフェニルメタン型エポキシ樹脂)	56	56	56	56	56	56	56	56	56	56	56	56
		YD-128 (液体BisA型エポキシ樹脂)	49	49	49	49	49	49	49	49	49	49	49	49
	高分子成分	YP-50 (BisA型エポキシ樹脂)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		VA-9310MF (クレタム樹脂)												
		SG-280EK23 (アクリル樹脂)												
	無機充填材	AA-3 (多面体状アルミナファイラー、平均粒径3.5 μm)	205	319	478	383	580	725	383	383	383	383	383	383
		AZ2-75 (黄球状アルミナファイラー、平均粒径3.0 μm)												
		AO502 (黄球状アルミナファイラー、平均粒径0.2 μm)												
		AA-05 (多面体状アルミナファイラー、平均粒径0.58 μm)				96	145	181	96	96	96	96	96	96
	シランカップリング剤	KBM-403 (3-グリシジルオキシトリメトキシシラン)	3.0	3.0	3.0	3.0	4.5	5.5				3.0	3.0	5.0
		KBM-1003 (ビニルトリメトキシシラン)							3.0					
		KBM-903 (3-アミノプロピルトリメトキシシラン)												
		KBM-402 (3-グリシジルオキシプロピルメチルジメトキシシラン)								3.0				
	硬化剤	2PHZ-PW (イミダゾール型硬化剤)	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5
		全面成分 (質量部)	351	465	624	624	872	1054	624	624	624	624	624	626
	無機充填材充填量 (体積%)	30.0	40.0	50.0	50.0	60.0	65.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	49.6	
	シランカップリング剤配合量 (g)	0.37	0.58	0.87	1.62	2.46	3.08	1.04	1.52	1.51	1.62	1.62	3.02	
	シランカップリング剤配合割合	8.0	5.2	3.5	1.8	1.8	1.8	2.9	2.0	2.0	1.8	1.8	1.7	
	120°Cにおける接着強度 (Pa・s)	300	540	800	790	2350	6750	710	680	735	1340	2120	750	
	パルク熱伝導率 (W/m・K)	1.2	1.6	2.0	2.3	3.2	4.0	2.3	2.5	2.3	2.2	2.3	2.1	
	ダイシエア強度評価	AA	AA	AA	AA	A	A	AA	AA	AA	A	A	AA	
	パッケージ組立性評価	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	
	パッケージ形熱伝導率 (W/m・K)	1.1	1.4	1.8	2.1	3.0	3.9	2.1	2.5	2.1	2.1	2.2	2.0	
	パッケージ形熱伝導率評価	A	A	AA	AA	AAA	AAA	AA	AAA	AA	AA	AA	AA	

表 1

[0101] [表2]

表 2

		参 考 例				
		1	2	3	4	5
フィルム状接着剤組成物 (質量部)	エポキシ樹脂					
	EPPN-501H (トリフェニルメタン型エポキシ樹脂)	56	56	56	56	56
	YD-128 (液状BisA型エポキシ樹脂)	49	49	49	49	49
	YP-50 (BisA型フェノキシ樹脂)	30	30	30	30	30
	VA-9310MF (ウレタン樹脂)					
	SG-280EK23 (アクリル樹脂)					
	AA-3 (多面体状アルミナフィラー、平均粒径35 μ m)				201	
	AZ2-75 (真球状アルミナフィラー、平均粒径30 μ m)	378	570	708		202
	ASFP-05S (真球状アルミナフィラー、平均粒径0.6 μ m)	95	143	177		
	KBM-403 (3-グリシジルオキシトリメトキシシラン)	1.3	2.0	2.4	0.2	0.4
	KBM-1003 (ビニルトリメトキシシラン)					
	KBM-903 (3-アミノプロピルトリメトキシシラン)					
	KBM-402 (3-グリシジルオキシプロピルメチルジメトキシシラン)					
	硬化剤					
	2PHZ-PW (イミダゾール型硬化剤)	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5
	全固形分 (質量部)	616	857	1030	344	345
	無機充填材充填量 (体積%)	50.0	60.0	65.0	30.0	30.0
	シランカップリング剤必要量 (g)	2.52	3.80	4.72	0.37	0.80
	シランカップリング剤配合倍数	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	120°Cにおける溶融粘度 (Pa \cdot s)	780	2100	5430	380	320
バルク熱伝導率 (W/m \cdot K)	1.5	2.0	2.6	1.2	1.0	
ダイシエア強度評価	A	A	A	A	A	
パッケージ組立性評価	A	A	A	AA	AA	
パッケージ形態熱伝導率 (W/m \cdot K)	1.1	1.4	1.8	0.9	0.7	
パッケージ形態熱伝導率評価	A	A	AA	B	B	

[0102]

[表3]

	比較例					
	1	2	3	4	5	6
エポキシ樹脂	EPPN-501H (トリフェニルメタン型エポキシ樹脂)	56	56	56	56	56
	YD-128 (液状BisA型エポキシ樹脂)	49	49	49	49	49
高分子成分	YP-50 (BisA型フェノキシ樹脂)	30	30	30	30	30
	VA-9310MF (ウレタン樹脂)					
	SG-280EK23 (アクリル樹脂)					
無機充填材	AA-3 (多面体状アルミナファイバー、平均粒径3.5 μ m)	470	375	568	428	1160
	AA-05 (多面体状アルミナ、平均粒径0.58 μ m)		94	142	107	290
シランカップリング剤	KBM-403 (3-グリシジルオキシトリメトキシシラン)	0.4		1.2		0.8
	KBM-903 (3-アミノプロピルトリメトキシシラン)				20.0	4.5
硬化剤	2PHZ-PW (イミダゾール型硬化剤)	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5
	全固形分 (質量部)	613	611	854	698	1597
	無機充填材充填量 (体積%)	50.0	50.0	60.0	50.0	75.0
	シランカップリング剤必要量 (g)	0.85	1.59	2.41	1.70	4.60
	シランカップリング剤配合倍率	0.5	0.0	0.5	11.8	1.0
	120 $^{\circ}$ Cにおける熔融粘度 (Pa \cdot s)	840	950	2670	570	10500
	バルク熱伝導率 (W/m \cdot K)	2.0	2.2	3.2	1.9	4.5
	ダイシエア強度評価	B	B	B	B	B
	パッケージ組立性	A	A	A	B	B
	パッケージ形態熱伝導率 (W/m \cdot K)	0.9	0.9	2.4	0.8	0.5
	パッケージ形態熱伝導率評価	B	B	AA	B	C
						A

表 3

[0103] <表の注>

上記表において、「エポキシ樹脂」、「高分子成分」、「無機充填材」、「シランカップリング剤」及び「硬化剤」欄に記載の数値の単位は、いずれも、「質量部」である。

[0104] 参考例1～3に示されるように、真球状アルミナフィラーを用いた場合には、真球状アルミナフィラーの配合量を50体積%以上に高めても、上記ダイシエア強度評価において、半数以上のサンプルにおいてダイシエア強度20MPa以上であり、ダイシエア強度の平均値も高く、良好な接着力を示している。

さらに、参考例4及び5に示されるように、真球状アルミナフィラー及び多面体状アルミナフィラーのいずれを用いた場合であっても、配合量は30体積%程度であれば、接着力は良好である。

一方で、多面体状アルミナフィラーを用いて、その配合量を50体積%以上に高めると、平均ダイシエア強度は20MPa未満となり、接着力に劣る結果となることがわかる（比較例1～6）。

これに対して、本発明の規定を満たす実施例1～13の接着剤用組成物を用いて形成されたフィルム状接着剤は、平均ダイシエア強度が20MPa以上であり、パッケージ形態熱伝導率も1.0W/m・K以上であった。無機充填材として多面体状アルミナフィラーを50体積%以上含有する実施例3～11においてもダイシエア強度及びパッケージ形態熱伝導率に優れている。本発明の接着剤用組成物を用いれば、無機充填材としての多面体状アルミナフィラーを含有していても、被着体との接着力が高く、熱伝導性に優れたフィルム状接着剤を形成できることがわかる。

さらに、実施例1～13のフィルム状接着剤は、被着体との界面においてボイドを形成しにくく、パッケージ組立性にも優れることも分かる。

[0105] 本発明をその実施態様とともに説明したが、我々は特に指定しない限り我々の発明を説明のどの細部においても限定しようとするものではなく、添付の請求の範囲に示した発明の精神と範囲に反することなく幅広く解釈されるべきであると考えらる。

[0106] 本願は、2022年3月30日に日本国で特許出願された特願2022-055427に基づく優先権を主張するものであり、これはここに参照してその内容を本明細書の記載の一部として取り込む。

符号の説明

- [0107]
- 1 半導体ウェハ
 - 2 接着剤層（フィルム状接着剤）
 - 3 ダイシングフィルム（ダイシングテープ）
 - 4 半導体チップ
 - 5 フィルム状接着剤片付き半導体チップ
 - 6 配線基板
 - 7 ボンディングワイヤー
 - 8 封止樹脂
 - 9 半導体パッケージ

請求の範囲

[請求項1] 少なくともエポキシ樹脂 (A)、エポキシ樹脂硬化剤 (B)、高分子成分 (C)、多面体状アルミナフィラー (D)、及びシランカップリング剤 (E) を含有し、

前記エポキシ樹脂 (A)、前記エポキシ樹脂硬化剤 (B)、前記高分子成分 (C)、前記多面体状アルミナフィラー (D)、及び前記シランカップリング剤 (E) の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー (D) の割合が20～70体積%であり、

下記 (式 I) で示されるシランカップリング剤配合倍数が1.0～10である、熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

(式 I)

シランカップリング剤配合倍数 = シランカップリング剤 (E) 配合量 (g) / シランカップリング剤 (E) 必要量 (g)

(式 I I)

シランカップリング剤 (E) 必要量 (g) = [多面体状アルミナフィラー (D) 配合量 (g) × 多面体状アルミナフィラー (D) の比表面積 (m²/g)] / シランカップリング剤 (E) の最小被覆面積 (m²/g)

[請求項2] 前記熱伝導性フィルム状接着剤用組成物により得られた熱伝導性フィルム状接着剤を25℃から5℃/分の昇温速度で昇温したとき、120℃における溶融粘度が250～10000 Pa・sの範囲に達し、

前記熱伝導性フィルム状接着剤の熱伝導率が1.0 W/m・K以上である、請求項1に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

[請求項3] 前記熱伝導性フィルム状接着剤の25℃におけるダイシエア強度が20 MPa以上である、請求項1又は2に記載の熱伝導性フィルム状

接着剤用組成物。

[請求項4] 前記エポキシ樹脂（A）、前記エポキシ樹脂硬化剤（B）、前記高分子成分（C）、前記多面体状アルミナフィラー（D）、及び前記シランカップリング剤（E）の各含有量の合計に占める前記多面体状アルミナフィラー（D）の割合が50～70体積%である、請求項1～3のいずれか1項に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物。

[請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載の熱伝導性フィルム状接着剤用組成物により得られてなる熱伝導性フィルム状接着剤。

[請求項6] 厚みが1～80 μm の範囲である、請求項5に記載の熱伝導性フィルム状接着剤。

[請求項7] 表面に半導体回路が形成された半導体ウェハの裏面に、請求項5又は請求項6に記載の熱伝導性フィルム状接着剤を熱圧着して接着剤層を設け、この接着剤層を介してダイシングフィルムを設ける第1の工程と、

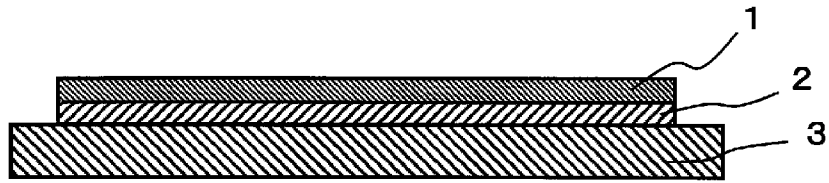
前記半導体ウェハと前記接着剤層とを一体にダイシングすることにより、前記ダイシングフィルム上に、フィルム状接着剤片と半導体チップとを備える接着剤層付き半導体チップを得る第2の工程と、

前記接着剤層付き半導体チップを前記ダイシングフィルムから剥離して前記接着剤層付き半導体チップと配線基板とを前記接着剤層を介して熱圧着する第3の工程と、

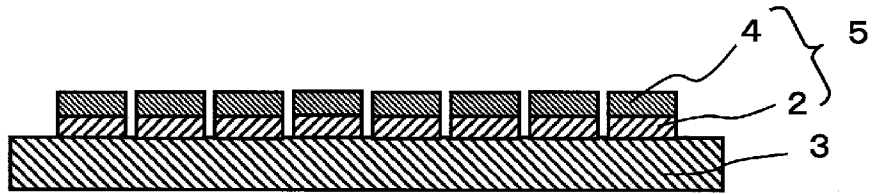
前記接着剤層を熱硬化する第4の工程と、
を含む、半導体パッケージの製造方法。

[請求項8] 請求項7に記載の製造方法により得られる、半導体パッケージ。

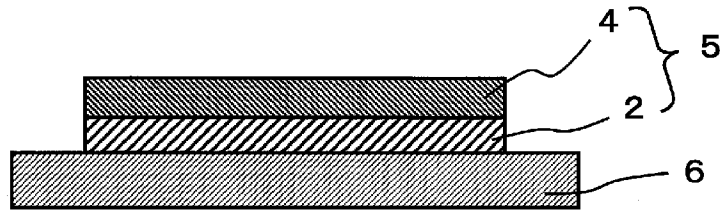
[図1]



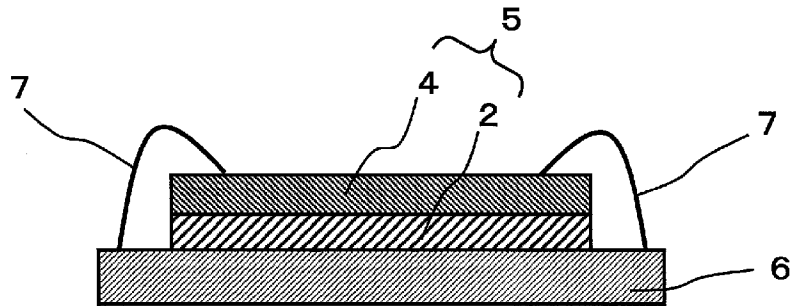
[図2]



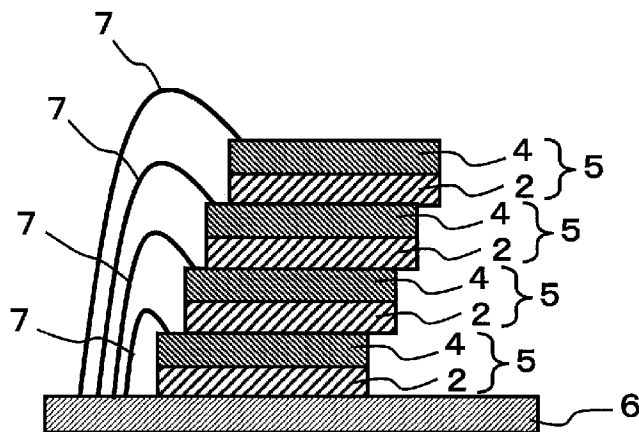
[図3]



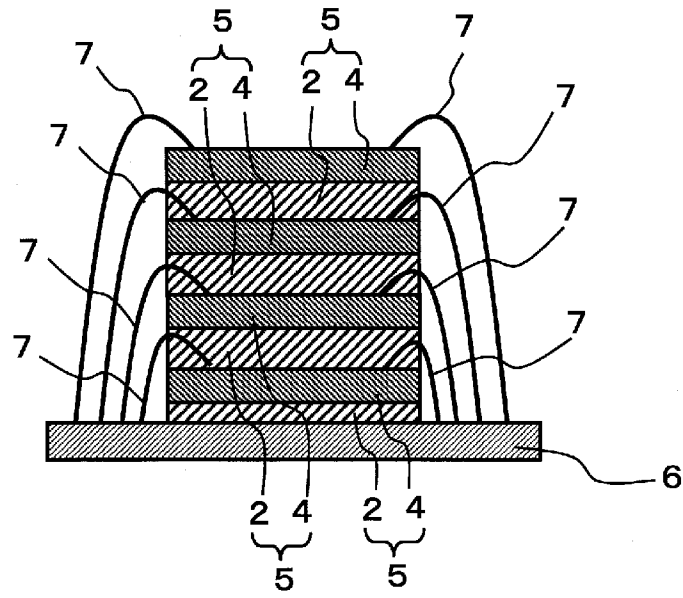
[図4]



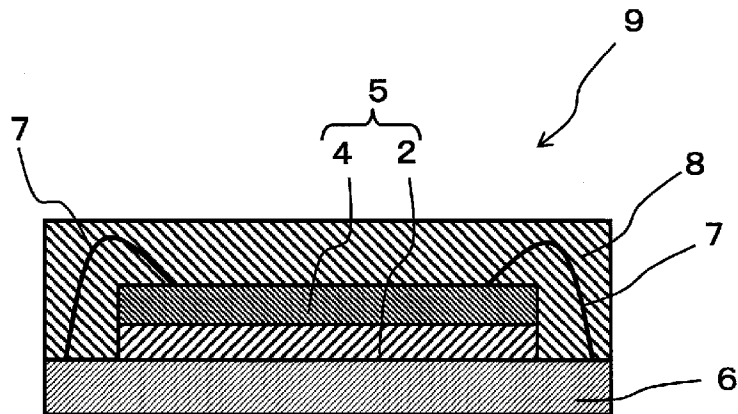
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/012170

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>C09J 5/06</i>(2006.01)i; <i>C09J 11/04</i>(2006.01)i; <i>C09J 11/06</i>(2006.01)i; <i>C09J 11/08</i>(2006.01)i; <i>C09J 163/00</i>(2006.01)i; <i>C09J 7/35</i>(2018.01)i; <i>H01L 21/52</i>(2006.01)i; <i>H01L 21/301</i>(2006.01)i FI: C09J163/00; C09J11/04; C09J11/06; C09J11/08; C09J7/35; H01L21/52 E; H01L21/52 C; H01L21/78 M; C09J5/06</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C09J1/00-5/10; C09J7/00-7/50; C09J9/00-201/10; H01L21/52; H01L21/78-21/80		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2022-27972 A (SHOWA DENKO MAT CO LTD) 14 February 2022 (2022-02-14) claims 1, 3, paragraphs [0001], [0005]-[0007], [0138], comparative example 5	1-2, 5-6
A		3-4, 7-8
A	JP 2019-21829 A (HITACHI CHEMICAL CO LTD) 07 February 2019 (2019-02-07) claims 1, 3-4, 8-13, paragraphs [0001], [0004], [0108], [0122], examples	1-8
A	JP 7042986 B1 (FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) 28 March 2022 (2022-03-28) claims 1, 5-9, paragraphs [0001], [0008], [0068], examples	1-8
A	JP 2021-50305 A (SHOWA DENKO MAT CO LTD) 01 April 2021 (2021-04-01) claims 1-5, paragraphs [0070], [0080], examples	1-8
A	WO 2017/191801 A1 (DIC CORPORATION) 09 November 2017 (2017-11-09) claims 1, 5, 8-11, paragraph [0035], examples	1-8
A	WO 2013/187303 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 19 December 2013 (2013-12-19) claims 1, 4, 8-10, paragraphs [0036]-[0039], examples	1-8
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 02 June 2023		Date of mailing of the international search report 13 June 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/012170

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2022-27972	A	14 February 2022	CN 108699402 A claims 1, 3, paragraphs [0001], [0010]-[0012], [0114], comparative example 5 KR 10-2018-0113210 A	
JP	2019-21829	A	07 February 2019	CN 110945634 A claims 1, 3-4, 8-13, paragraphs [0001], [0009], [0124], [0142], examples KR 10-2020-0026799 A	
JP	7042986	B1	28 March 2022	CN 115461423 A claims 1, 5-8, paragraphs [0001], [0014], [0168], examples	
JP	2021-50305	A	01 April 2021	(Family: none)	
WO	2017/191801	A1	09 November 2017	(Family: none)	
WO	2013/187303	A1	19 December 2013	US 2015/0181707 A1 claims 1, 4, 8-10, paragraphs [0077]-[0080], examples EP 2860219 A1 CN 104379668 A KR 10-2015-0032663 A	
JP	2018-134779	A	30 August 2018	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09J 5/06(2006.01)i; C09J 11/04(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 11/08(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; C09J 7/35(2018.01)i; H01L 21/52(2006.01)i; H01L 21/301(2006.01)i FI: C09J163/00; C09J11/04; C09J11/06; C09J11/08; C09J7/35; H01L21/52 E; H01L21/52 C; H01L21/78 M; C09J5/06		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C09J1/00-5/10; C09J7/00-7/50; C09J9/00-201/10; H01L21/52; H01L21/78-21/80 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2023年 日本国実用新案登録公報 1996-2023年 日本国登録実用新案公報 1994-2023年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 2022-27972 A（昭和電工マテリアルズ株式会社）14.02.2022（2022-02-14） [請求項1], [請求項3], [0001], [0005]-[0007], [0138], 比較例5	1-2, 5-6 3-4, 7-8
A	JP 2019-21829 A（日立化成株式会社）07.02.2019（2019-02-07） [請求項1], [請求項3]-[請求項4], [請求項8]-[請求項13], [0001], [0004], [0108], [0122], 実施例	1-8
A	JP 7042986 B1（古河電気工業株式会社）28.03.2022（2022-03-28） [請求項1], [請求項5]-[請求項9], [0001], [0008], [0068], 実施例	1-8
A	JP 2021-50305 A（昭和電工マテリアルズ株式会社）01.04.2021（2021-04-01） [請求項1]-[請求項5], [0070], [0080], 実施例	1-8
A	WO 2017/191801 A1（D I C株式会社）09.11.2017（2017-11-09） [請求項1], [請求項5], [請求項8]-[請求項11], [0035], 実施例	1-8
A	WO 2013/187303 A1（三菱瓦斯化学株式会社）19.12.2013（2013-12-19） [請求項1], [請求項4], [請求項8]-[請求項10], [0036]-[0039], 実施例	1-8
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	02.06.2023	国際調査報告の発送日 13.06.2023
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 藤田 雅也 4Z 8381 電話番号 03-3581-1101 内線 3480	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2018-134779 A (日立化成株式会社) 30.08.2018 (2018 - 08 - 30) [請求項1], [請求項4], [請求項7], [請求項16], [0078], [0091], 実施例	1-8

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/012170

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2022-27972	A	14.02.2022	CN	108699402	A	[請求項1],[請求項3], [0001],[0010]-[0012], [0114],比較例5 KR 10-2018-0113210 A
JP	2019-21829	A	07.02.2019	CN	110945634	A	[請求項1],[請求項3]-[請 求項4],[請求項8]-[請求 項13],[0001],[0009],[0124], [0142],実施例 KR 10-2020-0026799 A
JP	7042986	B1	28.03.2022	CN	115461423	A	[請求項1],[請求項5]-[請 求項8],[0001],[0014], [0168],実施例
JP	2021-50305	A	01.04.2021	(ファミリーなし)			
WO	2017/191801	A1	09.11.2017	(ファミリーなし)			
WO	2013/187303	A1	19.12.2013	US	2015/0181707	A1	Claims1,4,8-10,[0077]- [0080],examples EP 2860219 A1 CN 104379668 A KR 10-2015-0032663 A
JP	2018-134779	A	30.08.2018	(ファミリーなし)			