

(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
2024年6月27日(27.06.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/134951 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 59/20 (2006.01) *H01L 23/31* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/026985

(22) 国際出願日: 2023年7月24日(24.07.2023)

(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 2022-207377 2022年12月23日(23.12.2022) JP

(71) 出願人: ナミックス株式会社 (NAMICS CORPORATION) [JP/JP]; 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 Niigata (JP).

(72) 発明者: 酒井 洋介 (SAKAI Yosuke); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 鈴木 真 (SUZUKI Makoto); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 上村 剛 (KAMIMURA Tsuyoshi); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP).

(74) 代理人: I A T 弁理士法人 (IAT WORLD PATENT LAW FIRM); 〒1640012 東京都中野区本町4丁目44番18号 ヒューリック中野ビル7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, 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))

(54) Title: EPOXY RESIN COMPOSITION, CURED PRODUCT, AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: エポキシ樹脂組成物、硬化物、及び半導体装置

(57) Abstract: Provided are: an epoxy resin composition that yields a cured product that can prevent warping of a board and peeling from a chip; a cured product using the same; and a semiconductor device. The epoxy resin composition contains an epoxy resin, a filler, and at least one selected from a curing agent and a curing catalyst. The epoxy resin contains a flexible epoxy resin, and the content of flexible epoxy resin is from 8.0 mass% to 25.0 mass% relative to the epoxy resin.

(57) 要約: 基板の反り、及びチップからの剥離の防止ができる硬化物となるエポキシ樹脂組成物、並びにそれを用いた硬化物、及び半導体装置の提供。エポキシ樹脂、フィラー、並びに硬化剤及び硬化触媒から選択される少なくともいずれかを含有し、エポキシ樹脂は、柔軟性エポキシ樹脂を含有し、柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、エポキシ樹脂に対して8.0質量%~25.0質量%であるエポキシ樹脂組成物である。

WO 2024/134951 A1

明 細 書

発明の名称：エポキシ樹脂組成物、硬化物、及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、エポキシ樹脂組成物、硬化物、及び半導体装置に関する。

背景技術

[0002] 電子機器などの半導体装置は、近年、大型化又は薄型化しており、半導体装置を構成する半導体素子（チップとも称する）を高密度に実装することの重要性が増している。このため、半導体素子のパッケージ方法が改良されてきた。従来、半導体素子は、個片化してからパッケージする方法により行われてきた。この方法では、パッケージがチップより大きくなるため、このパッケージ方法は大型の半導体装置に向かなかった。そこで、回路形成完了後のチップに切り分けられていないウェハーレベルでパッケージする技術（ウェハーレベルチップサイズパッケージ技術）が用いられるようになっている。

[0003] ウェハーレベルの実装には、通常、半導体素子と基板との間に、半導体素子の耐湿性、耐熱性、外部応力に対する信頼性の向上を目的として、封止材と呼ばれる樹脂組成物の硬化物を入れて封止する工程を有する。封止する方法の一つに、半導体素子の下部の空洞（キャビティ）に封止材を入れ、圧力をかけながら封止材を硬化させるコンプレッションモールド方式がある（例えば、特許文献1 参照）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2021-161206号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ウェハーレベルの実装においては、半導体素子と基板とを固定する工程、及び半導体素子と基板との間を樹脂組成物により封止する工程の他に、半導

体素子とはんだボールとを電氣的につなぐ層を形成する工程（所謂、再配線層形成工程）がある。一般的に、再配線層形成工程と、樹脂組成物により封止する工程との順序により、チップファースト法（基板に半導体素子載せて樹脂で封止してから、その上に配線層を形成する）と、チップラスト法（Siなどでできたウェハー状の支持体に再配線層を形成してから、半導体素子載せて封止し、最後に支持体を除去する）と呼ばれる方法に分けられる。特にチップファースト法では、樹脂組成物上に再配線層が形成されるため、再配線層形成工程の際に樹脂組成物の硬化物には、半導体素子等からの剥離などの不具合が起きないことが求められる。

[0006] 更に、ウェハーレベルの実装においては、実装された基板は、ICチップパッケージの個片化のためにダイシングされる。ダイシング工程においては、基板の反りが小さいことが要求されるため、基板の反りを防止することができる樹脂組成物が求められてきた。

[0007] 基板の反り、及びチップからの剥離の防止ができる硬化物となるエポキシ樹脂組成物、並びにそれを用いた硬化物、及び半導体装置の提供を目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 従来の樹脂組成物には、基板の反りを防止するために、エポキシ樹脂と柔軟性エポキシ樹脂とを併用したエポキシ樹脂組成物が用いられてきた。しかしながら、柔軟性エポキシ樹脂を多く含有するエポキシ樹脂組成物は、再配線層形成工程において用いられる現像液である溶剤に浸漬されると、半導体素子との剥離を起こすことがある。

[0009] 発明者らがこの現象について検討した結果、柔軟性エポキシ樹脂を多く含有するエポキシ樹脂組成物からなる硬化物は、硬化物内にマイクロボイドと呼ばれる細かいボイド泡を内包することに着目した。そして、このマイクロボイドは硬化物内に溶剤を取り込みやすく、硬化物の溶剤に対する耐性（耐溶剤性）を悪化させること、そして、硬化物の耐溶剤性の悪化が半導体素子との剥離を生じる原因であることを見出した。そこで、発明者らは、柔軟性

エポキシ樹脂の割合について検討を重ね、本発明の完成に至った。本発明において、マイクロボイドとは、断面をSEM画像（加速電圧：1 kV、倍率：5000倍）で観察したときに最大幅が0.5 μ m以下のボイドをいう。

[0010] 前記目的を達成するため、本発明の一実施態様は、エポキシ樹脂、フィラー、並びに硬化剤及び硬化触媒から選択される少なくともいずれかを含有し、エポキシ樹脂は、柔軟性エポキシ樹脂を含有し、柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、エポキシ樹脂に対して8.0質量%～25.0質量%であるエポキシ樹脂組成物である。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、基板の反り、及びチップからの剥離の防止ができる硬化物となるエポキシ樹脂組成物、並びにそれを用いた硬化物、及び半導体装置を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0012] （エポキシ樹脂組成物）

実施態様に係るエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂、フィラー、並びに硬化剤及び硬化触媒から選択される少なくともいずれかを含有し、更に必要に応じてその他の成分を含有する。

[0013] ＜エポキシ樹脂＞

エポキシ樹脂は、柔軟性エポキシ樹脂とその他のエポキシ樹脂とを含有する。

[0014] ＜＜柔軟性エポキシ樹脂＞＞

柔軟性エポキシ樹脂は、エポキシ樹脂組成物の硬化物を載せた基板の反りを防止するために含有される。実施態様において、柔軟性エポキシ樹脂とは、以下の3つの条件を満たすエポキシ樹脂を指す。

1. 数平均分子量が、800～2,500
2. エポキシ当量が、400 g/e q. ～1,200 g/e q.
3. 分子内に縮合多環炭化水素を有さない

[0015] 柔軟性エポキシ樹脂の数平均分子量は、800～2,500であり、80

0～2, 000が好ましい。なお、数平均分子量が800未満の場合、基板の反りが大きくなることもあり、2, 500超の場合、マイクロボイドの比率が高くなり、耐溶剤性が悪化し、チップからの剥離が起こることがある。数平均分子量の測定方法は、一般的な数平均分子量の測定方法を用いることができる。例えば、溶出溶媒にテトラヒドロフランを用いたゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）による標準ポリスチレン換算として測定することができる。

[0016] 柔軟性エポキシ樹脂のエポキシ当量は400g/eq.～1, 200g/eq.であり、400g/eq.～1, 000g/eq.が好ましい。なお、エポキシ当量が、400g/eq.未満であると、基板の反りが大きくなるという不具合が起こることがあり、1, 200g/eq.超であると、硬化物内のマイクロボイド比率が高くなり、再配線形成工程内での半導体素子からの剥離という不具合が起こることがある。ここで、エポキシ当量とは、JISK7236:2001に定義されているように、1当量のエポキシ基を含む樹脂の質量である。なお、「eq.」とは、「equivalent（当量）」を略記したものである。

[0017] 柔軟性エポキシ樹脂の具体例は、例えば、脂肪族エポキシ樹脂が挙げられる。脂肪族エポキシ樹脂は、例えば、ポリアルキレングリコール型エポキシ樹脂が挙げられる。ポリアルキレングリコール型エポキシ樹脂は、例えば、ポリテトラメチレングリコール型エポキシ樹脂、ポリエチレングリコール型エポキシ樹脂、ポリプロピレングリコール型エポキシ樹脂などが挙げられる。

[0018] 柔軟性エポキシ樹脂は、適宜合成しても、市販品を用いてもよい。市販品は、例えば、YX7400N（ポリテトラメチレングリコール型エポキシ樹脂、エポキシ当量440g/eq.、平均分子量880、三菱ケミカル株式会社製）、エポゴーサーPT高分子タイプ（ポリテトラメチレングリコール型エポキシ樹脂、エポキシ当量1, 072g/eq.、平均分子量2, 140、四日市合成株式会社製）、エポゴーサーPT一般グレード（ポリテトラ

メチレングリコール型エポキシ樹脂、エポキシ当量435 g/eq.、平均分子量700～800、四日市合成株式会社）、SR-8EGS（ポリテトラメチレングリコール型エポキシ樹脂、エポキシ当量262 g/eq.、平均分子量510～550、阪本薬品工業株式会社）、PG-207GS（ポリテトラメチレングリコール型エポキシ樹脂、エポキシ当量300～330 g/eq.、平均分子量600～660、日鉄ケミカル&マテリアル株式会社）などが挙げられる。

[0019] 柔軟性エポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂全体に対して、8.0質量%～25.0質量%であり、8.0質量%～16.5質量%がより好ましく、9.0質量%～16.5質量%が更に好ましい。柔軟性エポキシ樹脂の含有量の値が、この範囲に含まれると、ウェハー反りを防止しつつ、マイクロボイドの発生を抑え、耐溶剤性を向上させ、チップからの剥離を防止することができる。

[0020] <<その他のエポキシ樹脂>>

その他のエポキシ樹脂は、前述の柔軟性エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂である。その他のエポキシ樹脂は、一般的に半導体封止用として使用される各種のエポキシ樹脂であれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜用いることができるが、常温（25℃）において液体であるエポキシ樹脂が好ましい。その他のエポキシ樹脂のエポキシ当量は、50 g/eq.～10,000 g/eq.が好ましく、50 g/eq.～1,000 g/eq.がより好ましく、100 g/eq.～500 g/eq.がさらに好ましい。

[0021] その他のエポキシ樹脂は、例えば、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ビスフェノール型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、アミノフェノール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂などが挙げられる。グリシジルアミン型エポキシ樹脂は、例えば、ジグリシジルアニリン、ジグリシジルトルイジン、テトラグリシジルーm-キシリレンジアミンテトラグリシジルビス（アミノメチル）シクロヘキサンなどが挙げられる。脂環式エポキシ樹脂は、例えば、ビニル（3,4-シクロヘキセン）ジ

オキシド、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)-5,1-スピロ-(3,4-エポキシシクロヘキシル)-m-ジオキサンなどが挙げられる。ビスフェノール型エポキシ樹脂は、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂などが挙げられる。ビスフェノールA型エポキシ樹脂は、例えば、p-グリシジルオキシフェニルジメチルトリスビスフェノールAジグリシジルエーテルなどが挙げられる。ビフェニル型エポキシ樹脂は、例えば、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、3,3',5,5'-テトラメチル-4,4'-ジグリシジルオキシビフェニルなどが挙げられる。アミノフェノール型エポキシ樹脂は、例えば、トリグリシジル-p-アミノフェノールなどが挙げられる。ナフタレン型エポキシ樹脂は、例えば、1,6-ビス(2,3-エポキシプロポキシ)ナフタレンなどが挙げられる。

[0022] その他のエポキシ樹脂の1分子中に含まれるエポキシ基の数は、1つ（単官能エポキシ樹脂）でも、2つ以上（多官能エポキシ樹脂）であってもよいが、信頼性（サーマルサイクル性）の点から、2以上（多官能エポキシ樹脂）が好ましい。エポキシ基の数の上限は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できるが、5以下が好ましい。単官能エポキシ樹脂は、例えば、p-tert-ブチルフェニルグリシジルエーテルなどが挙げられる。多官能エポキシ樹脂は、例えば、1,4-フェニルジメタノールジグリシジルエーテル等のジエポキシ樹脂；トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル等のトリエポキシ樹脂などが挙げられる。上記の他に、1,3-ジグリシジル-5-メチル-5-エチルヒダントイン等のヒダントイン型エポキシ樹脂；1,3-ビス(3-グリシドキシプロピル)-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン等のシリコーン骨格を有するエポキシ樹脂；植物由来の骨格を有するエポキシ樹脂であってもよい。

[0023] その他エポキシ樹脂は、1種単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、信頼性の点から、アミノフェノール型エポキシ樹脂、

ビスフェノール型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂が好ましい。なお、その他のエポキシ樹脂として、アミノフェノール型エポキシ樹脂をその他のエポキシ樹脂より多く含有すると、エポキシ樹脂組成物のガラス転移点を上げられるため、好ましい。

[0024] その他のエポキシ樹脂は、適宜合成をしたものでも、市販品を用いてもよい。市販品は、例えば、RE410S（ビスフェノールF型液状エポキシ樹脂、エポキシ当量178g/eq、平均分子量360、日本化薬株式会社製）、EP-3950L（グリシジルアミン型液状エポキシ樹脂、エポキシ当量95g/eq、平均分子量270、株式会社ADEKA製）などが挙げられる。

[0025] エポキシ樹脂組成物におけるエポキシ樹脂（柔軟性エポキシ樹脂及びその他のエポキシ樹脂）の含有量は、エポキシ樹脂組成物全体に対して、10.0質量%～27.0質量%が好ましく、15.0質量%～21.0質量%がより好ましい。その他のエポキシ樹脂としてビスフェノール型エポキシ樹脂を用いる場合は、ビスフェノール型エポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂全量に対して、20質量%～30質量%が好ましい。また、その他のエポキシ樹脂としてグリシジルアミン型エポキシ樹脂を用いる場合は、グリシジルアミン型エポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂全量に対して、50質量%～70質量%が好ましい。

[0026] <硬化剤、硬化触媒>

実施態様に係るエポキシ樹脂組成物は、硬化剤及び硬化触媒の少なくともいずれかを含有する。硬化剤は前述のエポキシ樹脂を硬化させ、硬化触媒は前述のエポキシ樹脂の硬化を促進させるために含有される。硬化剤及び硬化触媒は、どちらか一方でも、併用してもよいが、硬化速度を速める点から、併用することが好ましい。

[0027] <<硬化剤>>

硬化剤は、エポキシ樹脂を硬化させることができれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、アミン系硬化剤、フェノー

ル系硬化剤、酸無水物系硬化剤などが挙げられる。アミン系硬化剤は、例えば、芳香族アミンなどが挙げられる。芳香族アミンは、例えば、メチレンジアニリン、*m*-フェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホンなどが挙げられる。フェノール系硬化剤は、例えば、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトール修飾フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン修飾フェノール樹脂、*p*-キシレン修飾フェノール樹脂などが挙げられる。酸無水物系硬化剤は、例えば、メチルテトラヒドロフタル酸無水物、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、アルキル化テトラヒドロフタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルハイミック無水物、ドデセニル無水コハク酸、メチルナド酸無水物などが挙げられる。これらは1種単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。

[0028] 硬化剤は、適宜合成したものでも、市販品を用いてもよい。市販品は、例えば、MEH-8005（フェノール系硬化剤、明和化成株式会社製）、HN-2200（酸無水物系硬化剤、昭和電工マテリアルズ株式会社製）などが挙げられる。

[0029] 硬化剤の含有量は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができる。エポキシ樹脂との化学量論上の当量比（硬化剤当量／エポキシ基当量）が0.01～0.50が好ましく、0.05～0.40がより好ましく、0.08～0.30が更に好ましい。硬化剤の含有量（割合）は、フィラーを除いたエポキシ樹脂組成物に対して、1質量％～30質量％が好ましく、4質量％～15質量％がより好ましい。硬化剤の含有量がこの数値範囲内であると、基板の反りを防止でき、且つ十分な接着強度の発現という利点がある。

[0030] <<硬化触媒>>

硬化触媒は、一般的に、樹脂組成物に用いられる硬化触媒であれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できるが、第三級アミン化合物（窒素原子を含有する複素環化合物は除く）、リン系硬化促進剤、窒素原子を含有す

る複素環化合物が挙げられる。これらは、1種単独で使用しても2種以上を併用してもよい。これらの中でも、信頼性（サーマルサイクル性）の点から、窒素原子を含有する複素環化合物が好ましい。窒素原子を含有する複素環化合物とは、窒素原子が複素環の構成原子となっている化合物を指す。

[0031] 窒素原子を含有する複素環化合物は、例えば、2-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、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、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジン、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2,3-ジヒドロ-1H-ピロロ[1,2-a]ベンゾイミダゾール等のイミダゾール類；ジアザビシクロウンデセン（DBU）、DBU-フェノール塩、DBU-オクチル酸塩、DBU-p-トルエンスルホン酸塩、DBU-ギ酸塩、DBU-オルソフタル酸塩、DBU-フェノールノボラック樹脂塩、DBU系テトラフェニルボレート塩、ジアザビシクロノネン（DBN）、DBN-フェノールノボラック樹脂塩、ジアザビシクロオクタン、ピラゾール、オキサゾール、チアゾール、イミダゾリン、ピラジン、モルホリン、チアジン、インドール、イソインドール、ベンゾイミダゾール、プリン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、シンノリン、プテリジンなどが挙げられる。これらは、1種単独で使用しても2種以上を併用して用いてもよい。これらの中でも、反応性の観点から、（2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジン、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾールが好ましい。

[0032] 硬化触媒は、合成したものでも、市販品を用いてもよい。市販品としては、例えば、2MZA（2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジン、四国化成工業株式会社製）、2E4MZ（2-エチル-4-メチルイミダゾール、四国化成工業株式会社2-

フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール製)、2P4MHZ(2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、四国化成工業株式会社製)などが挙げられる。

[0033] 硬化触媒の含有量は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、反応性の点から、エポキシ樹脂組成物全体に対して、0.1質量%~10質量%が好ましく、0.5質量%~5質量%がより好ましい。

[0034] <フィラー>

フィラーは、エポキシ樹脂組成物の硬化物特性(主に線膨張係数、弾性率、吸水率)を調整するために含有される。フィラーの種類は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ等のシリカ;炭酸カルシウム、クレー、アルミニウム、アルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ホウ素、珪酸カルシウム、チタン酸カリウム、窒化アルミニウム、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、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、充填量を高くできる点から、シリカフィラーが好ましい。

[0035] フィラーは、表面処理が施されたものであってもよい。表面処理剤は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、シランカップリング剤などが挙げられる。

[0036] シランカップリング剤は、特に制限がなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、エポキシ系、メタクリル系、アミノ系、ビニル系、グリシドキシ系、メルカプト系などが挙げられる。

[0037] フィラーの体積平均粒径は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、0.1 μm ~9.0 μm が好ましく、0.2 μm ~8.0 μm がより好ましい。本実施形態において、体積平均粒径は、レーザー回折法を用いて測定される体積平均粒径D50(体積基準の粒度分布の小径側からの累積50%となる粒径)をいう。

[0038] フィラーの形状は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、球状、不定形、りん片状などが挙げられる。

[0039] フィラーの含有量は、エポキシ樹脂組成物全体に対して、50質量%～95質量%が好ましく、60質量%～90質量%がより好ましく、65質量%～85質量%が更に好ましい。

[0040] エポキシ樹脂組成物に含有されるフィラーの含有量を測定するには、以下の方法により測定できる。まず、エポキシ樹脂組成物をるつばに計量する。計量した硬化物を、20℃/分間の速度で、850℃まで昇温し、この温度にて30分間保持する。冷却後、るつば内に残った残分（強熱残分）を計量する。得られたフィラーの量から、フィラーの含有量を算出する。

[0041] <その他の成分>

その他の成分としては、通常のエポキシ樹脂組成物に用いられるものであれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、染料、顔料、カーボンプラック等の着色剤；シリコンオイル；界面活性剤；酸化防止剤；三酸化アンチモン、四酸化アンチモン、五酸化アンチモン等の酸化アンチモン；ブロム化エポキシ樹脂等の従来公知の難燃剤；イオントラップ剤；レベリング剤；酸化防止剤；消泡剤；反応性希釈剤；エラストマーなどが挙げられる。これらは、1種単独でも、2種以上を併用してもよい。

[0042] その他の成分の含有量としては、本発明の効果を阻害するものでなければ、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できる。

[0043] <エポキシ樹脂組成物の物性>

<<マイクロボイド>>

本実施形態において、マイクロボイドとは、硬化物の断面を走査電子顕微鏡（SEM）にて、加速電圧：1kV、倍率：5,000倍）の条件にて観察したときの最大幅が0.5μm以下の空隙（ボイド）をいう。マイクロボイドは、溶剤を取り込む性質があるため、マイクロボイドが多い硬化物は溶剤を多く取り込む硬化物であり、耐溶剤性が悪い硬化物である。したがって、マイクロボイドの発生の程度は耐溶剤性の指標となる。このようなマイク

ロボイドが多く発生する硬化物となるエポキシ樹脂組成物を封止材として用いた際に、硬化物に溶剤が触れると、硬化物内に溶剤が取り込まれ、硬化物が封止している半導体素子（チップ）と硬化物との密着性が低下し、剥離の原因となる。

[0044] マイクロボイドの割合（マイクロボイド比率）は、次のようにして測定する。エポキシ樹脂組成物を、150℃／1時間の条件下で加熱して、硬化物を作製する。得られた硬化物を収束イオンビーム（FIB：COBRA（O r s a y P h y s i c s 製））により、50nmに等間隔スライス加工をしながら都度SEM観察（AURIGA（Carl Zeiss製）、加速電圧：1kV、倍率：5,000倍）を実施する。SEM画像においては、電子密度が異なる成分は異なる濃淡の像として表される。即ち、フィラー、樹脂成分、及びボイドは、異なる濃淡として画像上に現れる。取得された連続SEM像を3D画像処理ソフト（Dragonfly（Ver. 2022.1、Object Research System製））によって重ね合わせて3D構造の構築を行う。その後、得られた3D構造のコントラスト差からフィラー、樹脂成分、ボイドを設定した後に、画像を分割して各領域の濃淡を認識する機械学習セグメンテーション機能を用い、フィラー、樹脂成分、マイクロボイドをそれぞれ認識、及び抽出し、それぞれの成分の体積率を算出する。得られた体積率を用いて以下の式よりマイクロボイド比率を算出できる。マイクロボイドの割合（マイクロボイド比率）は、38%以下が好ましく、30%以下がより好ましい。

[0045] [数1]

$$\text{マイクロボイド比率 (\%)} = \frac{\text{マイクロボイド体積率}}{\text{樹脂成分体積率} + \text{マイクロボイド体積率}} \times 100$$

[0046] <<耐溶剤性>>

再配線層形成工程においては溶剤が用いられる。従って、硬化物は溶剤に曝される可能性が高い。そのため、硬化物は溶剤に溶けない性質である耐溶剤性を有することが望まれる。本実施形態において、耐溶剤性の評価は、硬

化物を溶剤に浸漬したときの質量の変化の程度で行う。具体的には、エポキシ樹脂組成物の硬化物を溶剤に所定時間浸漬させて、溶剤の浸漬前後の質量変化率を算出して評価する。質量変化率は、0.50%以下が好ましく、0.30%以下がより好ましい。

[0047] 耐溶剤性の評価に用いる溶剤及び浸漬時間は、例えば、60℃に加熱したプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートに30分間、常温の乳酸エチルに20分間、常温のテトラメチルアンモニウムヒドロキシド2.38%溶液に30分間、60℃に加熱したプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート：プロピレングリコールモノメチルエーテル＝3：7溶液に30分間などである。

[0048] <<用途>>

実施態様に係るエポキシ樹脂組成物は、基板の反り、及びチップからの剥離の防止ができる硬化物となることから、液状コンプレッションモールド材として好適に用いることができる。特に、柔軟性エポキシ樹脂を含有するため、細かい溝に注入できる性質である注入性が良好であるため、より細かい溝（ファインピッチ）に実装する必要がある半導体装置への実装に好適に用いることができる。例えば、基板と半導体素子（チップ）との距離が15 μ m以下である微細な間隙、バンプピッチ（バンプ中心間の距離）が、150 μ m以下である微細な箇所であっても、エポキシ樹脂組成物を注入し、半導体素子を封止することができる。そして、実施態様に係るエポキシ樹脂組成物は、これらの微細な箇所を封止した場合であっても、基板の反りとチップからの剥離とを防止できる。その結果、硬化物とチップとの間の剥離の原因である硬化物内の亀裂を防止することができ、硬化物とチップとの間のクラックの発生を防止できる。

[0049] <エポキシ樹脂組成物の製造方法>

実施態様に係るエポキシ樹脂組成物の製造方法は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、上記の成分を混合攪拌する方法が挙げられる。

[0050] なお、上記エポキシ樹脂が固形の場合には、加熱などにより液状化、及び流動化した後に混合することが好ましい。

[0051] また、各成分を同時に混合しても、一部成分を先に混合し、残りの成分を後から混合してもよい。例えば、エポキシ樹脂に対し、フィラーを均一に分散させることが困難な場合は、エポキシ樹脂と、フィラーとを先に混合し、残りの成分を後から混合してもよい。

[0052] 混合攪拌に用いられる装置は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、ロールミル、ボールミル、ビーズミル、ライカイ機、ヘンシェルミキサー、プラネタリーミキサーなどが挙げられる。

[0053] (硬化物)

実施態様に係る硬化物は、前述のエポキシ樹脂組成物を硬化させて得られるものである。硬化物の大きさ、及び形状は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できる。

[0054] 硬化物の製造方法は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができるが、例えば、加熱する方法、トランスファー成形やコンプレッション成形する方法などが挙げられる。前述のエポキシ樹脂組成物は熱硬化性であり、温度100℃～200℃の条件下では、0.1時間～3時間で硬化することが好ましく、0.25時間～2時間で硬化することが好ましい。

[0055] (半導体装置)

本実施形態に係る半導体装置は、支持体と、半導体素子と、上述のエポキシ樹脂組成物の硬化物と、を有する。エポキシ樹脂組成物の硬化物は、例えば、半導体素子と、支持体との間隙をエポキシ樹脂組成物で充填させて封止させたものが挙げられる。

[0056] <支持体>

支持体は、半導体素子を固定できるものであれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、基板などが挙げられる。

[0057] <<基板>>

基板は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、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、シリコンウェハーなどが挙げられる。基板の大きさ、形状、材質については、通常の基板として用いられるものであれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できる。

[0058] <半導体素子>

半導体素子は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、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、抵抗アレイ、コイル、スイッチ等の受動素子などが挙げられる。半導体素子の大きさ、形状、材質については、通常の半導体素子として用いられるものであれば、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できる。

[0059] エポキシ樹脂組成物の硬化物は、支持体と半導体素子との間隙に充填される。エポキシ樹脂組成物の硬化物の厚みとしては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、 $10\mu\text{m}$ 以上 $800\mu\text{m}$ 以下が挙げられる。エポキシ樹脂組成物の形状は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択できる。エポキシ樹脂組成物の硬化物は、支持体と半導体素子との間隙に配置されることで、半導体素子を封止する。

[0060] 本実施形態に係る半導体装置の製造方法は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択することができ、例えば、エポキシ樹脂組成物を充填する工程、エポキシ樹脂組成物を硬化する工程により製造することができる。

[0061] エポキシ樹脂組成物を充填する工程は、支持体と半導体素子との間の空隙にエポキシ樹脂組成物を充填する工程である。エポキシ樹脂組成物を充填する方法としては、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、ディスペンス方式、注型方式、印刷方式などが挙げられる。エポキシ樹脂組成物を充填する量は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、硬化物の厚みが $10\mu\text{m}$ 以上 $800\mu\text{m}$ 以下となるような量が挙げられる。

[0062] エポキシ樹脂組成物を硬化する工程は、支持体上と半導体素子との間のエポキシ樹脂組成物を硬化させる工程である。エポキシ樹脂組成物を硬化させる方法は、特に制限はなく、目的に応じて適宜選択でき、例えば、支持体、エポキシ樹脂組成物、及び半導体素子をトランスファー成形やコンプレッ

ヨン成形方法が挙げられる。

実施例

[0063] (実施例 1 ～ 1 4、比較例 1 ～ 3)

表 1 ～ 4 に記載の配合において、三本ロールミルを用いて混合し、各成分を均一に分散することでエポキシ樹脂組成物を得た。

[0064] [表1]

			実施例				
			1	2	3	4	5
エポキシ樹脂組成物	柔軟性 エポキシ樹脂	柔軟性エポキシ樹脂 1	3.30	3.30	4.35	2.55	3.3
		柔軟性エポキシ樹脂 2	-	-	-	-	-
	その他の エポキシ樹脂	エポキシ樹脂 1	12.09	12.09	16.33	9.02	12.09
		エポキシ樹脂 2	1.69	1.69	1.69	1.69	1.69
		エポキシ樹脂 3	3.40	3.40	4.48	2.64	3.40
	硬化剤 硬化触媒	硬化剤 1	1.05	1.05	1.40	0.81	-
		硬化剤 2	-	-	-	-	1.05
		硬化触媒	0.85	0.85	1.12	0.66	0.85
	フィラー	フィラー 1	-	64.49	-	-	-
		フィラー 2	64.49	-	57.51	69.51	64.49
		フィラー 3	12.49	12.49	12.49	12.49	12.49
	その他の成分	ブラック 4	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21
		KBM-403	0.42	0.42	0.42	0.42	0.42
合計（質量％）			100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
柔軟性エポキシ樹脂の割合（質量％）			16.11	16.11	16.20	16.04	16.11
エポキシ樹脂の割合（質量％）			20.48	20.48	26.85	15.90	20.48
評価結果	マイクロボイド	マイクロボイド体積率（％）	5.5	5.4	7.3	4.5	5.4
		樹脂成分体積率（％）	16.0	16.1	21.5	12.5	16.1
		マイクロボイド比率（％）	25.6	25.1	25.3	26.5	25.1
		判定	A	A	A	A	A
	耐溶剤性	質量増加率（％）	0.08	0.09	0.13	0.07	0.10
		判定	A	A	A	A	A
	反り	反り（μm）	5700	5500	9500	4200	6700
		判定	A	A	A	A	A
	弾性率（30℃）	GPa	13.9	13.5	12.2	15.8	14.4

[0065]

[表2]

			実施例				
			6	7	8	9	10
エポキシ樹脂組成物	柔軟性 エポキシ樹脂	柔軟性エポキシ樹脂 1	2.95	-	4.33	4.88	2.00
		柔軟性エポキシ樹脂 2	-	3.30	-	-	-
	その他の エポキシ樹脂	エポキシ樹脂 1	10.34	12.09	11.07	10.51	13.39
		エポキシ樹脂 2	1.69	1.69	1.69	1.69	1.69
		エポキシ樹脂 3	3.40	3.40	3.40	3.40	3.40
	硬化剤 硬化触媒	硬化剤 1	3.16	1.05	1.05	1.05	1.05
		硬化剤 2	-	-	-	-	-
		硬化触媒	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
	フィラー	フィラー 1	-	-	-	-	-
		フィラー 2	64.49	64.49	64.49	64.49	64.49
		フィラー 3	12.49	12.49	12.49	12.49	12.49
	その他の成分	ブラック 4	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21
KBM-403		0.42	0.42	0.42	0.42	0.42	
合計（質量％）			100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
柔軟性エポキシ樹脂の割合（質量％）			16.05	16.11	21.12	23.83	9.77
エポキシ樹脂の割合（質量％）			18.38	20.48	20.49	20.48	20.48
評価結果	マイクロボイド	マイクロボイド体積率（％）	5.0	5.4	6.5	8.0	1.8
		樹脂成分体積率（％）	16.5	16.1	15.1	13.6	19.9
		マイクロボイド比率（％）	23.3	25.1	30.1	37.0	8.3
		判定	A	A	B	B	A
	耐溶剤性	質量増加率（％）	0.07	0.15	0.36	0.43	0.04
		判定	A	A	B	B	A
	反り	反り（μm）	7800	4000	4100	2100	9700
		判定	A	A	A	A	A
	弾性率（30℃）	GPa	14.7	13.0	13.3	12.0	16.1

[0066]

[表3]

			実施例			
			11	12	13	14
エポキシ樹脂組成物	柔軟性エポキシ樹脂	柔軟性エポキシ樹脂 1	2.65	5.08	3.59	3.48
		柔軟性エポキシ樹脂 2	-	-	-	-
	その他のエポキシ樹脂	エポキシ樹脂 1	12.75	10.31	11.8	12.68
		エポキシ樹脂 2	1.69	1.69	1.69	1.69
		エポキシ樹脂 3	3.40	3.40	3.40	3.68
	硬化剤 硬化触媒	硬化剤 1	1.05	1.05	1.05	-
		硬化剤 2	-	-	-	-
		硬化触媒	0.85	0.85	0.85	0.85
	フィラー	フィラー 1	-	-	-	-
		フィラー 2	64.49	64.49	64.49	64.49
		フィラー 3	12.49	12.49	12.49	12.49
	その他の成分	ブラック 4	0.21	0.21	0.21	0.21
KBM-403		0.42	0.42	0.42	0.42	
合計（質量％）			100.00	100.00	100.00	100.00
柔軟性エポキシ樹脂の割合（質量％）			12.92	24.80	17.53	16.16
エポキシ樹脂の割合（質量％）			20.48	20.48	20.48	21.53
評価結果	マイクロボイド	マイクロボイド体積率（％）	3.1	8.2	6.6	7.5
		樹脂成分体積率（％）	18.5	13.5	15.2	14.3
		マイクロボイド比率（％）	14.4	37.8	30.3	34.4
		判定	A	B	B	B
	耐溶剤性	質量増加率（％）	0.06	0.50	0.40	0.37
		判定	A	B	B	B
	反り	反り（μm）	8300	2000	5000	4500
		判定	A	A	A	A
	弾性率（30℃）	GPa	15.2	11.4	13.8	13.4

[0067]

[表4]

			比較例		
			1	2	3
エポキシ樹脂組成物	柔軟性 エポキシ樹脂	柔軟性エポキシ樹脂 1	5.41	1.44	-
		柔軟性エポキシ樹脂 2	-	-	-
	その他の エポキシ樹脂	エポキシ樹脂 1	9.98	13.95	15.39
		エポキシ樹脂 2	1.69	1.69	1.69
		エポキシ樹脂 3	3.40	3.40	3.40
	硬化剤 硬化触媒	硬化剤 1	1.05	1.05	1.05
		硬化剤 2	-	-	-
		硬化触媒	0.85	0.85	0.85
	フィラー	フィラー 1	-	-	-
		フィラー 2	64.49	64.49	64.49
		フィラー 3	12.49	12.49	12.49
	その他の成分	ブラック 4	0.21	0.21	0.21
		K B M- 4 0 3	0.42	0.42	0.42
合計（質量％）			100.00	100.00	100.00
柔軟性エポキシ樹脂の割合（質量％）			26.42	7.03	0.00
エポキシ樹脂の割合（質量％）			20.48	20.48	20.48
評価結果	マイクロボイド	マイクロボイド体積率（％）	9.0	0.6	0.0
		樹脂成分体積率（％）	12.7	21.2	21.7
		マイクロボイド比率（％）	41.5	2.8	0.0
		判定	C	B	B
	耐溶剤性	質量増加率（％）	0.63	0.03	0.00
		判定	C	B	B
	反り	反り（μm）	1800	11000	-
		判定	A	B	B
	弾性率(30℃)	G P a	10.8	16.9	18.0

[0068] 実施例及び比較例において用いた柔軟性エポキシ樹脂は、下記のとおりである。

・柔軟性エポキシ樹脂 1（ポリテトラメチレングリコールのジグリシジルエーテル、エポキシ当量 440 g/e q.、平均分子量 880、商品名：YX7400N、三菱ケミカル株式会社製）

・柔軟性エポキシ樹脂 2（ポリテトラメチレングリコールのジグリシジルエーテル、エポキシ当量 1,072 g/e q.、平均分子量 2,140、商品名：エポゴーサー PT 高分子タイプ、四日市合成株式会社製）

[0069] 実施例及び比較例において用いたエポキシ樹脂（柔軟性エポキシ樹脂以外

のエポキシ樹脂)は、下記のとおりである。

・エポキシ樹脂1 (グリシジルアミン型液状エポキシ樹脂、エポキシ当量 95 g / e q . 、平均分子量 270、商品名: EP-3950L、株式会社 ADEKA 製) ・エポキシ樹脂2 (ビスフェノール F 型液状エポキシ樹脂、エポキシ当量 178 g / e q . 、平均分子量 360、商品名: RE410S、日本化薬株式会社製)

・エポキシ樹脂3 (ビスフェノール F 型液状エポキシ樹脂、エポキシ当量 160 g / e q . 、平均分子量 360、商品名: YDF870GS、日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製)

[0070] 実施例及び比較例において用いた硬化剤は、下記のとおりである。

・硬化剤1 (フェノール系硬化剤、水酸基当量 139 ~ 143 g / e q . 、商品名: MEH-8005、明和化成株式会社製)

・硬化剤2 (酸無水物系硬化剤、商品名: HN-2200、昭和電工マテリアルズ株式会社製)

[0071] 実施例及び比較例において用いた硬化触媒は、下記のとおりである。

・硬化触媒 (2, 4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]-エチル-スートリアジン、商品名: 2MZA、四国化成工業株式会社製)

[0072] 実施例及び比較例において用いたフィラーは、下記のとおりである。

・フィラー1 (平均粒径 0.3 μ m、商品名: SE1050SMO、株式会社 アドマテックス製)

・フィラー2 (平均粒径 0.6 μ m、商品名: SE2200SME、株式会社 アドマテックス製)

・フィラー3 (平均粒径 0.05 μ m、商品名: YA050C-SM1、株式会社 アドマテックス製)

[0073] 実施例及び比較例において用いたその他の成分は、下記のとおりである。

・ブラック4 (カーボンブラック、オリオンエンジニアドカーボonz株式会社製)

・KBM-403（3-グリシド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製）

[0074] 得られたエポキシ樹脂組成物について、マイクロボイド、耐溶剤性、反り、及び弾性率を測定、及び評価した。評価結果は、表1～4に併記した。

[0075] <マイクロボイド>

得られたそれぞれのエポキシ樹脂組成物を、150℃／1時間の条件下で加熱して、硬化物を作製した。得られた硬化物を収束イオンビーム（FIB）により、50nmに等間隔スライス加工をしながら都度SEM観察（加速電圧：1kV、倍率：5,000倍）を実施した。SEM画像においては、電子密度が異なる成分は異なる濃淡の像として表される。即ち、フィラー、樹脂成分、及びボイドは、異なる濃淡として画像上に現れる。取得された連続SEM像を3D画像処理ソフトによって重ね合わせて3D構造の構築を行った。その後、得られた3D構造のコントラスト差からフィラー、樹脂成分、ボイドを設定した後に、画像を分割して各領域の濃淡を認識する機械学習セグメンテーション機能を用い、フィラー、樹脂成分、マイクロボイドをそれぞれ認識、及び抽出し、それぞれの成分の体積率（%）を算出した。得られた体積率を用いて以下の式よりマイクロボイド比率を算出し、下記評価基準に基づき、評価した。なお、フィラーの体積率は、マイクロボイド比率の計算に関与しない。マイクロボイドの測定において使用した装置、3D画像処理ソフトは以下である。

FIB：COBRA（OrsayPhysics製）

SEM：AURIGA（CarlZeiss製）

3D画像処理ソフト：Dragonfly（Ver. 2022.1、ObjectResearchSystem製）

[0076] [数2]

$$\text{マイクロボイド比率（\%）} = \frac{\text{マイクロボイド体積率}}{\text{樹脂成分体積率} + \text{マイクロボイド体積率}} \times 100$$

[0077] ー評価基準ー

A : 0.0% ~ 30.0%

B : 30.1% ~ 38.0%

C : 38.1% 以上

[0078] <耐溶剤性>

各エポキシ樹脂組成物について、150℃/1時間で硬化させ、横70mm、縦150mm、厚み500μmのサイズの試験片を作製した。その試験片の初期質量を測定後、60℃に加熱されたプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート内に30分浸漬させた。浸漬後に表面に付着しているプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートを除去した後に質量を測定し、以下の式から質量増加量（質量変化率に相当する）を算出し、下記評価基準に基づき評価した。

[0079] [数3]

$$\text{質量増加量 (\%)} = \frac{\text{浸漬後の重量} - \text{初期重量}}{\text{初期重量}} \times 100$$

[0080] - 評価基準 -

A : 0.00% ~ 0.30%

B : 0.31% ~ 0.50%

C : 0.51% 以上

[0081] <反り>

モールド装置（WCM-300、アピックヤマダ株式会社製）を用いて、直径300mm、厚み775μmのシリコンウェハーに、各エポキシ樹脂組成物をのせ、120℃/400秒間の条件において、直径292mm、厚み500μmの成型をした後に150℃/1時間で硬化させた。得られたシリコンウェハー成型品の反りをシャドーモアレ式反り測定装置（サーモレイ AXP2.0株式会社サーマプレシジョン製）で測定し、下記評価基準に基づき、反りを評価した。

[0082] - 評価基準 -

A：反りが10,000 μ m以下

B：反りが、10,000 μ m以上、又はウェハー割れ

[0083] <弾性率>

各エポキシ樹脂組成物について、150℃/1時間で硬化させ、横10.0mm、縦50.0mm、厚み2.0mmのサイズの試験片を作製した。得られた試験片について粘弾性分析装置（粘弾性測定装置DMA7100、株式会社日立ハイテクサイエンス製）を用い、DCB法により30℃の貯蔵弾性率を測定した。測定条件は、以下のとおりである。

周波数：1Hz

歪振幅：10 μ m

昇温速度：3℃/min

[0084] 実施例1～14、比較例1～3のマイクロボイドの判定結果と、耐溶剤性の判定結果とは一致している。このことから、マイクロボイド比率が高いと、耐溶剤性が悪化することが明らかであり、エポキシ樹脂組成物の硬化物の耐溶剤性の悪化（チップからの剥離）の原因のひとつが、硬化物内にマイクロボイドが発生していることであることが明らかになった。

[0085] 実施例1～14のエポキシ樹脂組成物は、マイクロボイド及び耐溶剤性の判定が全て「B」以上であり、反りの判定もすべて「A」であった。これに対し、柔軟性エポキシ樹脂の割合がエポキシ樹脂に対して26.4質量%である比較例1は、マイクロボイド及び耐溶剤性の評価結果が「C」であり、柔軟性エポキシ樹脂の割合がエポキシ樹脂に対して25質量%を超えると、耐溶剤性が悪化することが明らかになった。また、柔軟性エポキシ樹脂の割合がエポキシ樹脂に対して7.0質量%である比較例2は、反りの評価結果が「B」であり、柔軟性エポキシ樹脂の割合がエポキシ樹脂に対して8.0質量%未満であると、反りが悪化することが明らかになった。更に、エポキシ樹脂を含有しない比較例3は、反りの評価の際にウェハー割れを起こし、基板の反りが比較例2と比較して更に悪化する結果となった。これらの結果から、柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、エポキシ樹脂に対して8.0質量%

～25.0質量%とすることで、マイクロボイドを抑え、耐溶剤性を良好にしつつ、基板の反りを防止できることが明らかになった。

[0086] 柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、エポキシ樹脂に対して8.0質量%～16.5質量%である実施例1～7、10～11は、マイクロボイド及び耐溶剤性の判定が「A」であるのに対し、柔軟性エポキシ樹脂の含有量がエポキシ樹脂に対して16.5質量%以上である実施例8～9、12～13は、マイクロボイド及び耐溶剤性の判定が「B」であった。これらの結果から、柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、エポキシ樹脂に対して8.0質量%～16.5質量%とすることで、マイクロボイドの抑制と、耐溶剤性を更に良好にできることが明らかになった。

[0087] 本発明の実施形態及び実施例を説明したが、これらは例として提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更を行うことができる。実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれると同様に、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれるものである。

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂、フィラー、並びに硬化剤及び硬化触媒から選択される少なくともいずれかを含有し、
前記エポキシ樹脂は、柔軟性エポキシ樹脂を含有し、
前記柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、前記エポキシ樹脂に対して 8 . 0 質量%～25 . 0 質量%であることを特徴とする
エポキシ樹脂組成物。
- [請求項2] 前記柔軟性エポキシ樹脂の含有量が、前記エポキシ樹脂に対して 8 . 0 質量%～16 . 5 質量%である
請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項3] 前記柔軟性エポキシ樹脂が、脂肪族エポキシ樹脂である
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項4] 前記エポキシ樹脂が、ビスフェノール型エポキシ樹脂、及びグリシジルアミン型エポキシ樹脂から選択される少なくとも1種を含有する
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項5] 前記硬化剤が、フェノール系硬化剤、アミン系硬化剤、及び酸無水物系硬化剤から選択される少なくとも1種である
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項6] 前記硬化剤の含有量が、前記フィラーを除いた前記エポキシ樹脂組成物に対して4質量%～15質量%である
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項7] 液状コンプレッションモールド材として用いられる
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項8] バンプピッチが150 μm 以下の半導体チップの封止に用いられる
請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物。
- [請求項9] 請求項1または2に記載のエポキシ樹脂組成物により得られる硬化物。
- [請求項10] 請求項9に記載の硬化物を有する半導体装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/026985

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*C08G 59/20*(2006.01)i; *H01L 23/29*(2006.01)i; *H01L 23/31*(2006.01)i

FI: C08G59/20; H01L23/30 R

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)

C08G59/20; H01L23/29; H01L23/31

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	WO 2021/261064 A1 (NAMICS CO.) 30 December 2021 (2021-12-30) claims, paragraphs [0076], [0078]-[0092], examples 4-5, 7-13	1-10
X	WO 2018/221681 A1 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 06 December 2018 (2018-12-06) claims, paragraphs [0043], [0047], examples 1-2	1-10
A	JP 2021-161206 A (AJINOMOTO CO., INC.) 11 October 2021 (2021-10-11) entire text	1-10
A	JP 2011-79904 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 21 April 2011 (2011-04-21) entire text	1-10
A	WO 2016/129472 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 18 August 2016 (2016-08-18) entire text	1-10
A	WO 2022/024839 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 03 February 2022 (2022-02-03) entire text	1-10



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

15 September 2023

Date of mailing of the international search report

26 September 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/JP2023/026985

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
WO	2021/261064	A1	30 December 2021	CN 115668484	A	
				KR 10-2023-0028272	A	

WO	2018/221681	A1	06 December 2018	US 2020/0194325	A1	
				claims, paragraphs [0078], [0083], examples 1-2		
				EP 3620481	A1	
				CN 110785451	A	
				KR 10-2020-0015584	A	

JP	2021-161206	A	11 October 2021	KR 10-2021-0122173	A	

JP	2011-79904	A	21 April 2011	(Family: none)		

WO	2016/129472	A1	18 August 2016	KR 10-2016-0147285	A	
				CN 106459374	A	

WO	2022/024839	A1	03 February 2022	CN 115024023	A	
				KR 10-2023-0044981	A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/20(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i FI: C08G59/20; H01L23/30 R		
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）） C08G59/20; H01L23/29; H01L23/31		
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	WO 2021/261064 A1（ナミックス株式会社）30.12.2021（2021-12-30） 請求の範囲，段落[0076]，[0078]-[0092]，実施例4-5，7-13	1-10
X	WO 2018/221681 A1（日立化成株式会社）06.12.2018（2018-12-06） 請求の範囲，段落[0043]，[0047]，実施例1-2	1-10
A	JP 2021-161206 A（味の素株式会社）11.10.2021（2021-10-11） 全文	1-10
A	JP 2011-79904 A（日立化成工業株式会社）21.04.2011（2011-04-21） 全文	1-10
A	WO 2016/129472 A1（積水化学工業株式会社）18.08.2016（2016-08-18） 全文	1-10
A	WO 2022/024839 A1（積水化学工業株式会社）03.02.2022（2022-02-03） 全文	1-10
☐ 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 15.09.2023		国際調査報告の発送日 26.09.2023
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） 三宅 澄也 4J 2567 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2023/026985

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2021/261064	A1	30.12.2021	CN	115668484	A	
				KR	10-2023-0028272	A	
WO	2018/221681	A1	06.12.2018	US	2020/0194325	A1	
				Claims, Paragraphs [0078], [0083], Examples 1-2			
				EP	3620481	A1	
				CN	110785451	A	
				KR	10-2020-0015584	A	
JP	2021-161206	A	11.10.2021	KR	10-2021-0122173	A	
JP	2011-79904	A	21.04.2011	(ファミリーなし)			
WO	2016/129472	A1	18.08.2016	KR	10-2016-0147285	A	
				CN	106459374	A	
WO	2022/024839	A1	03.02.2022	CN	115024023	A	
				KR	10-2023-0044981	A	