

(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
2020年9月24日(24.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/189309 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 59/42 (2006.01) *C09K 3/10* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
H01L 23/31 (2006.01) *H01L 21/56* (2006.01)
C08K 5/10 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
C08K 9/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/009452

(22) 国際出願日: 2020年3月5日(05.03.2020)

(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 2019-052976 2019年3月20日(20.03.2019) JP

(71) 出願人: 日立化成株式会社(**HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.**) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 山 浦 格 (**YAMAURA, Masashi**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 齋藤 貴大(**SAITO, Takahiro**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 春日 圭一(**KASUGA, Keiichi**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 池田 智博(**IKEDA, Tomohiro**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 田中 実佳(**TANAKA, Mika**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 馬場 徹(**BABA, Toru**); 〒1006606 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 Tokyo (JP). 児玉 俊輔(**KODAMA, Shunsuke**); 〒1006606 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 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人太陽国際特許事務所 (**TAIYO, NAKAJIMA & KATO**); 〒1600022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, 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:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) **Title:** RESIN COMPOSITION FOR SEALING, ELECTRONIC COMPONENT DEVICE, AND PRODUCTION METHOD FOR ELECTRONIC COMPONENT DEVICE

(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) **Abstract:** A resin composition for sealing which contains an epoxy resin, a curing agent, and an inorganic filler material, wherein the inorganic filler material comprises an inorganic filler material which has been surface treated.

(57) 要約: エポキシ樹脂と硬化剤と無機充填材とを含有し、前記無機充填材が表面処理された無機充填材を含む、封止用樹脂組成物。



WO 2020/189309 A1

明 細 書

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

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。

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。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2012-246367号公報

特許文献2：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、通信部材の材料にはさらなる誘電正接の低さが求められている。

[0006] 本開示の実施形態は、上記状況のもとになされた。

本開示は、硬化物の誘電正接を低減し且つ硬化物の外観不良を抑制す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。

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。

[0008] [1] エポキシ樹脂と硬化剤と無機充填材とを含有し、前記無機充填材が表面処理された無機充填材を含む、封止用樹脂組成物。

[2] 前記表面処理された無機充填材が、ケイ素系表面処理剤、チタネート系表面処理剤、アルミネート系表面処理剤及びアルキル化剤の少なくともいずれかで表面処理された無機充填材を少なくとも1種含む、[1]に記載の封止用樹脂組成物。

[3] 前記硬化剤が活性エステル化合物を含む、[1]又は[2]に記載の封止用樹脂組成物。

[4] ウエハレベルパッケージに用いるための、[1]～[3]のいずれかに記載の封止用樹脂組成物

[5] トランスファ成形に用いるための、[1]～[4]のいずれかに記載の封止用樹脂組成物。

[6] 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]～[5]のいずれか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。

[7] 素子を支持部材上に配置する工程と、前記素子を[1]～[5]のいずれか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

[0009] 本開示によれば、硬化物の誘電正接を低減し且つ硬化物の外観不良を抑制す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が提供される。

発明を実施するための形態

[0010] 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もよい。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もよい。

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、各成分の粒子径は、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。

[0011] <封止用樹脂組成物>

本開示の封止用樹脂組成物は、エポキシ樹脂と硬化剤と無機充填材とを含有し、前記無機充填材が表面処理された無機充填材を含む。

[0012] 本開示の封止用樹脂組成物は、無機充填材が表面処理された無機充填材を含んでおり、表面処理された無機充填材は表面処理されていない無機充填材に比べて単位量当たりの表面水酸基量が少ないので、硬化物に含まれる水酸基量が少なくなり、その結果、硬化物の誘電正接を低く抑えることができる。

[0013] 本開示の封止用樹脂組成物は、無機充填材が表面処理された無機充填材を含んでおり、表面処理された無機充填材は表面処理されていない無機充填材

に比べて凝集しにくいので、無機充填材の凝集に起因する外観不良（いわゆるフローマーク）を抑制することができる。

[0014] （エポキシ樹脂）

エポキシ樹脂は、分子中にエポキシ基を有するものであればその種類は特に制限されない。

[0015] 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 α -ナフトール、 β -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；ジシクロペンタ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タ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；ジシクロペン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ンタジエン変性エポキシ樹脂；シクロペン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ン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用いてもよい。

[0016] 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、電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、 $100\text{ g/eq} \sim 1000\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $150\text{ g/eq} \sim 500\text{ g/eq}$ であることがより好ましい。

エポキシ樹脂のエポキシ当量は、J I S K 7 2 3 6 : 2 0 0 9 に準じた方法で測定される値とする。

- [0017] 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。

エポキシ樹脂の融点又は軟化点は、示差走査熱量測定（D S C）又はJ I S K 7 2 3 4 : 1 9 8 6 に準じた方法（環球法）で測定される値とする。

- [0018] 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。

- [0019] （硬化剤）

本開示の封止用樹脂組成物は、硬化剤を含む。硬化促進剤の種類は特に制限されない。

硬化剤は活性エステル化合物を含むことが好ましい。本開示における活性エステル化合物とは、エポキシ基と反応するエステル基を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。

- [0020] 従来、エポキシ樹脂の硬化剤としては一般的にフェノール硬化剤、アミン硬化剤等が使用されているが、エポキシ樹脂とフェノール硬化剤又はアミン硬化剤との反応においては2級水酸基が発生する。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においては2級水酸基のかわりにエステル基が生じる。エステル基は2級水酸基に比べて極性が低い故、硬化剤として活性エステル化合物を含有する封止用樹脂組成物は、硬化剤として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。

- [0021] 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 H_2O 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%~0.28%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ー試験（121℃、2.1気圧、24時間）によって求められる質量増加率である。

[0022] 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。

[0023] 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。

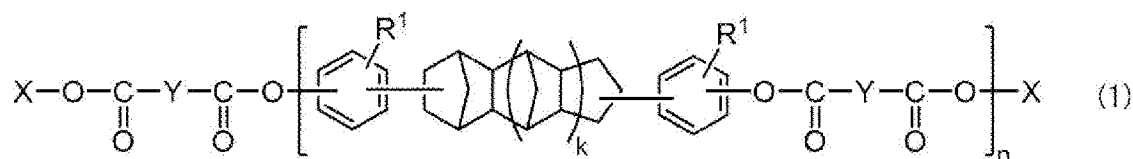
[0024] 活性エステル化合物としては、例えば、脂肪族カルボン酸及び芳香族カルボン酸の少なくとも1種と脂肪族ヒドロキシ化合物及び芳香族ヒドロキシ化合物の少なくとも1種とから得られるエステル化合物が挙げられる。脂肪族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、脂肪族鎖を有することによりエポキシ樹脂との相溶性に優れる傾向にある。芳香族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、芳香環を有することにより耐熱性に優れる傾向にある。

[0025] 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。

[0026] 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。

[0027] [化1]

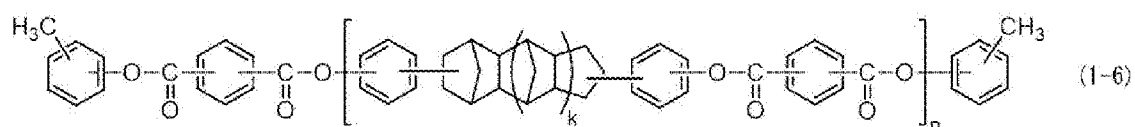
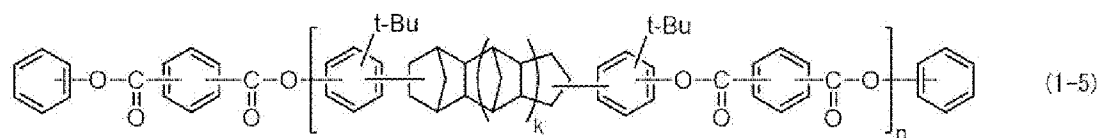
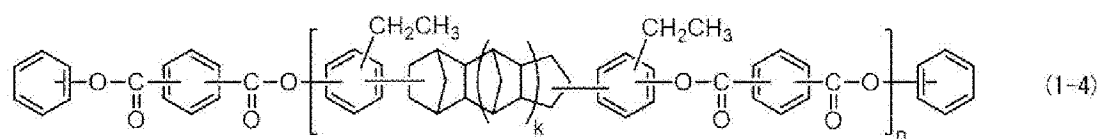
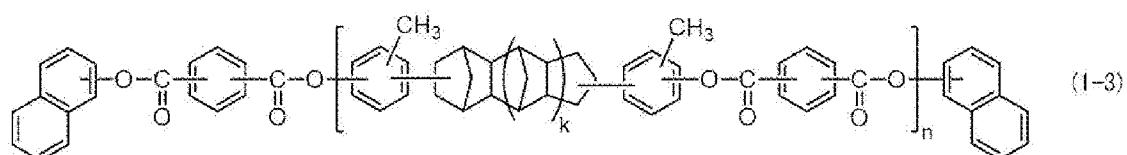
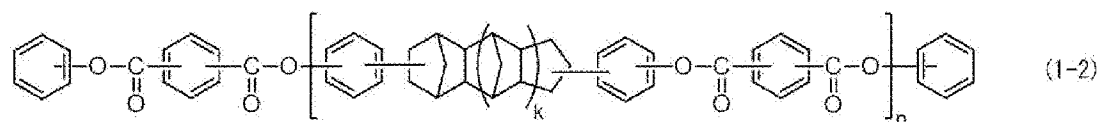
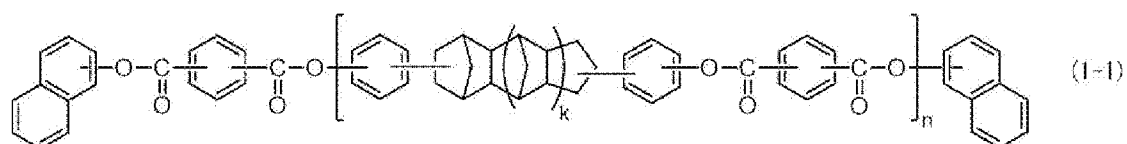


[0028] 構造式 (1) 中、 R^1 は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基であり、 X はベンゼン環、ナフタレン環、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環、又はビフェニル基であり、 Y はベンゼン環、ナフタレン環、又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環であり、 k は 0 又は 1 であり、 n は繰り返し数の平均を表し 0.25 ~ 1.5 である。

[0029] 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 $t\text{-Bu}$ は、 $t\text{ert}$ -ブチル基である。

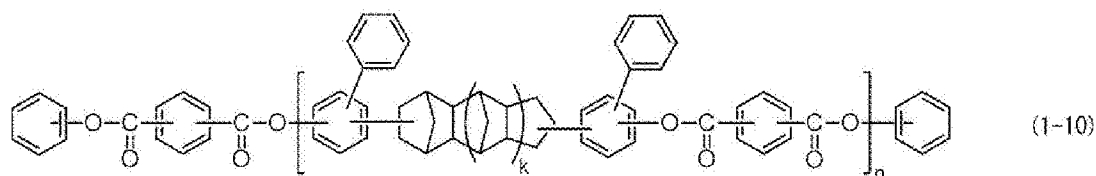
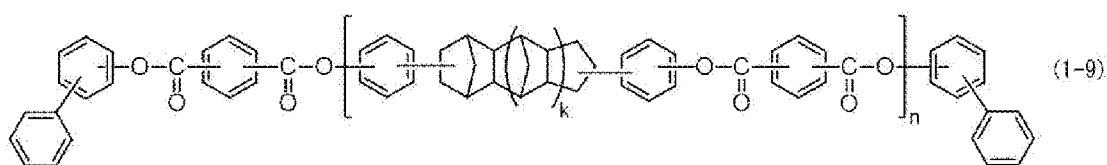
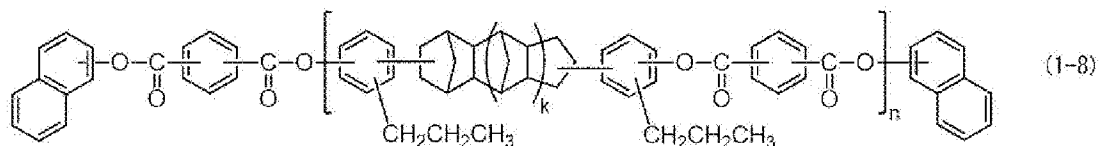
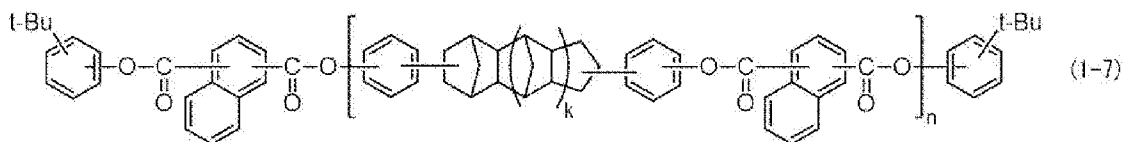
[0030]

[化2]



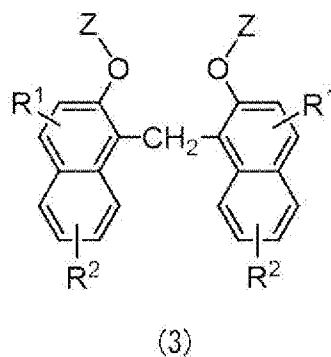
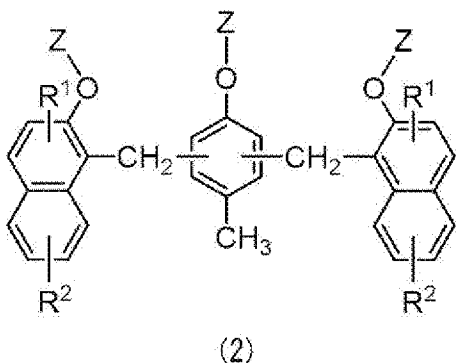
[0031]

[化3]



[0032] 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。

[0033] [化4]



[0034] 構造式(2)中、 R^1 及び R^2 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(z1)、又は水素原子(z2)であり、Zのうち少なくとも

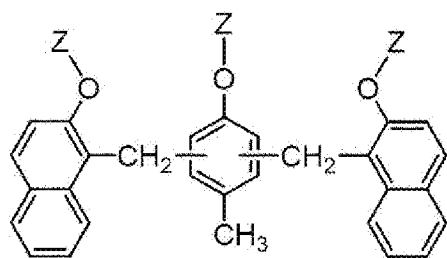
も 1 個はエステル形成構造部位 (z 1) である。

[0035] 構造式 (3) 中、 R^1 及び R^2 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。

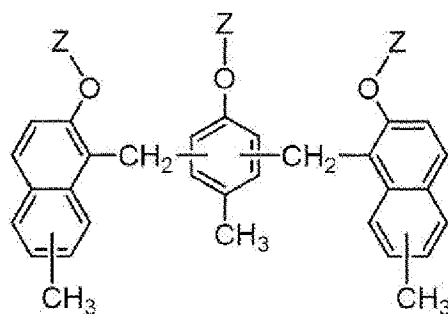
[0036] 構造式 (2) で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物 (2-1) ~ (2-6) が挙げられる。

[0037]

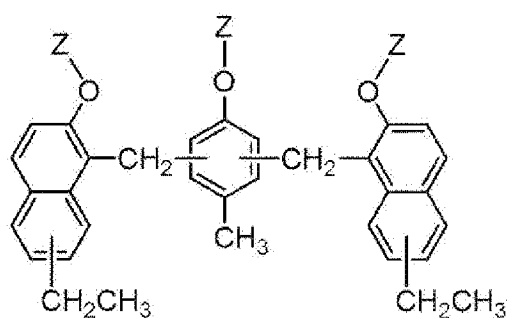
[化5]



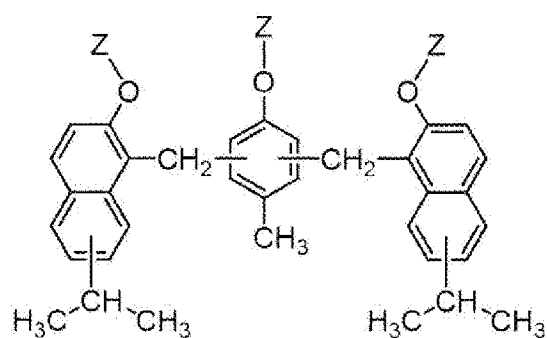
(2-1)



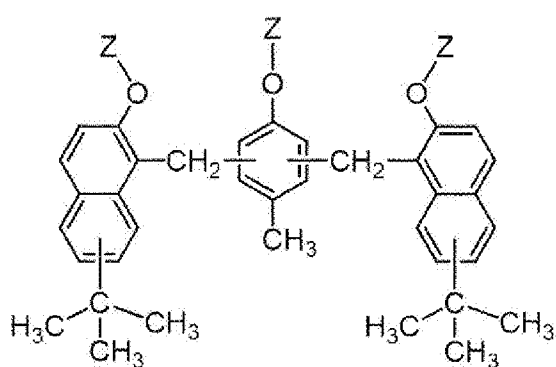
(2-2)



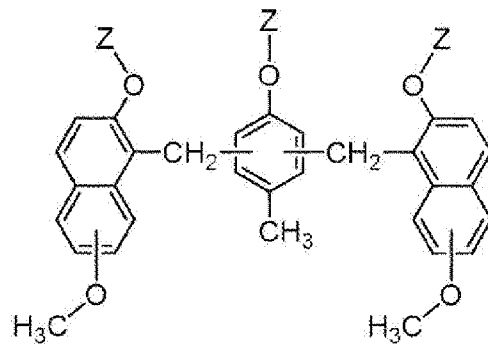
(2-3)



(2-4)



(2-5)

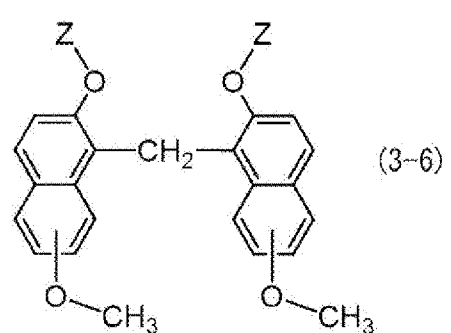
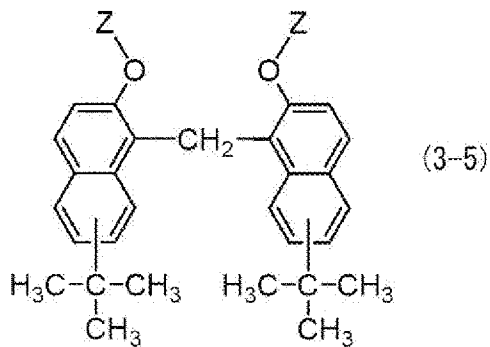
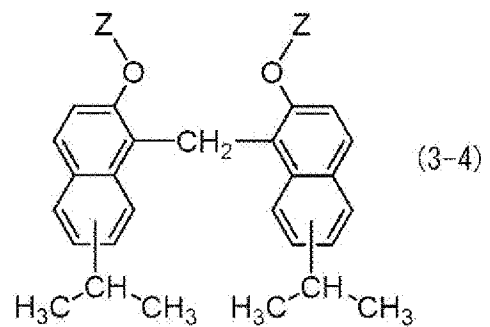
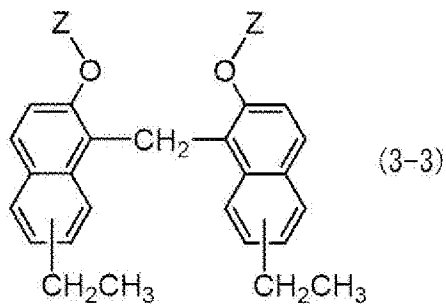
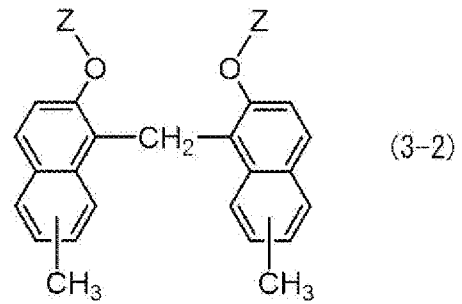
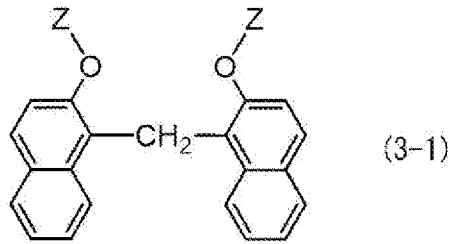


(2-6)

[0038] 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。

[0039]

[化6]



[0040] 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、ジシクロペンタ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。

[0041] 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用いてもよい。

[0042] 活性エステル化合物のエステル当量は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性、電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、 $150\text{ g/eq} \sim 400\text{ g/eq}$ が好ましく、 $170\text{ g/eq} \sim 300\text{ g/eq}$ がより好ましく、 $200\text{ g/eq} \sim 250\text{ g/eq}$ がさらに好ましい。

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。

[0043] エポキシ樹脂と活性エステル化合物との当量比（エステル基／エポキシ基）は、硬化物の誘電正接を低く抑える観点からは、0.9以上が好ましく、0.95以上がより好ましく、0.97以上がさらに好ましい。

エポキシ樹脂と活性エステル化合物との当量比（エステル基／エポキシ基）は、活性エステル化合物の未反応分を少なく抑える観点からは、1.1以下が好ましく、1.05以下がより好ましく、1.03以下がさらに好ましい。

[0044] 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、ポリメルカプタン硬化剤、ポリアミノアミド硬化剤、イソシアネート硬化剤、ブロックイソシアネート硬化剤等が挙げられる。

[0045] 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 α -ナフトール、 β -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、ベンズアルデヒド、サリチル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用いてもよい。

[0046] 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、 $70\text{ g/eq} \sim 1000\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $80\text{ g/eq} \sim 500\text{ g/eq}$ であることがより好ましい。

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。

[0047] 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、 $40^\circ\text{C} \sim 180^\circ\text{C}$ 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、 $50^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ であることが好ましく、 $50^\circ\text{C} \sim 130^\circ\text{C}$ であることがより好ましい。

硬化剤の融点又は軟化点は、エポキシ樹脂の融点又は軟化点と同様にして測定される値とする。

[0048] エポキシ樹脂とすべての硬化剤（活性エステル化合物及びその他の硬化剤）との当量比、すなわちエポキシ樹脂中の官能基数に対する硬化剤中の官能基数の比（硬化剤中の官能基数／エポキシ樹脂中の官能基数）は、特に制限されない。それぞれの未反応分を少なく抑える観点からは、0.5～2.0の範囲に設定されることが好ましく、0.6～1.3の範囲に設定されることがより好ましい。成形性と耐リフロー性の観点からは、0.8～1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

[0049] 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、80質量%以上であることが好ましく、85質量%以上であることがより好ましく、90質量%以上であることがさらに好ましい。

[0050] 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、80質量%以上であることが好ましく、85質量%以上であることがより好ましく、90質量%以上であることがさらに好ましい。

[0051] （硬化促進剤）

本開示の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。

[0052] 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-エチル-4-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-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、 π 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*-ヘキシルアンモニウム、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

ー１，４ーベンゾキノン、フェニルー１，４ー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、 π 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ーブロモフェノール、３ーブロモフェノール、２ーブロモフェノール、４ークロロフェノール、３ークロロフェノール、２ークロロフェノール、４ーヨウ化フェノール、３ーヨウ化フェノール、２ーヨウ化フェノール、４ーブロモー２ーメチルフェノール、４ーブロモー３ーメチルフェノール、４ーブロモー２，６ージメチルフェノール、４ーブロモー３，５ージメチルフェノール、４ーブロモー２，６ージー t e r t ーブチルフェノール、４ークロロー１ーナフトール、１ーブロモー２ーナフトール、６ーブロモー２ーナフトール、４ーブロモー４'ー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、テトラー p ー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；テトラアルキルホスホニウムと芳香族カルボン酸無水物の部分加水分解物との塩などが挙げられる。

[0053] 本開示の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。

[0054] （無機充填材）

本開示の封止用樹脂組成物は、無機充填材を含む。本開示の封止用樹脂組成物は、少なくとも、表面処理された無機充填材を含む。本開示の封止用樹脂組成物は、表面処理されていない無機充填材を含んでもよい。

[0055] 表面処理された無機充填材は、無機充填材を表面処理剤で表面処理することにより得られる。無機充填材の表面処理は、例えば、表面処理剤と溶媒（水、アルコール等）とを含有する処理液を調製し、攪拌下、無機充填材と処理液とを混合し、さらに攪拌を続けることで行われる。表面処理後は、処理液の溶媒を除去する目的で乾燥処理を行うことが好ましい。

[0056] 表面処理剤としては、例えば、ケイ素系表面処理剤、チタネート系表面処理剤、アルミネート系表面処理剤、アルキル化剤が挙げられる。

ケイ素系表面処理剤としては、例えば、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のカップリング剤、アルキルジシラザン等が挙げられる。

チタネート系表面処理剤としては、例えば、アルコキシチタネートの有機変性体、チタンアセテート等のキレートが挙げられる。

アルミネート系表面処理剤としては、例えば、アルコシアルミネートの有機変性体、アルミアセテート等のキレートが挙げられる。

アルキル化剤としては、例えば、トリメチルシリルジアゾメタン等が挙げられる。

中でも、無機充填材の単位量当たりの表面水酸基量の低減や加水分解基の除去性の観点から、シランカップリング剤、ジシラザン、トリメチルシリルジアゾメタンが好ましい。

[0057] 表面処理される無機充填材としては、例えば、後述する表面処理されていない無機充填材が挙げられる。当該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。

[0058] 表面処理された無機充填材は、無機充填材の表面の一部又は全部に、表面処理剤又は表面処理剤の反応物が、物理的引力又は化学結合により付着していることが好ましい。

[0059] 表面処理された無機充填材は1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。表面処理された無機充填材としては、市販品を用いてもよ

い。

[0060] 表面処理された無機充填材の表面水酸基量は、特に制限されるものではないが、硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、 $300\text{個}/\text{nm}^2$ 以下であることが好ましく、 $100\text{個}/\text{nm}^2$ 以下であることがより好ましく、 $50\text{個}/\text{nm}^2$ 以下であることがさらに好ましく、 $45\text{個}/\text{nm}^2$ 以下であること特に好ましい。無機充填材の表面水酸基量は、少ないほど好ましい。

[0061] 表面処理された無機充填材の単位量当たりの表面水酸基量は、以下の方法により測定される。表面処理されていない無機充填材の単位量当たりの表面水酸基量も、以下の方法で測定される。

無機充填材を 1.5g 秤取り、 0.1mol/L の塩酸で pH を約3になるよう調整する。これを蒸留水で希釈し全量を 150g にする。これに 0.1mol/L の水酸化ナトリウムを添加していき $\text{pH}9$ となるまでの量を求める。これを式1に代入し表面水酸基量を算出する。

表面水酸基量 ($\text{個}/\text{nm}^2$) = (0.1mol/L の水酸化ナトリウム量 $\times 6 \times 10^{23}$) $\div$ (無機充填材量 $\times$ 比表面積) $\cdots$ (式1)

[0062] 無機充填材は、表面処理されていない無機充填材を含んでもよい。この場合、表面処理されていない無機充填材の化学物質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。表面処理されていない無機充填材としては、熔融シリカ、結晶シリカ、ガラス、アルミナ、炭酸カルシウム、ケイ酸ジルコニウム、ケイ酸カルシウム、窒化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア、タルク、クレイ、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。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。

[0063] 表面処理されていない無機充填材は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。

[0064] 本開示の封止用樹脂組成物においては、表面処理された無機充填材がすべての無機充填材の全体積の1体積%以上を占めることが好ましく、5体積%以上を占めることがより好ましく、10体積%以上を占めることがさらに好ましい。

[0065] 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 $0.2\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.5\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であることがより好ましい。平均粒径が $0.2\mu\text{m}$ 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 $100\mu\text{m}$ 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。

[0066] 本開示の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%～80体積%であることがより好ましく、40体積%～70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。

[0067] [各種添加剤]

本開示の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。本開示の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。

[0068] (カップリング剤)

本開示の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、本開示の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、ビニルシラン等のシラン系化合物、チタン系化合物、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。

[0069] 本開示の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～5 質量部であることが好ましく、0.1 質量部～2.5 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 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。

[0070] (イオン交換体)

本開示の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。

[0071]
$$\text{Mg}_{(1-x)} \text{Al}_x (\text{OH})_2 (\text{CO}_3)_{x/2} \cdot m \text{H}_2\text{O} \cdots \cdots (\text{A})$$

($0 < x \leq 0.5$ 、 m は正の数)

[0072] 本開示の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十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～30 質量部であることが好ましく、1 質量部～10 質量部であることがより好ましい。

[0073] (離型剤)

本開示の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。

[0074] 本開示の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～10 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、離型性が十分に得られる傾向にある。10 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。

[0075] (難燃剤)

本開示の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。

[0076] 本開示の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十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～30 質量部であることが好ましく、2 質量部～20 質量部であることがより好ましい。

[0077] (着色剤)

本開示の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用いてもよい。

[0078] (封止用樹脂組成物の調製方法)

本開示の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、押出機等によって熔融混練し、冷却し、粉砕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、粉砕する方法を挙げることができる。

[0079] 本開示の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。

[0080] <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、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本開示の封止用樹脂組成物の硬化物と、を備える。

[0081] 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。

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、 bumps 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 Inline 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 bumps 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、 bumps 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。

[0082] <電子部品装置の製造方法>

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。

[0083] 例えばウエハレベルパッケージ (Wafer level package, WLP) など、比較的大きな面積を封止用樹脂組成物で封止することがある。封止用樹脂組成物で封止する面積が大きくなるほど、封止用樹脂組成物の流動距離が長くなり、その結果、外観不良が顕著になる傾向がある。本開示の封止用樹脂組成物は、外観不良の発生を抑制できることから、WLP に好適である。WLP

は、F O W L P (Fan Out Wafer Level Package) でもよく、F I W L P (Fan In Wafer Level Package, W L C S P (Wafer level Chip Size Package) とも呼ばれる。) でもよい。

[0084] 本開示の封止用樹脂組成物を用いてウエハレベルパッケージングを行う場合、複数個の素子をウエハ上に配置する工程と、前記複数個の素子を本開示の封止用樹脂組成物で一括して封止する工程と、封止された素子ごとに個片化する工程と、を含む。

[0085] 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。

[0086] W L P に用いられるウエハの素材は、半導体材料の結晶やガラスであり、シリコンの単結晶が一般的である。ウエハの大きさは、特に制限されず、直径6インチ～18インチが好ましく、直径8インチ～12インチがより好ましい。

[0087] 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。

[0088] トランスファ成形は一般的に、コンプレッション成形に比べて封止用樹脂組成物の流動距離が長いので、無機充填材の凝集に起因する外観不良が顕著になる傾向がある。本開示の封止用樹脂組成物は、外観不良の発生を抑制できることから、トランスファ成形に好適である。

実施例

[0089] 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。

[0090] <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。この封止用樹脂組成物は、常温常圧下に

において固体であった。

- [0091] ・エポキシ樹脂 1 : ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、エポキシ当量 274 g / e q (日本化薬株式会社、品名「NC-3000」)
- ・エポキシ樹脂 2 : トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、エポキシ当量 167 g / e q (三菱ケミカル株式会社、品名「1032H60」)
- ・エポキシ樹脂 3 : ビフェニル型エポキシ樹脂、エポキシ当量 192 g / e q (三菱ケミカル株式会社、品名「YX-4000」)
- [0092] ・活性エステル化合物 1 : DIC 株式会社、品名「EXB-8」
- ・フェノール硬化剤 1 : フェノールアラルキル樹脂、水酸基当量 205 g / e q (明和化成株式会社、品名「MEH7851シリーズ」)
- ・フェノール硬化剤 2 : トリフェニルメタン型フェノール樹脂、水酸基当量 101 g / e q (明和化成株式会社、品名「MEH7500シリーズ」)
- [0093] ・硬化促進剤 1 : トリフェニルホスフィン / 1, 4-ベンゾキノン付加物
- ・硬化促進剤 2 : 2-エチル-4-メチルイミダゾール
- [0094] ・充填材 1 : 以下の処理により、表面処理された無機充填材を製造した。
- 平均粒径 8 μ m の球状シリカフィラー 150 質量部と γ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン 1.6 質量部とをフラスコに入れ、テフロン製 (「テフロン」は登録商標) の攪拌羽を取り付けたスリーワンモーターでフィラーが飛散しないよう攪拌しながらオイルバスを使用して 150℃ に昇温した。次いで、150℃ で 3 時間保持し、表面処理フィラーを調製した。
- [0095] ・充填材 2 : 以下の処理により、表面処理された無機充填材を製造した。
- 平均粒径 0.6 μ m の球状シリカフィラー 150 質量部と γ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン 3.33 質量部とをフラスコに入れ、充填材 1 の表面処理方法と同様にして、表面処理フィラーを調製した。
- [0096] ・充填材 3 : 充填材 1 の製造に用いた平均粒径 8 μ m の球状シリカフィラー (すなわち、表面未処理の無機充填材)
- ・充填材 4 : 充填材 2 の製造に用いた平均粒径 0.6 μ m の球状シリカフィ

ラー（すなわち、表面未処理の無機充填材）

・充填材 5：表面未処理の平均粒径 18.0 μm の球状シリカフィラー（すなわち、表面未処理の無機充填材）

無機充填材を複数種併用する場合、表 1 内に記載した無機充填材の表面水酸基量は、複数種の無機充填材の混合物を試料にして測定した表面水酸基量である。

[0097] ・カップリング剤 1：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」）

[0098] <封止用樹脂組成物の性能評価>

（スパイラルフロー）

EMMI-1-66 に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、封止用樹脂組成物を金型温度 180℃、成形圧力 6.9 MPa、硬化時間 90 秒の条件で成形し、流動距離（cm）を求めた。

[0099] （比誘電率及び誘電正接）

封止用樹脂組成物を真空ハンドプレス機に仕込み、金型温度 175℃、成形圧力 6.9 MPa、硬化時間 600 秒の条件で成形し、後硬化を 180℃で 6 時間行い、板状の硬化物（縦 12.5 mm、横 25 mm、厚さ 0.2 mm）を得た。この板状の硬化物を試験片として、誘電率測定装置（アジレント・テクノロジー社、品名「ネットワークアナライザ N5227A」）を用いて、温度 25 $\pm$ 3℃下、約 60 GHz での比誘電率と誘電正接を測定した。

[0100] （吸水率）

製造直後の上記板状の硬化物を、121℃、2.1 気圧のプレッシャークーラー試験装置に投入し、24 時間後に取り出し、投入直前の質量からの増

加率（％）を求めた。

[0101] （外観不良：フローマーク）

直径 12 インチのシリコンウエハ上に厚さ 200 μm の樹脂硬化物が積層した積層体を、トランスファ成形にて成形するための金型を用意した。この金型、直径 300 mm のシリコンウエハ、及び封止用樹脂組成物を用いて、金型温度 175 $^{\circ}\text{C}$ 、成形圧力 7 MPa、硬化時間 300 秒の条件で、シリコンウエハ上に封止用樹脂組成物の硬化物が積層した積層体を成形した。

上記の積層体の表面を目視で観察し、フローマークの有無及び程度を下記のとおり分類した。

A：表面全体にフローマークが認められない。

B：表面の一部にフローマークがわずかに認められるが、製品の歩留まりを低下させるおそれはない。

C：表面の一部にフローマークが認められ、製品の歩留まりを低下させるおそれがある。

D：表面全体にフローマークが認められ、製品の歩留まりを低下させる。

[0102]

[表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	比較例 1	比較例 2
エポキシ樹脂													
エポキシ樹脂1	100	—	—	—	—	—	—	—	100	100	100	—	—
エポキシ樹脂2	—	100	—	100	100	100	100	100	—	—	—	100	100
エポキシ樹脂3	—	—	100	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
活性化エステル化合物1	76.3	124	109	124	113	124	124	—	76.3	76.3	76.3	124	—
硬化剤													
フェノール硬化剤1	—	—	—	—	10.1	—	—	56.3	—	—	—	—	56.3
フェノール硬化剤2	—	—	—	—	—	—	—	10	—	—	—	—	10
硬化促進剤1	3.8	3.3	4.4	—	3.3	3.3	3.3	2.0	3.8	3.8	3.8	3.8	2.0
硬化促進剤2	—	—	—	1.8	—	—	—	—	—	—	—	—	—
充填材1:表面処理品	893	1106	1043	1099	1102	—	948	845	—	553	—	—	—
充填材2:表面処理品	223	276	261	275	275	237	237	211	223	138	298	—	—
充填材3:未処理品	—	—	—	—	—	948	—	—	—	—	—	845	845
充填材4:未処理品	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	211	211
充填材5:未処理品	—	—	—	—	—	—	—	—	893	—	1190	—	—
カップリング剤	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8	8
離型剤	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
着色剤	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
無機充填材の表面水酸基量 (個/nm ²)	27.5	27.5	27.5	27.5	27.5	33.0	27.5	27.5	30.0	27.5	30.0	54.9	54.9
スバイフロー (cm)	152.4	139.7	165.1	127.0	144.8	142.2	144.8	152.4	160.0	>300	140.0	130.0	152.4
比誘電率	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3.3	3.5	3.4	3.4
誘電正接	0.005	0.005	0.005	0.006	0.005	0.005	0.007	0.011	0.005	0.011	0.005	0.008	0.014
吸水率 (%)	0.24	0.25	0.26	0.25	0.25	0.25	0.26	3.00	0.28	0.40	0.22	0.26	3.00
外観不良:フローマーク	A	B	A	B	A	A	B	A	A	A	B	D	C

[0103] 本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及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程度に、本明細書中に参照により取り込まれる。

2019年3月20日に出願された日本国出願番号第2019-052976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。

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂と硬化剤と無機充填材とを含有し、
前記無機充填材が表面処理された無機充填材を含む、封止用樹脂組成物。
- [請求項2] 前記表面処理された無機充填材が、ケイ素系表面処理剤、チタネート系表面処理剤、アルミネート系表面処理剤及びアルキル化剤の少なくともいずれかで表面処理された無機充填材を少なくとも1種含む、請求項1に記載の封止用樹脂組成物。
- [請求項3] 前記硬化剤が活性エステル化合物を含む、請求項1又は請求項2に記載の封止用樹脂組成物。
- [請求項4] ウエハレベルパッケージに用いるための、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。
- [請求項5] トランスファ成形に用いるための、請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の封止用樹脂組成物。
- [請求項6] 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5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7] 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5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。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/009452

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08G59/42(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08K9/00(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H01L21/56(2006.01)i, C08K3/013(2018.01)i

FI: C08G59/42, C08K9/00, C08K3/013, C08K5/10, C08L63/00C, C09K3/10L, H01L23/30R, H01L21/56R, C09K3/10Q

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C08G59/42, H01L23/29, H01L23/31, C08K5/10, C08K9/00, C09K3/10, C08L63/00, H01L21/56, C08K3/013

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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 Y	JP 2016-27133 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) 18.02.2016 (2016-02-18), claims, paragraph [0090], examples	1-7 3
X Y	JP 2018-145409 A (AJINOMOTO CO., INC.) 20.09.2018 (2018-09-20), claims, examples	1-4, 6, 7 3
X Y	JP 2017-48400 A (AJINOMOTO CO., INC.) 09.03.2017 (2017-03-09), claims, examples	1-4, 6, 7 3
X Y	JP 2011-132507 A (AJINOMOTO CO., INC.) 07.07.2011 (2011-07-07), claims, examples	1-4, 6, 7 3



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“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)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“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

“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

“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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12.05.2020

Date of mailing of the international search report
26.05.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/009452

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 60-124620 A (TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC.) 03.07.1985 (1985-07-03), claims, page 4, upper left column, examples	1, 2, 4-7 3
X Y	JP 60-76529 A (TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC.) 01.05.1985 (1985-05-01), claims, page 4, upper left column, examples	1, 2, 4-7 3
X Y	JP 60-76528 A (TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC.) 01.05.1985 (1985-05-01), claims, page 4, lower right column to page 5, upper left column, examples	1, 2, 4-7 3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/009452

JP 2016-27133 A	18.02.2016	US 2015/0376447 A1 claims, paragraph [0119], examples CN 105273367 A KR 10-2016-0002401 A TW 201600556 A
JP 2018-145409 A	20.09.2018	(Family: none)
JP 2017-48400 A	09.03.2017	(Family: none)
JP 2011-132507 A	07.07.2011	US 2011/0120761 A1 claims, paragraph [0065], examples KR 10-2011-0058691 A TW 201124465 A
JP 60-124620 A	03.07.1985	US 4560716 A claims, examples
JP 60-76529 A	01.05.1985	US 4560716 A claims, examples
JP 60-76528 A	01.05.1985	(Family: none)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/42(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08K 5/10(2006.01)i; C08K 9/00(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; H01L 21/56(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i FI: C08G59/42; C08K9/00; C08K3/013; C08K5/10; C08L63/00 C; C09K3/10 L; H01L23/30 R; H01L21/56 R; C09K3/10 Q																													
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）） C08G59/42; H01L23/29; H01L23/31; C08K5/10; C08K9/00; C09K3/10; C08L63/00; H01L21/56; C08K3/013 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table> 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）			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2020年	日本国実用新案登録公報	1996-2020年	日本国登録実用新案公報	1994-2020年																			
日本国実用新案公報	1922-1996年																												
日本国公開実用新案公報	1971-2020年																												
日本国実用新案登録公報	1996-2020年																												
日本国登録実用新案公報	1994-2020年																												
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2016-27133 A（新日鉄住金化学株式会社）18.02.2016（2016-02-18） 特許請求の範囲，[0090]，実施例</td> <td>1-7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>3</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2018-145409 A（味の素株式会社）20.09.2018（2018-09-20） 特許請求の範囲，実施例</td> <td>1-4, 6, 7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>3</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2017-48400 A（味の素株式会社）09.03.2017（2017-03-09） 特許請求の範囲，実施例</td> <td>1-4, 6, 7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>3</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2011-132507 A（味の素株式会社）07.07.2011（2011-07-07） 特許請求の範囲，実施例</td> <td>1-4, 6, 7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>3</td> </tr> </tbody> </table>			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	JP 2016-27133 A（新日鉄住金化学株式会社）18.02.2016（2016-02-18） 特許請求の範囲，[0090]，実施例	1-7	Y		3	X	JP 2018-145409 A（味の素株式会社）20.09.2018（2018-09-20） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7	Y		3	X	JP 2017-48400 A（味の素株式会社）09.03.2017（2017-03-09） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7	Y		3	X	JP 2011-132507 A（味の素株式会社）07.07.2011（2011-07-07） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7	Y		3
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	JP 2016-27133 A（新日鉄住金化学株式会社）18.02.2016（2016-02-18） 特許請求の範囲，[0090]，実施例	1-7																											
Y		3																											
X	JP 2018-145409 A（味の素株式会社）20.09.2018（2018-09-20） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7																											
Y		3																											
X	JP 2017-48400 A（味の素株式会社）09.03.2017（2017-03-09） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7																											
Y		3																											
X	JP 2011-132507 A（味の素株式会社）07.07.2011（2011-07-07） 特許請求の範囲，実施例	1-4, 6, 7																											
Y		3																											
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ 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 12.05.2020		国際調査報告の発送日 26.05.2020																											
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） 久保 道弘 4J 4514 電話番号 03-3581-1101 内線 3457																											

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	JP 60-124620 A (株式会社豊田中央研究所) 03.07.1985 (1985 - 07 - 03) 特許請求の範囲, 第 4 頁左上欄, 実施例	1, 2, 4-7
Y		3
X	JP 60-76529 A (株式会社豊田中央研究所) 01.05.1985 (1985 - 05 - 01) 特許請求の範囲, 第 4 頁左上欄, 実施例	1, 2, 4-7
Y		3
X	JP 60-76528 A (株式会社豊田中央研究所) 01.05.1985 (1985 - 05 - 01) 特許請求の範囲, 第 4 頁右下欄 - 第 5 頁左上欄, 実施例	1, 2, 4-7
Y		3

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/JP2020/009452

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2016-27133	A	18.02.2016	US 2015/0376447 A1 CLAIMS, [0119], EXAMPLES CN 105273367 A KR 10-2016-0002401 A TW 201600556 A	
JP	2018-145409	A	20.09.2018	(ファミリーなし)	
JP	2017-48400	A	09.03.2017	(ファミリーなし)	
JP	2011-132507	A	07.07.2011	US 2011/0120761 A1 CLAIMS, [0065], EXAMPLES KR 10-2011-0058691 A TW 201124465 A	
JP	60-124620	A	03.07.1985	US 4560716 A CLAIMS, EXAMPLES	
JP	60-76529	A	01.05.1985	US 4560716 A CLAIMS, EXAMPLES	
JP	60-76528	A	01.05.1985	(ファミリーなし)	