

(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6月25日(25.06.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/130098 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 59/62 (2006.01) *C09K 3/10* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
H01L 23/31 (2006.01) *C08K 3/36* (2006.01)
C08K 5/5415 (2006.01)

NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/049924

(22) 国際出願日: 2019年12月19日(19.12.2019)

(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 2018-239254 2018年12月21日(21.12.2018) 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).

(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))

(72) 発明者: 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). 石橋 健太(ISHIBASHI, Kenta); 〒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 拓也(KODAMA, Takuya); 〒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). 堀 慧地(HORI, Keichi); 〒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,

(54) Title: SEALING COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: 封止組成物及び半導体装置

(57) Abstract: This sealing composition contains an epoxy resin, a curing agent, an inorganic filler including silica particles having a specific surface area of at least 100 m²/g, and a silane compound having a structure in which a C6 or higher chain hydrocarbon group is bonded to a silicon atom.

(57) 要約: 封止組成物は、エポキシ樹脂と、硬化剤と、比表面積が100 m²/g以上のシリカ粒子を含む無機充填材と、炭素数6以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物と、を含有する。

WO 2020/130098 A1

明 細 書

発明の名称：封止組成物及び半導体装置

技術分野

[0001] 本開示は、封止組成物及び半導体装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、小型化及び高集積化に伴い、半導体パッケージ内部の発熱が懸念されている。発熱により、半導体パッケージを有する電気部品又は電子部品の性能低下が生じる恐れがあるため、半導体パッケージに使用される部材には、高い熱伝導性が求められている。そのため、半導体パッケージの封止材を高熱伝導化することが求められている。

例えば、無機充填材を高充填させることで、封止材の高熱伝導化が可能になる。

[0003] 無機充填材を高充填させた封止材の例として、(A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、並びに (D) 球状アルミナ及び球状シリカを含有する無機充填材を必須成分としてなる半導体封止用エポキシ樹脂組成物であって、前記球状アルミナが、(d 1) 平均粒径 $40\ \mu\text{m}$ 以上 $70\ \mu\text{m}$ 以下である第 1 の球状アルミナ、及び (d 2) 平均粒径 $10\ \mu\text{m}$ 以上 $15\ \mu\text{m}$ 以下である第 2 の球状アルミナを含み、前記球状シリカが、(d 3) 平均粒径 $4\ \mu\text{m}$ 以上 $8\ \mu\text{m}$ 以下である第 1 の球状シリカ、(d 4) 平均粒径 $0.05\ \mu\text{m}$ 以上 $1.0\ \mu\text{m}$ 以下である第 2 の球状シリカを含むものであり、(d 3) + (d 4) の合計量が全無機充填材に対して 17% 以上 23% 以下であり、(d 3) / (d 4) の比率が (d 3) / (d 4) = $1/8$ 以上 $5/4$ 以下であり、無機充填剤量が全樹脂組成物中 85 ~ 95 質量%であることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物が知られている（例えば、特許文献 1 参照）

[0004] 特許文献 1：特開 2006-273920 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、特許文献 1 に記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物では、高熱伝導フィラーであるアルミナを高充填させることで、熱伝導性の高い硬化物が得られるものの、封止材の流動性が低下することがある。そのため、流動性の高い高熱伝導封止材の開発は難題である。

[0006] 本発明の一実施形態によれば、熱伝導性の高い硬化物を得ることと流動性の向上とを両立できる封止組成物及び封止組成物を用いた半導体装置が提供される。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、以下の実施形態を包含する。

< 1 >

エポキシ樹脂と、
硬化剤と、
比表面積が $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ粒子を含む無機充填材と、
炭素数 6 以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物と、
を含有する封止組成物。

< 2 >

封止組成物を、硬化温度 175°C 及び硬化時間 90 秒の条件で加熱硬化したときに得られる硬化物のショア D で示される熱時硬度が 70 以上である< 1 >に記載の封止組成物。

< 3 >

前記無機充填材の含有率は、封止組成物全体に対して 78 体積%以上である< 1 >又は< 2 >に記載の封止組成物。

< 4 >

前記硬化剤は、多官能フェノール樹脂硬化剤を含有する< 1 >~< 3 >のいずれか 1 つに記載の封止組成物。

< 5 >

前記硬化剤は、トリフェニルメタン型フェノール樹脂を含有する< 1 >~

<4>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<6>

前記鎖状炭化水素基が、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びアルコキシ基からなる群より選択される少なくとも1つの官能基を有する、<1>~<5>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<7>

前記鎖状炭化水素基が、(メタ)アクリロイル基を有する、<1>~<6>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<8>

半導体素子と、前記半導体素子を封止してなる<1>~<7>のいずれか1つに記載の封止組成物の硬化物と、を含む半導体装置。

発明の効果

[0008] 本発明の一実施形態によれば、熱伝導性の高い硬化物を得ることと流動性の向上とを両立できる封止組成物及び封止組成物を用いた半導体装置が提供される。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本開示の封止組成物及び半導体装置を実施するための形態について詳細に説明する。但し、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。以下の実施形態において、その構成要素（例えば要素ステップ等も含む）は、特に明示した場合を除き、必須ではない。数値及びその範囲についても同様であり、本発明を制限するものではない。

[0010] 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。

本開示において「(メタ) アクリロイル基」とは、アクリロイル基及びメタクリロイル基の少なくとも一方を意味し、「(メタ) アクリル」はアクリル及びメタクリルの少なくとも一方を意味し、「(メタ) アクリレート」はアクリレート及びメタクリレートの少なくとも一方を意味する。

[0011] <封止組成物>

本開示の封止組成物は、エポキシ樹脂と、硬化剤と、比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ粒子を含む無機充填材と、炭素数6以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物と、を含有する。

以下、比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ粒子を「特定シリカ粒子」、炭素数6以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物を「特定シラン化合物」と称する場合がある。

[0012] 本開示の封止組成物は、上記特定シラン化合物を含有するため、熱伝導性の高い硬化物を得ることと流動性の向上とが両立できる。

一般的に、無機充填材を高充填させることで、熱伝導性の高い硬化物が得られる。しかし、無機充填材の充填量を上げていくと、流動性が下がりにやくなることに加え、無機充填材の充填量をさらに上げても硬化物の熱伝導性が上昇しにくくなり、熱伝導性が飽和状態となることがある。これに対して、本開示の封止組成物では、上記特定シラン化合物を含有することにより、特定シラン化合物を含有しない場合に比べて、流動性が高く、無機充填材の充填量を上げることで硬化物の熱伝導性を高くすることができる。その理由

は定かではないが、特定シラン化合物を含有することにより、封止組成物内における無機充填材の分散性が向上することで、封止組成物の流動性が向上すると共に、無機充填材による熱伝導性向上の機能が発揮されやすくなると考えられる。以上のことから、本開示の封止組成物は熱伝導性の高い硬化物を得ることと流動性の向上とが両立できると推測される。

[0013] 以下、封止組成物を構成する各成分について説明する。本開示の封止組成物は、エポキシ樹脂と、硬化剤と、無機充填材とを含有し、必要に応じてその他の成分を含有してもよい。

[0014] −エポキシ樹脂−

本開示の封止組成物は、エポキシ樹脂を含有する。エポキシ樹脂の種類は特に限定されず、公知のエポキシ樹脂を使用することができる。

エポキシ樹脂の具体例としては、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等）及びナフトール化合物（ α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等）からなる群より選択される少なくとも1種と、アルデヒド化合物（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）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（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）；ビスフェノール（ビスフェノールA、ビスフェノールAD、ビスフェノールF、ビスフェノールS等）及びビフェノール（アルキル置換又は非置換のビフェノール等）からなる群より選択される少なくとも1種のジグリシジルエーテル；フェノール・アラルキル樹脂のエポキシ化物；フェノール化合物とジシクロペンタジエン及びテルペン化合物からなる群より選択される少なくとも1種との付加物又は重付加物のエポキシ化物；多塩基酸（フタル酸、ダイマー酸等）とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；ポリアミン（ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等）とエピクロルヒドリンとの反応により得られるグリシジリア

ミン型エポキシ樹脂；オレフィン結合を過酸（過酢酸等）で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂；脂環族エポキシ樹脂；などが挙げられる。エポキシ樹脂は、1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

[0015] 集積回路（Integrated Circuit、IC）等の素子上のアルミニウム配線又は銅配線の腐食防止の観点から、エポキシ樹脂の純度は高い方が好ましく、加水分解性塩素量は少ない方が好ましい。封止組成物の耐湿性の向上の観点からは、加水分解性塩素量は質量基準で500ppm以下であることが好ましい。

[0016] ここで、加水分解性塩素量は、試料のエポキシ樹脂1gをジオキサン30mLに溶解し、1N-KOHメタノール溶液5mLを添加して30分間リフラックスした後、電位差滴定により求めた値である。

[0017] エポキシ樹脂における融点又は軟化点は、封止組成物の成形性の観点から、50℃以上であることが好ましく、封止組成物の成形性と混練性とを両立させる観点から、50℃～150℃であることが好ましく、60℃～130℃であることがより好ましく、70℃～120℃であることがさらに好ましい。

ここで、エポキシ樹脂の融点は示差走査熱量測定（DSC）で測定される値とし、エポキシ樹脂の軟化点はJIS K 7234：1986に準じた方法（環球法）で測定される値とする。

[0018] エポキシ樹脂のエポキシ基当量は特に限定されるものではなく、300g/eq未満であることが好ましく、成形性の観点から、120g/eq～270g/eqであることがより好ましく、150g/eq～240/eqであることがさらに好ましい。

上記「エポキシ基当量」は、測定対象となるエポキシ樹脂を秤量してメチルエチルケトン等の溶剤に溶解させ、酢酸と臭化テトラエチルアンモニウム酢酸溶液を加えた後、過塩素酸酢酸標準液によって電位差滴定することにより測定される。この滴定には、指示薬を用いてもよい。

[0019] エポキシ樹脂は、分子内に、エポキシ基を少なくとも2以上有する。エポ

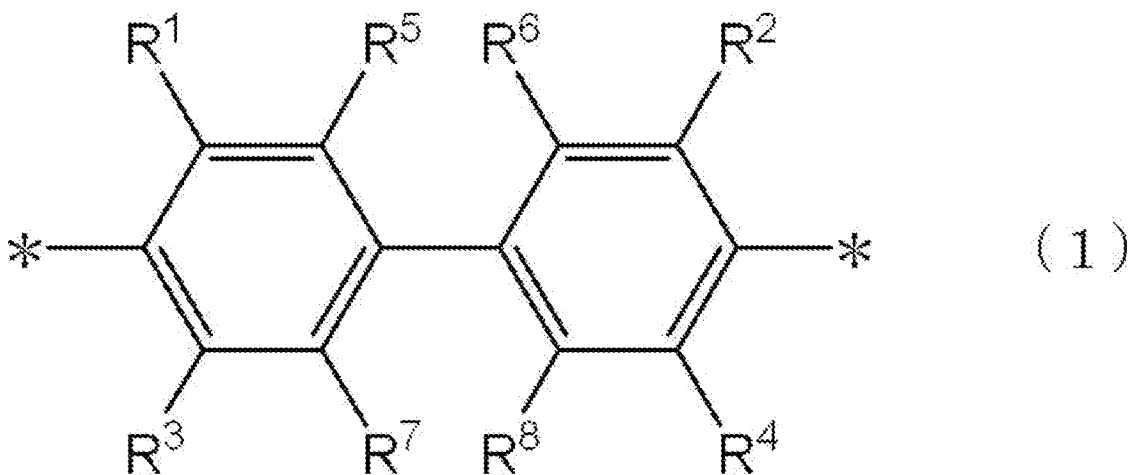
キシ樹脂が1分子中に有するエポキシ基の数は、特に限定されるものではなく、2～8が挙げられ、2～6が好ましく、2～3がより好ましく、2が特に好ましい。

なお、上記エポキシ基は、グリシジル基、グリシジロキシ基、グリシジロキシカルボニル基、エポキシシクロアルキル基（エポキシシクロペンチル基、エポキシシクロヘキシル基、エポキシシクロオクチル基等）からなる群より選択される少なくとも一種の一部として、第1のエポキシ樹脂の分子中に含まれていてもよい。

[0020] エポキシ樹脂は、分子内に、2以上のエポキシ基に加え、下記一般式（1）で表される2価の連結基を有していることが好ましい。

なお、下記一般式（1）中、*は結合部を示し、 $R^1 \sim R^8$ は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～12のアルキル基、又は炭素数4～18の芳香族基を示す。

[0021] [化1]



[0022] 前記一般式（1）中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～3のアルキル基が好ましく、水素原子又はメチル基がより好ましく、メチル基がさらに好ましい。

また、前記一般式（1）中、 $R^5 \sim R^8$ は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～3のアルキル基が好ましく、水素原子又はメチル基がより好まし

く、水素原子がさらに好ましい。

- [0023] 封止組成物に占めるエポキシ樹脂の含有率は、2.5質量%～6質量%であることが好ましく、2.8質量%～5.5質量%であることがより好ましく、3.0質量%～5.0質量%であることがさらに好ましい。

無機充填材を除く封止組成物に占めるエポキシ樹脂の含有率は、40質量%～70質量%であることが好ましく、45質量%～64質量%であることがより好ましく、48質量%～55質量%であることがさらに好ましい。

[0024] ー硬化剤ー

本開示の封止組成物は、硬化剤を含有する。硬化剤の種類は特に限定されず、公知の硬化剤を使用することができる。

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。硬化剤は、流動性を維持しつつ耐リフロー性に優れる封止組成物を得る観点から、フェノール硬化剤、アミン硬化剤、及び酸無水物硬化剤が好ましく、フェノール硬化剤がより好ましい。硬化剤は1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

- [0025] フェノール硬化剤としては、1分子中に2個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂、多価フェノール化合物等が挙げられる。具体的には、フェノール硬化剤としては、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、から合成されるアラルキル型フェノール樹脂（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）；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の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樹脂及び多価フェノール化合物は、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。

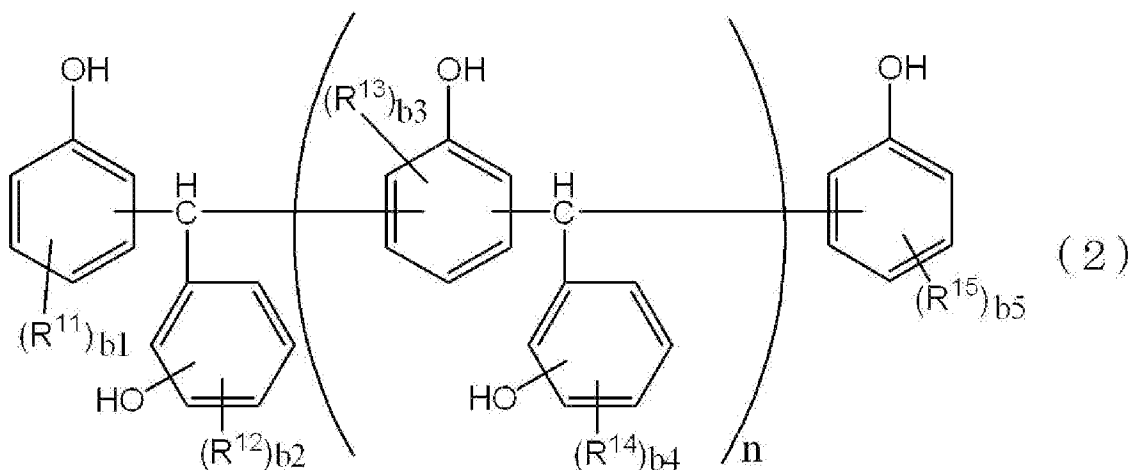
[0026] フェノール硬化剤は、これらの中でも、多官能フェノール樹脂硬化剤が好ましく、その中でもノボラック型フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、及びトリフェニルメタン型フェノール樹脂が好ましく、トリフェニルメタン型フェノール樹脂がより好ましい。

ここで、「多官能フェノール樹脂硬化剤」は1分子中に官能基（すなわち水酸基）を3以上有するフェノール樹脂である硬化剤である。

[0027] トリフェニルメタン型フェノール樹脂としては、下記一般式（2）で表されるフェノール樹脂が挙げられる。

[0028]

[化2]



[0029] 上記一般式(2)中、 $R^{11} \sim R^{15}$ は、それぞれ独立に、炭素数1～18の1価の有機基を示し、 $b1 \sim b2$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を示し、 $b3$ は0～3の整数を示し、 $b4 \sim b5$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を示し、 n は0～10を示す。

[0030] 一般式(2)中の $R^{11} \sim R^{15}$ で示される炭素数1～18の1価の有機基としては、置換又は非置換のアルキル基、置換又は非置換のアルコキシ基、置換又は非置換のアリール基、置換又は非置換のアラルキル基等が挙げられる。

一般式(2)中の $b1 \sim b5$ は、0～1の整数であることが好ましく、0であることがより好ましい。

一般式(2)中の n は、1～7であることが好ましく、2～5であることがより好ましい。

[0031] 硬化剤の官能基当量は特に制限されず、成形性の観点から、 $70 \text{ g/eq} \sim 500 \text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $70 \text{ g/eq} \sim 300 \text{ g/eq}$ であることがより好ましく、 $80 \text{ g/eq} \sim 250 \text{ g/eq}$ であることがさらに好ましい。なお、官能基当量は、JIS K 0070:1992に準拠して測定された値をいう。

[0032] 硬化剤が固体である場合、その軟化点又は融点は、特に制限されない。硬化剤の軟化点又は融点は、成形性と耐リフロー性の観点からは、 $40^\circ\text{C} \sim 1$

80℃であることが好ましく、封止組成物の製造時における取扱い性の観点からは、軟化点又は融点は、50℃～130℃であることがより好ましく、55℃～100℃であることがさらに好ましい。

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。

[0033] エポキシ樹脂と硬化剤の配合比は、それぞれの未反応分を少なく抑える観点から、硬化剤の官能基（例えば、フェノール樹脂の場合にはフェノール性水酸基）の当量がエポキシ樹脂のエポキシ基1当量に対して0.5当量～1.5当量になるように、硬化剤が配合されることが好ましく、特に、0.7当量～1.2当量になるように硬化剤が配合されることが好ましい。

[0034] ー無機充填材ー

本開示の封止組成物は、無機充填材として、特定シリカ粒子（すなわち、比表面積が100m²/g以上のシリカ粒子）を少なくとも含み、必要に応じて特定シリカ粒子以外の充填材（以下「他の充填材」ともいう）を含んでもよい。

封止組成物が特定シリカ粒子を含むことにより、例えば、トランスファーマールド法により半導体素子の封止を行った場合におけるバリの発生が抑制される。

封止組成物は、無機充填材として、特定シリカ粒子と他の充填材とを含むことが好ましい。

[0035] 特定シリカ粒子の比表面積は、100m²/g以上であり、上記バリ抑制の観点から、150m²/g～300m²/gであることが好ましく、170m²/g～270m²/gであることがより好ましく、190m²/g～230m²/gであることがさらに好ましい。

無機充填材の比表面積（すなわち、BET比表面積）は、JIS Z 8830：2013に準じて窒素吸着能から測定することができる。評価装置としては、QUANTACHROME社：AUTOSORB-1（商品名）を用いることができる。BET比表面積の測定を行う際には、試料表面及び

構造中に吸着している水分がガス吸着能に影響を及ぼすと考えられることから、まず、加熱による水分除去の前処理を行うことが好ましい。

前処理では、0.05 gの測定試料を投入した測定用セルを、真空ポンプで10 Pa以下に減圧した後、110℃で加熱し、3時間以上保持した後、減圧した状態を保ったまま常温（25℃）まで自然冷却する。この前処理を行った後、評価温度を77 Kとし、評価圧力範囲を相対圧（飽和蒸気圧に対する平衡圧力）にて1未満として測定する。

[0036] 特定シリカ粒子の含有率は、上記バリ抑制及び成形性の観点から、封止組成物に含まれる無機充填材全体に対し、0.15質量%～1.0質量%が好ましく、0.3質量%～0.8質量%がより好ましく、0.4質量%～0.7質量%がさらに好ましい。

[0037] 他の充填材は、1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

他の充填材を2種類以上併用する場合としては、成分、平均粒子径、形状等が異なる無機充填材を2種類以上用いる場合が挙げられる。

他の充填材の形状は特に制限されず、粉状、球状、繊維状等が挙げられる。封止組成物の成形時の流動性及び金型摩耗性の点からは、他の充填材の形状は球状であることが好ましい。

[0038] 他の充填材は、高熱伝導性の観点からアルミナを含むことが好ましい。他の充填材の全てがアルミナであってもよく、アルミナとアルミナ以外の他の充填材とが併用されていてもよい。

アルミナ以外の他の充填材としては、比表面積が100 m²/g未満のシリカ（球状シリカ、結晶シリカ等）、ジルコン、酸化マグネシウム、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸カリウム、炭化珪素、窒化珪素、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニアなどが挙げられる。さらに、難燃効果のある無機充填材としては水酸化アルミニウム、硼酸亜鉛等が挙げられる。

[0039] 無機充填材の含有率（例えば、無機充填材が特定シリカ粒子及び他の充填材を含む場合は、特定シリカ粒子及び他の充填材を含む無機充填材全体の含

有率)は、吸湿性、線膨張係数の低減、強度向上及びはんだ耐熱性の観点から、封止組成物の全体に対して60体積%以上であることが好ましく、70体積%以上であることがより好ましく、75体積%以上であることがさらに好ましい。

また、無機充填材の含有率は、高熱伝導性の観点から、封止組成物の全体に対して78体積%以上であることが好ましく、80体積%以上であることがより好ましい。無機充填材の含有率は、封止組成物の成形性の観点から、封止組成物の全体に対して95体積%以下であることが好ましく、90体積%以下であることがより好ましく、85体積%以下であることがさらに好ましい。無機充填材の含有率は、高熱伝導性と封止組成物の成形性とを両立する観点から、78体積%~90体積%が好ましく、78体積%~85体積%がより好ましく、80体積%~85体積%がさらに好ましい。

[0040] 無機充填材の平均粒子径(例えば、無機充填材が特定シリカ粒子及び他の充填材を含む場合は、特定シリカ粒子及び他の充填材を含む無機充填材全体の平均粒子径)は、4 μ m~100 μ mであることが好ましく、7 μ m~70 μ mであることがより好ましく、7 μ m~40 μ mであることがさらに好ましい。

封止組成物の硬化物の熱伝導率は、無機充填材の平均粒子径が大きくなる程、高くなる傾向にある。

無機充填材の平均粒子径は、以下の方法により測定することができる。

[0041] 溶媒(純水)に、測定対象の無機充填材を1質量%~5質量%の範囲内で界面活性剤1質量%~8質量%とともに添加し、110Wの超音波洗浄機で30秒~5分間振動し、無機充填材を分散する。分散液の約3mL程度を測定用セルに注入して25℃で測定する。測定装置は、レーザー回折式粒度分布計(株式会社堀場製作所、LA920)を用い、体積基準の粒度分布を測定する。平均粒子径は、体積基準の粒度分布において小径側からの累積が50%となるときの粒子径(D50%)として求められる。なお、屈折率はアルミナの屈折率を用いる。無機充填材がアルミナとその他の無機充填材の混

合物である場合においては、屈折率はアルミナの屈折率を用いるものとする。

[0042] 無機充填材の比表面積（例えば、無機充填材が特定シリカ粒子及び他の充填材を含む場合は、特定シリカ粒子及び他の充填材を含む無機充填材全体の比表面積）は、流動性及び成形性の観点から、 $0.7 \text{ m}^2/\text{g} \sim 4.0 \text{ m}^2/\text{g}$ であることが好ましく、 $0.9 \text{ m}^2/\text{g} \sim 3.0 \text{ m}^2/\text{g}$ であることがより好ましく、 $1.0 \text{ m}^2/\text{g} \sim 2.5 \text{ m}^2/\text{g}$ であることがさらに好ましい。

封止組成物の流動性は、無機充填材の比表面積が小さくなる程、高くなる傾向にある。

[0043] ー特定シラン化合物ー

本開示の封止組成物は、特定シラン化合物（すなわち、炭素数6以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物）を含有する。

特定シラン化合物は、炭素数6以上の鎖状炭化水素基（以下、炭素数6以上の鎖状炭化水素基を、単に鎖状炭化水素基ともいう）がケイ素原子に結合した構造を有する。鎖状炭化水素基は分岐していてもよく、置換基を有していてもよい。なお、本開示において、鎖状炭化水素基の炭素数とは、分岐又は置換基の炭素を含まない炭素数を意味する。鎖状炭化水素基は、不飽和結合を含んでいても含んでいなくてもよく、不飽和結合を含まないことが好ましい。

特定シラン化合物は、封止組成物において、無機充填材のカップリング剤として機能すると考えられる。

[0044] 特定シラン化合物における、ケイ素原子に結合する鎖状炭化水素基の数は、1～4であればよく、1～3であることが好ましく、1又は2であることがより好ましく、1であることがさらに好ましい。

[0045] 特定シラン化合物中におけるケイ素原子に結合する鎖状炭化水素基の数が1～3である場合、ケイ素原子に結合する、鎖状炭化水素基以外の原子又は原子団は特に制限されず、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～5のアル

キル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基等であってもよい。なかでも、特定シラン化合物中におけるケイ素原子には、鎖状炭化水素基以外に1又は複数のアルコキシが結合していることが好ましく、1個の鎖状炭化水素基と、3個のアルコキシ基とがケイ素原子に結合していることがより好ましい。

[0046] 特定シラン化合物の鎖状炭化水素基の炭素数は、6以上であり、粘度を抑える観点から、7以上であることが好ましく、8以上であることがより好ましい。特定シラン化合物の鎖状炭化水素基の炭素数の上限に特に制限はなく、樹脂への分散性、硬化物の物性バランス等の観点から、12以下であることが好ましく、11以下であることがより好ましく、10以下であることがさらに好ましい。

[0047] 鎖状炭化水素基が置換基を有する場合、置換基は特に限定されない。置換基は、鎖状炭化水素基の末端に存在していてもよく、鎖状炭化水素基の側鎖に存在していてもよい。

[0048] 鎖状炭化水素基は、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びアルコキシ基からなる群より選択される少なくとも1つの官能基(以下、「特定官能基」ともいう)を有することが好ましく、(メタ)アクリロイル基及びエポキシ基からなる群より選択される少なくとも1つの官能基を有することがより好ましく、(メタ)アクリロイル基を有することがさらに好ましい。特定官能基は、鎖状炭化水素基の末端に存在していてもよく、鎖状炭化水素基の側鎖に存在していてもよい。粘度を抑える観点からは、特定官能基は鎖状炭化水素基の末端に存在していることが好ましい。

[0049] 鎖状炭化水素基が(メタ)アクリロイル基を有する場合、(メタ)アクリロイル基は鎖状炭化水素基に直接結合していてもよく、他の原子又は原子団を介して結合していてもよい。例えば、鎖状炭化水素基は(メタ)アクリロイルオキシ基を有していてもよい。なかでも、鎖状炭化水素基はメタクリロイルオキシ基を有することが好ましい。

[0050] 鎖状炭化水素基がエポキシ基を有する場合、エポキシ基は鎖状炭化水素基

に直接結合していてもよく、他の原子又は原子団を介して結合していてもよい。例えば、鎖状炭化水素基はグリシジルオキシ基、脂環式エポキシ基等を有していてもよい。なかでも、鎖状炭化水素基はグリシジルオキシ基を有することが好ましい。

[0051] 鎖状炭化水素基がアルコキシ基を有する場合、アルコキシ基は鎖状炭化水素基に直接結合していてもよく、他の原子又は原子団を介して結合していてもよく、鎖状炭化水素基に直接結合していることが好ましい。アルコキシ基は特に限定されず、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基等であってよい。なかでも、入手容易性の観点からは、鎖状炭化水素基はメトキシ基を有することが好ましい。

[0052] 特定シラン化合物における、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びアルコキシ基からなる群より選択される少なくとも1つの官能基の当量(分子量/官能基数)は特に制限されない。封止組成物の低粘度化の観点から、 $200\text{ g/eq} \sim 420\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $210\text{ g/eq} \sim 405\text{ g/eq}$ であることがより好ましく、 $230\text{ g/eq} \sim 390\text{ g/eq}$ であることがさらに好ましい。

[0053] 特定シラン化合物としては、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘプチルトリメトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、ヘプチルトリエトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、6-グリシドキシヘキシルトリメトキシシラン、7-グリシドキシヘプチルトリメトキシシラン、8-グリシドキシオクチルトリメトキシシラン、6-(メタ)アクリロキシヘキシルトリメトキシシラン、7-(メタ)アクリロキシヘプチルトリメトキシシラン、8-(メタ)アクリロキシオクチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン等が挙げられる。なかでも、封止組成物の低粘度化の観点から、特定シラン化合物は、8-グリシドキシオクチルトリメトキシシラン、及び8-メタクリロキシオクチルトリメトキシシランが好ましい。特定シラン化合物は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。

[0054] 特定シラン化合物は合成してもよく、市販されているものを用いてもよい。市販されている特定シラン化合物としては、信越化学工業株式会社製KBM-3063（ヘキシルトリメトキシシラン）、KBE-3063（ヘキシルトリエトキシシラン）、KBE-3083（オクチルトリエトキシシラン）、KBM-4803（8-グリシドキシオクチルトリメトキシシラン）、KBM-5803（8-メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン）、KBM-3103C（デシルトリメトキシシラン）等が挙げられる。

[0055] 封止組成物中の特定シラン化合物の含有量は特に制限されない。特定シラン化合物の含有量は無機充填材100質量部に対して0.01質量部以上であってもよく、0.02質量部以上であってもよい。また、特定シラン化合物の含有量は無機充填材100質量部に対して5質量部以下であることが好ましく、2.5質量部以下であることがより好ましい。特定シラン化合物の含有量が無機充填材100質量部に対して0.01質量部以上であると、流動性の高い組成物が得られる傾向にある。特定シラン化合物の含有量が無機充填材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。特定シラン化合物の含有量は、流動性とパッケージの成形性とを両立する観点から、無機充填材100質量部に対して0.05質量部～2.0質量部が好ましく、0.1質量部～1.5質量部がより好ましく、0.2質量部～1.0質量部がさらに好ましい。

また、特定シラン化合物の含有率は、封止組成物の全体に対して3質量%以下であることが好ましく、2質量%以下がより好ましく、1質量%以下がさらに好ましく、その効果を発揮させる観点からは、0.1質量%以上であることが好ましく、0.15質量%以上であることがより好ましく、0.2質量%以上がさらに好ましい。

[0056] ーその他の成分ー

（他のカップリング剤）

封止組成物は、前記特定シラン化合物に加えて、他のカップリング剤をさらに含有してもよい。他のカップリング剤としては、エポキシ樹脂を用いた

封止組成物に一般に使用されているものであれば特に制限はない。他の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（特定シラン化合物を除く）、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。他のカップリング剤は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。

[0057] 封止組成物が特定シラン化合物以外の他のカップリング剤を含有する場合、特定シラン化合物及び他のカップリング剤の合計含有量は、無機充填材100質量部に対して0.01質量部以上であってもよく、0.02質量部以上であってもよい。また、特定シラン化合物及び他のカップリング剤の合計含有量は無機充填材100質量部に対して5質量部以下であることが好ましく、2.5質量部以下であることがより好ましい。特定シラン化合物及び他のカップリング剤の合計含有量が無機充填材100質量部に対して0.01質量部以上であると、流動性の高い組成物が得られる傾向にある。特定シラン化合物及び他のカップリング剤の合計含有量が無機充填材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。特定シラン化合物の及び他のカップリング剤の合計含有量は、流動性とパッケージの成形性とを両立する観点から、無機充填材100質量部に対して0.05質量部～2.0質量部が好ましく、0.1質量部～1.5質量部がより好ましく、0.2質量部～1.0質量部がさらに好ましい。

また、特定シラン化合物及び他のカップリング剤の合計含有率は、封止組成物の全体に対して3質量%以下であることが好ましく、2質量%以下がより好ましく、1質量%以下がさらに好ましく、その効果を発揮させる観点からは、0.1質量%以上であることが好ましく、0.15質量%以上であることがより好ましく、0.2質量%以上がさらに好ましい。

[0058] 封止組成物が特定シラン化合物以外の他のカップリング剤を含有する場合、特定シラン化合物の作用を良好に発揮する観点から、特定シラン化合物及

び他のカップリング剤の合計量に対する他のカップリング剤の含有率は90質量%以下であることが好ましく、70質量%以下であることがより好ましく、50質量%以下であることがさらに好ましく、40質量%以下であることが特に好ましく、20質量%以下が極めて好ましく、10質量%以下が最も好ましい。

[0059] (硬化促進剤)

封止組成物は、硬化促進剤をさらに含有してもよい。硬化促進剤の種類は特に制限されず、公知の硬化促進剤を使用することができる。

硬化促進剤としては、具体的には、1, 8-ジアザービシクロ[5. 4. 0]ウンデセン-7, 1, 5-ジアザービシクロ[4. 3. 0]ノネン、5, 6-ジブチルアミノ-1, 8-ジアザービシクロ[5. 4. 0]ウンデセン-7等のシクロアミジン化合物；シクロアミジン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、フェノール樹脂などの 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；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3級アミン化合物；3級アミン化合物の誘導体；2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物；イミダゾール化合物の誘導体；トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス（4-メチルフェニル）ホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有機ホスフィン化合物；有機ホスフィン化合物に無水マレイン酸、上記キノン化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の 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リン化合物；テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィンテトラフェ

ニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート、N-メチルモルホリントトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン塩；テトラフェニルボロン塩の誘導体；トリフェニルホスホニウム-トリフェニルボラン、N-メチルモルホリントトラフェニルホスホニウム-テトラフェニルボレート等のホスフィン化合物とテトラフェニルボロン塩との付加物；などが挙げられる。硬化促進剤は、1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

[0060] 硬化促進剤は、これらの中でも、リン系硬化促進剤が好ましく、その中でも有機ホスフィン化合物、有機ホスフィン化合物の付加物、及びホスフィン化合物とテトラフェニルボロン塩との付加物がより好ましく、有機ホスフィン化合物及び有機ホスフィン化合物の付加物がさらに好ましく、有機ホスフィン化合物にキノン化合物が付加してなる化合物が特に好ましい。

なお、「リン系硬化促進剤」はリン原子を有する硬化促進剤である。

[0061] 硬化促進剤の含有率は、エポキシ樹脂と硬化剤の合計量に対して、0.1質量%～8質量%であることが好ましい。

[0062] (イオントラップ剤)

封止組成物は、イオントラップ剤をさらに含有してもよい。

本開示において使用可能なイオントラップ剤は、半導体装置の製造用途に用いられる封止材において、一般的に使用されているイオントラップ剤であれば特に制限されるものではない。イオントラップ剤としては、下記一般式(3)又は下記一般式(4)で表される化合物等が挙げられる。

[0063] $Mg_{1-a}Al_a(OH)_2(CO_3)_{a/2} \cdot uH_2O$ (3)

(一般式(3)中、 a は $0 < a \leq 0.5$ であり、 u は正数である。)

$BiO_b(OH)_c(NO_3)_d$ (4)

(一般式(4)中、 b は $0.9 \leq b \leq 1.1$ 、 c は $0.6 \leq c \leq 0.8$ 、 d は $0.2 \leq d \leq 0.4$ である。)

[0064] イオントラップ剤は、市販品として入手可能である。一般式(3)で表される化合物としては、例えば、「DHT-4A」(協和化学工業株式会社、

商品名)が市販品として入手可能である。また、一般式(4)で表される化合物としては、例えば、「I X E 5 0 0」(東亜合成株式会社、商品名)が市販品として入手可能である。

[0065] また、上記以外のイオントラップ剤として、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、アンチモン等から選ばれる元素の含水酸化物などが挙げられる。

イオントラップ剤は、1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

[0066] 封止組成物がイオントラップ剤を含有する場合、イオントラップ剤の含有量は、十分な耐湿信頼性を実現する観点からは、エポキシ樹脂100質量部に対して1質量部以上であることが好ましい。他の成分の効果を十分に発揮する観点からは、イオントラップ剤の含有量は、エポキシ樹脂100質量部に対して15質量部以下であることが好ましい。

[0067] また、イオントラップ剤の平均粒子径は $0.1\mu\text{m}$ ~ $3.0\mu\text{m}$ であることが好ましく、最大粒子径は $10\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。イオントラップ剤の平均粒子径は、無機充填材の場合と同様にして測定することができる。

[0068] (離型剤)

封止組成物は、離型剤をさらに含有してもよい。離型剤の種類は特に制限されず、公知の離型剤を使用することができる。具体的には、離型剤としては、高級脂肪酸、カルナバワックス、モンタンワックス、ポリエチレン系ワックス等が挙げられる。離型剤は、1種類を単独で使用しても、2種類以上を併用してもよい。

封止組成物が離型剤を含有する場合、離型剤の含有率は、エポキシ樹脂と硬化剤の合計量に対して、10質量%以下であることが好ましく、その効果を発揮させる観点からは、0.5質量%以上であることが好ましい。

[0069] (着色剤及び改質剤)

封止組成物は、着色剤(カーボンブラック等)を含有してもよい。また、

封止組成物は、改質剤（シリコン、シリコンゴム等）を含有してもよい。着色剤及び改質剤は、それぞれ、１種類を単独で使用しても、２種類以上を併用してもよい。

[0070] 着色剤としてカーボンブラック等の導電性粒子を用いる場合、導電性粒子は、粒子径 $10\ \mu\text{m}$ 以上の粒子の含有率が１質量％以下であることが好ましい。

封止組成物が導電性粒子を含有する場合、導電性粒子の含有率は、エポキシ樹脂と硬化剤の合計量に対して３質量％以下であることが好ましい。

[0071] （その他添加剤）

封止組成物は、必要に応じて、さらにその他添加剤を含んでもよい。

その他添加剤としては、難燃剤、陰イオン交換体、可塑剤等が挙げられる。また、封止組成物には、必要に応じて当技術分野で周知の各種添加剤を添加してもよい。

[0072] ＜封止組成物の作製方法＞

封止組成物の作製方法は特に制限されず、公知の方法により行うことができる。例えば、所定の配合量の原材料の混合物をミキサー等によって充分混合した後、熱ロール、押出機等によって混練し、冷却、粉碎等の処理を経ることによって封止組成物を作製することができる。封止組成物の状態は特に制限されず、粉末状、固体状、液体状等であってよい。

[0073] ＜封止組成物の特性＞

封止組成物を、硬化温度 $175\ ^\circ\text{C}$ 及び硬化時間 90 秒の条件で加熱硬化したときに得られる硬化物のショアDで示される熱時硬度は、 70 以上であることが好ましく、 74 以上であることがより好ましく、 76 以上であることがさらに好ましい。

上記熱時硬度が上記範囲であることにより、トランスファーモールド法により半導体素子の封止を行った場合における連続成形性が良好となる。

[0074] ＜半導体装置＞

本開示の半導体装置は、半導体素子と、前記半導体素子を封止してなる本

開示の封止組成物の硬化物と、を含む。

[0075] 封止組成物を用いて半導体素子を封止する方法は特に限定されず、公知の方法を適用することが可能である。トランスファーモールド法等が一般的であるが、コンプレッションモールド法、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。

[0076] 本開示の半導体装置は、IC (Integrated Circuit、集積回路)、LSI (Large-Scale Integration、大規模集積回路) 等として好適である。

実施例

[0077] 以下に本発明の一実施形態を以下の実施例を参照して説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。また、表中の数値は特に断りのない限り「質量部」を意味する。

[0078] <実施例 1 ～ 5 及び比較例 1 ～ 5>

下記に示す成分を表 1 及び表 2 に示す配合割合 (質量部) で予備混合 (ドライブレンド) した後、二軸ニーダーで混練し、冷却粉碎して粉末状の封止組成物を製造した。

なお、表 1 及び表 2 に示す成分の詳細は以下の通りである。

[0079] (A) エポキシ樹脂

エポキシ樹脂 A 1 : 三菱ケミカル株式会社、品名「YX4000H」、エポキシ基当量「192 g/eq」、軟化点「107℃」、ビフェニル型エポキシ樹脂、前記一般式 (1) で表される 2 価の連結基を有するエポキシ樹脂

(B) 硬化剤

硬化剤 B 1 : トリフェニルメタン型フェノール樹脂、エア・ウォーター株式会社、品名「HE910-09」、水酸基当量「104 g/eq」、軟化点「80℃」、前記一般式 (2) で表されるフェノール樹脂

(C) 硬化促進剤

硬化促進剤 C 1 : リン系硬化促進剤 (トリブチルホスフィンとベンゾキノンの付加物)

(D) カップリング剤

カップリング剤D 1 : 3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、信越化学工業株式会社、品名「KBM-503」炭素数3の炭化水素基を有するシラン化合物

カップリング剤D 2 : 8-メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン、信越化学工業株式会社、品名「KBM-5803」、炭素数8の鎖状炭化水素基を有するシラン化合物

[0080] (E) 離型剤

離型剤E 1 : モンタンワックス、クラリアント社、品名「HW-E」

(F) 着色剤

顔料F 1 : カーボンブラック、三菱ケミカル株式会社、商品名「MA600」

(G) 添加剤

添加剤G 1 : トリフェニルホスフィンオキシド

(H) 改質剤

改質剤H 1 : シリコーン、東レ・ダウコーニング株式会社、品名「BY16-876」

[0081] (I) 無機充填材

フィラ1 1 : シリカ粒子、球状、比表面積「 $190 \sim 210 \text{ m}^2/\text{g}$ 」、特定シリカ粒子

フィラ1 2 : アルミナ粒子、球状、平均粒子径「 $0.7 \mu\text{m}$ 」

フィラ1 3 : アルミナ粒子、球状、平均粒子径「 $10 \mu\text{m}$ 」

[0082] ー評価ー

実施例及び比較例で作製した封止組成物の特性を、次の特性試験により評価した。評価結果を下記表1及び表2に示す。

[0083] (熱時硬度)

上記で得られた封止組成物を用いて、トランスファ成形機により、金型温度 175°C 、成形圧力 6.9 MPa 、硬化時間90秒の条件で成形し、直径

50 mm×厚み3 mmの円板形状である試験片を作製した。成形後直ちにショアD型硬度計（高分子計器株式会社、アスカー、タイプDデュロメータ）を用いて熱時硬度を測定した。

[0084] （ゲルタイム）

硬化性は、ゲル化試験機を用いて以下のようにして測定されたゲルタイムに基づいて評価した。

上記で得られた封止組成物0.5 gを175℃に熱した熱板上に乗せ、治具を用いて20回転／分～25回転／分の回転速度で、試料を2.0 cm～2.5 cmの円状に均一に広げた。試料を熱板に乗せてから、試料の粘性がなくなり、ゲル状態となって熱板から剥がれるようになるまでの時間を計測し、これをゲルタイム（sec）として測定した。

結果を表1及び表2に示す。エポキシ100質量部に対して同じ触媒量を用いた場合に、ゲルタイムの短いものほど、硬化性に優れる。

[0085] （ディスクフロー（DF））

上記で得られた封止組成物を、2段篩（上段：2.38 mm、下段：0.5 mm）に通し、下段に残った試料を7 g秤量した。その封止組成物を180℃に熱した平滑な金型の上に置き、同様に180℃に熱した8 kgの平滑な金型を試料の上に置いて60秒放置した。その後、得られた円板状成形品の直径（mm）と短径（mm）の平均値（mm）を求め、その平均値（mm）をディスクフロー（DF）とした。

結果を表1及び表2に示す。ディスクフローの長いものほど、流動性に優れる。

[0086] （バリ）

上記で得られた封止組成物15 gをプレス熱板上の180℃の金型上に乗せ、硬化時間90秒で成形した。成形後、金型に作製された50 μm、30 μm、20 μm、10 μm、5 μm及び2 μmのスリットで一番長く封止組成物が流れた部分の長さを、ノギスを用いて測定し、この測定値をバリ長さとした。

その結果、実施例 1 ～ 5 のいずれにおいても、バリ長さが 10 mm 以下であり、バリの発生が抑制されていることが分かった。

[0087] (熱伝導率)

上記で得られた封止組成物を用いて、トランスファ成形機により、金型温度 175℃～180℃、成形圧力 7 MPa、硬化時間 300 秒の条件で熱伝導率評価用の試験片を作製した。次いで、成形した試験片について、厚さ方向の熱拡散率を測定した。熱拡散率の測定はレーザーフラッシュ法（装置：LFA467 nanoflash、NETZSCH 社）にて行った。パルス光照射は、パルス幅 0.31 (ms)、印加電圧 247 V の条件で行った。測定は雰囲気温度 25℃±1℃で行った。また上記試験片の密度は電子比重計（AUX220、株式会社島津製作所）を用いて測定した。比熱は、各材料の比熱の文献値と配合比率より算出した封止組成物の理論比熱を用いた。

次いで、式 (5) を用いて比熱及び密度を熱拡散率に乗算することによって、熱伝導率の値を得た。

$$\lambda = \alpha \times C_p \times \rho \cdots \text{式 (5)}$$

(式 (5) 中、 λ は熱伝導率 ($\text{W} / (\text{m} \cdot \text{K})$)、 α は熱拡散率 (m^2 / s)、 C_p は比熱 ($\text{J} / (\text{kg} \cdot \text{K})$)、 ρ は密度 (kg / m^3) をそれぞれ示す。)

結果を表 1 及び表 2 に示す。

[0088]

[表1]

			実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
組成	エポキシ樹脂A1		100	100	100	100	100
	硬化剤B1		54.2	54.2	54.2	54.2	54.2
	硬化促進剤C1		4.15	3.3	3.3	4.1	4.4
	カップリング剤	D1	0	0	0	5	7.5
		D2	15	15	15	10	7.5
	離型剤E1		1	1	1	1	1
	顔料F1		6.5	5.5	6	6	6
	添加剤G1		10	10	10	10	10
	改質剤H1		3	3	3	3	3
	フィラー	I1	15	13	14	14	14
I2		305	265	284	285	285	
I3		2852	2478	2655	2665	2669	
合計			3365.85	2948	3145.5	3157.3	3161.6
フィラーの平均粒子径 (μm)			9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
フィラー含有率 (体積%)			83	81	82	82	82
評価	熱時硬度		79	74	76	76	76
	ゲルタイム (秒)		49.50	58	59	45	48
	ディスクフロー (mm)		102.05	108.5	104.0	93.3	91.7
	熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)		8.49	7.48	7.9	7.85	7.77

[0089]

[表2]

			比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5
組成	エポキシ樹脂A1		100	100	100	100	100
	硬化剤B1		54.2	54.2	54.2	54.2	54.2
	硬化促進剤C1		3.5	3.5	3.5	3.7	4.2
	カップリング剤	D1	15	15	15	15	15
		D2	0	0	0	0	0
	離型剤E1		1	1	1	1	1
	顔料F1		5	5	5	5	6.5
	添加剤G1		10	10	10	10	10
	改質剤H1		3	3	3	3	3
	フィラー	I1	11	12	13	14	15
I2		233	248	264	283	306	
I3		2184	2322	2474	2647	2865	
合計			2619.7	2773.7	2942.7	3135.9	3379.9
フィラーの平均粒子径 (μm)			9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
フィラー含有率 (体積%)			79	80	81	82	83
評価	熱時硬度		68	69	33	74	58
	ゲルタイム (秒)		62	72	88	79	75
	ディスクフロー (mm)		96.7	98.3	93.1	90.5	78.8
	熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)		6.93	7.02	7.50	7.54	7.7

[0090] 表1及び表2中、「フィラーの平均粒子径」は用いた無機充填材全体における体積基準の平均粒子径を意味し、「フィラー含有率」は封止組成物全体に対する用いた無機充填材全体の含有率を意味する。

表1及び表2の評価結果から明らかなように、特定シラン化合物を含有する実施例1～5の封止組成物は、特定シラン化合物を含有しない比較例1～5の封止組成物に比較して、流動性が高く、また熱伝導率の高い硬化物が得られている。また、比較例1～5の封止組成物においては、フィラー含有率の

増加に対する熱伝導率の上昇率が低く、熱伝導性が飽和状態となっているのに対し、実施例 1 ～ 3 の封止組成物においては、フィラ含有率の増加に伴って熱伝導率が高くなっていることが分かる。

[0091] 2018 年 12 月 21 日に出願された日本国特許出願 2018-239254 号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。

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

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂と、
硬化剤と、
比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ粒子を含む無機充填材と、
炭素数 6 以上の鎖状炭化水素基がケイ素原子に結合した構造を有するシラン化合物と、
を含有する封止組成物。
- [請求項2] 封止組成物を、硬化温度 175°C 及び硬化時間 90 秒の条件で加熱硬化したときに得られる硬化物のショア D で示される熱時硬度が 70 以上である請求項 1 に記載の封止組成物。
- [請求項3] 前記無機充填材の含有率は、封止組成物全体に対して 78 体積%以上である請求項 1 又は請求項 2 に記載の封止組成物。
- [請求項4] 前記硬化剤は、多官能フェノール樹脂硬化剤を含有する請求項 1 ～請求項 3 のいずれか 1 項に記載の封止組成物。
- [請求項5] 前記硬化剤は、トリフェニルメタン型フェノール樹脂を含有する請求項 1 ～請求項 4 のいずれか 1 項に記載の封止組成物。
- [請求項6] 前記鎖状炭化水素基が、(メタ)アクリロイル基、エポキシ基、及びアルコキシ基からなる群より選択される少なくとも 1 つの官能基を有する、請求項 1 ～請求項 5 のいずれか 1 項に記載の封止組成物。
- [請求項7] 前記鎖状炭化水素基が、(メタ)アクリロイル基を有する、請求項 1 ～請求項 6 のいずれか 1 項に記載の封止組成物。
- [請求項8] 半導体素子と、前記半導体素子を封止してなる請求項 1 ～請求項 7 のいずれか 1 項に記載の封止組成物の硬化物と、を含む半導体装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/049924

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G 59/62(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08K 5/5415(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08K 3/36(2006.01)i

FI: H01L23/30 R; C08G59/62; C08K3/36; C08L63/00 C; C09K3/10 L; C08K5/5415

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)

C08G59/62; H01L23/29; H01L23/31; C08K5/5415; C09K3/10; C08L63/00; C08K3/36

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 A	JP 2004-217515 A (TOKUYAMA CORPORATION) 05.08.2004 (2004-08-05) paragraphs [0010]-[0079]	1, 3, 6-8 4, 5 2
Y A	JP 2018-188667 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 29.11.2018 (2018-11-29) paragraphs [0074]-[0075]	4, 5 2
A	JP 2004-300212 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 28.10.2004 (2004-10-28) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2002-20586 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 23.01.2002 (2002-01-23) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2009-97014 A (HITACHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 07.05.2009 (2009-05-07) entire text, all drawings	1-8



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
03 March 2020 (03.03.2020)

Date of mailing of the international search report
17 March 2020 (17.03.2020)

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/JP2019/049924

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-68330 A (MATSUSHITA ELECTRIC WORKS, LTD.) 17.03.2005 (2005-03-17) entire text, all drawings	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2019/049924

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2004-217515 A	05 Aug. 2004	US 2006/0150527 A1 paragraphs [0013]- [0107] WO 2004/060802 A1 EP 1591419 A1 TW 200416199 A KR 10-2005-0091754 A CN 1756720 A	
JP 2018-188667 A	29 Nov. 2018	JP 2012-214743 A	
JP 2004-300212 A	28 Oct. 2004	US 2004/0188676 A1 entire text, all drawings KR 10-0966944 B1	
JP 2002-20586 A	07 Jan. 2002	US 2002/0022681 A1 entire text, all drawings	
JP 2009-97014 A	07 May 2009	(Family: none)	
JP 2005-68330 A	17 Mar. 2005	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/62(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08K 5/5415(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08K 3/36(2006.01)i FI: H01L23/30 R; C08G59/62; C08K3/36; C08L63/00 C; C09K3/10 L; C08K5/5415		
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）） C08G59/62; H01L23/29; H01L23/31; C08K5/5415; C09K3/10; C08L63/00; C08K3/36 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 1971-2020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 国際調査で利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	JP 2004-217515 A（株式会社トクヤマ）05.08.2004（2004-08-05） 段落[0010]-[0079]	1, 3, 6-8
Y		4, 5
A		2
Y	JP 2018-188667 A（日立化成株式会社）29.11.2018（2018-11-29） 段落[0074]-[0075]	4, 5
A		2
A	JP 2004-300212 A（住友ベークライト株式会社）28.10.2004（2004-10-28） 全文、全図	1-8
A	JP 2002-20586 A（信越化学工業株式会社）23.01.2002（2002-01-23） 全文、全図	1-8
A	JP 2009-97014 A（日立化成工業株式会社）07.05.2009（2009-05-07） 全文、全図	1-8
☒ 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 03.03.2020		国際調査報告の発送日 17.03.2020
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） 井上 和俊 5F 3455 電話番号 03-3581-1101 内線 3559

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 2005-68330 A (松下電工株式会社) 17.03.2005 (2005 - 03 - 17) 全文、全図	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/JP2019/049924

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2004-217515	A	05.08.2004	US 2006/0150527 A1 paragraphs[0013]-[0107] WO 2004/060802 A1 EP 1591419 A1 TW 200416199 A KR 10-2005-0091754 A CN 1756720 A	
JP	2018-188667	A	29.11.2018	JP 2012-214743 A	
JP	2004-300212	A	28.10.2004	US 2004/0188676 A1 全文、全図 KR 10-0966944 B1	
JP	2002-20586	A	23.01.2002	US 2002/0022681 A1 全文、全図	
JP	2009-97014	A	07.05.2009	(ファミリーなし)	
JP	2005-68330	A	17.03.2005	(ファミリーなし)	