

(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3日(03.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/175669 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 59/20 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
H01L 23/31 (2006.01)

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.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/008300

(22) 国際出願日: 2020年2月28日(28.02.2020)

(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 2019-035277 2019年2月28日(28.02.2019) JP

(71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMI-
CAL 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:

一 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,

(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: A sealing composition that contains: a first epoxy resin which comprises, in each molecule, at least two benzene rings and at least one ether bond that connects the two benzene rings directly or via a linking group, and which is configured such that the two benzene rings do not have a substituent at the ortho position and the meta position of the bonding position of the ether bond; a curing agent; and an inorganic filler.

(57) 要約: 少なくとも2つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記2つのベンゼン環を連結する少なくとも1つのエーテル結合とを分子内に有し、前記2つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第1のエポキシ樹脂と、硬化剤と、無機充填材と、を含有する封止組成物。



WO 2020/175669 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] 本発明は、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。

一方で、半導体パッケージに使用される部材には、温度サイクルテストに対する耐久性も求められる。

例えば無機充填材を高充填させると、封止材の高熱伝導化が可能になるものの、弾性率が高くなることで温度サイクルテストに対する耐久性が低下する場合があります、封止材の高熱伝導化と低弾性率化とはトレードオフの関係にある。そのため、高熱伝導化と低弾性率化とを両立することが難しい場合がある。

[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

材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）

先行技術文献

特許文献

[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、封止材（すなわち、半導体封止用エポキシ樹脂組成物の硬化物）の弾性率が高くなることがある。そのため、弾性率の低い高熱伝導封止材の開発は難題である。

[0006] 本開示は、上記従来の事情に鑑みてなされたものであり、硬化物における高温（260℃）の弾性率を低く抑えつつ、硬化物における熱伝導率を向上した封止組成物及び封止組成物を用いた半導体装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 前記課題を達成するための具体的手段は以下の通りである。

<1>

少なくとも 2 つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記 2 つのベンゼン環を連結する少なくとも 1 つのエーテル結合とを分子内に有し、前記 2 つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第 1 のエポキシ樹脂と、

硬化剤と、

無機充填材と、

を含有する封止組成物。

<2>

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>に記載の封止組成物。

<3>

融点又は軟化点が50℃以上である第2のエポキシ樹脂をさらに含有する<1>又は<2>に記載の封止組成物。

<4>

前記第2のエポキシ樹脂の含有率は、封止組成物に含有されるエポキシ樹脂の総量に対して80質量%以下である<3>に記載の封止組成物。

<5>

前記第2のエポキシ樹脂の含有率は、封止組成物に含有されるエポキシ樹脂の総量に対して50質量%以上である<3>又は<4>に記載の封止組成物。

<6>

前記第1のエポキシ樹脂は、分子内に2つのエポキシ基を有する<1>～<5>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<7>

前記2つのベンゼン環の少なくとも一方に対して、前記エーテル結合が直接結合している<1>～<6>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<8>

前記2つのベンゼン環を連結する基が、1つの前記エーテル結合からなる基である<1>～<7>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<9>

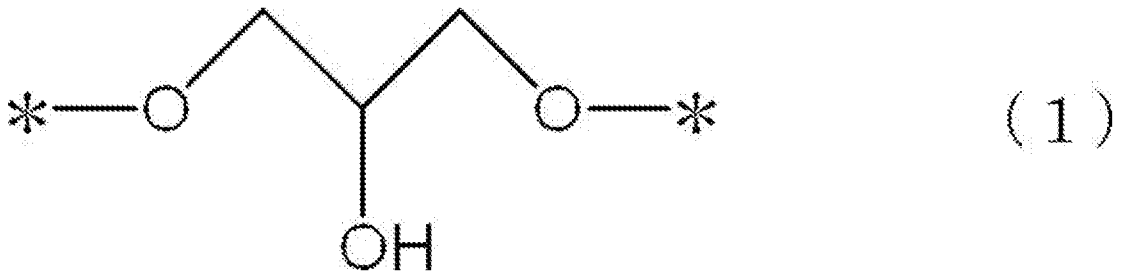
前記2つのベンゼン環を連結する基が、2以上の前記エーテル結合を含む基である<1>～<7>のいずれか1つに記載の封止組成物。

<10>

前記2つのベンゼン環を連結する基が、下記構造式(1)で表される2価の連結基である<9>に記載の封止組成物。

[0008]

[化1]



[0009] 上記構造式（１）中、＊は前記ベンゼン環との結合部を示す。

< 1 1 >

前記第１のエポキシ樹脂以外の樹脂であって、ベンゼン環と前記ベンゼン環のパラ位に直接又は連結基を介して結合する少なくとも２つのエポキシ基とを有し、前記ベンゼン環が前記２つのエポキシ基の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第３のエポキシ樹脂をさらに含有する< 1 >～< 1 0 >のいずれか１つに記載の封止組成物。

< 1 2 >

半導体素子と、前記半導体素子を封止してなる< 1 >～< 1 1 >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

[0010] 本開示によれば、硬化物における高温（２６０℃）の弾性率を低く抑えつつ、硬化物における熱伝導率を向上した封止組成物及び封止組成物を用いた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

[0011] 以下、本発明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（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。

[0012] 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。

[0013] <封止組成物>

本開示の封止組成物は、少なくとも2つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記2つのベンゼン環を連結する少なくとも1つのエーテル結合とを分子内に有し、前記2つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第1のエポキシ樹脂と、硬化剤と、無機充填材と、を含有する。

[0014] 本開示の封止組成物は、上記第1のエポキシ樹脂を含有するため、硬化物における高温（260℃）の弾性率（以下「高温弾性率」ともいう）を低く抑えつつ、かつ、硬化物における熱伝導性が向上する。その理由は定かではないが、以下のように推測される。

オルト位及びメタ位に置換基を有さない第1のエポキシ樹脂は、置換基を有するエポキシ樹脂に比べ、配向しやすく結晶性が高くなるため、分子振動しやすく、熱損失が低減することで、硬化物の高熱伝導化が可能になると考えられる。加えて、第1のエポキシ樹脂は、2つのベンゼン環を連結するエーテル結合を有することで柔軟性が得られるため、硬化物における高温弾性率の上昇を抑制しつつ、上記硬化物の熱伝導率を向上することができると推測される。

[0015] 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。

[0016] −エポキシ樹脂−

エポキシ樹脂としては、一般的に、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ル

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。

[0017] これらのエポキシ樹脂の中でも、本開示の封止組成物は、前記の通り、少なくとも2つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記2つのベンゼン環を連結する少なくとも1つのエーテル結合とを分子内に有し、前記2つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第1のエポキシ樹脂を含有する。

また、本開示の封止組成物は、必要に応じて第1のエポキシ樹脂及び後述する第3のエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を含有してもよく、第1のエポキシ樹脂及び後述する第3のエポキシ樹脂以外の樹脂として、融点又は軟化点が50℃以上である第2のエポキシ樹脂をさらに含有することが好ましい。

さらに、本開示の封止組成物は、必要に応じて、前記第1のエポキシ樹脂以外の樹脂であって、ベンゼン環と前記ベンゼン環のパラ位に直接又は連結基を介して結合する少なくとも2つのエポキシ基とを有し、前記ベンゼン環が前記2つのエポキシ基の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第3のエポキシ樹脂を含有してもよい。

本開示の封止組成物は、必要に応じて、第1のエポキシ樹脂、第2のエポキシ樹脂、及び第3のエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂（以下「その他のエポキシ樹脂」ともいう）を含有してもよい。ただし、第1のエポキシ樹脂並びに必要に応じて含有される第2のエポキシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計含有率は、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対し、90質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。

[0018] （第1のエポキシ樹脂）

第1のエポキシ樹脂は、少なくとも2つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記2つのベンゼン環を連結する少なくとも1つのエーテル結合とを

分子内に有し、前記2つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さないエポキシ樹脂であれば特に限定されるものではない。

以下、前記エーテル結合によって連結されたベンゼン環を「特定ベンゼン環」ともいう。

[0019] 第1のエポキシ樹脂が1分子中に有する特定ベンゼン環の数は、少なくとも2以上であれば特に限定されるものではなく、2～6の範囲が挙げられ、2～4であることが好ましく、2であることがより好ましい。

第1のエポキシ樹脂は、特定ベンゼン環に直接又は連結基を介して結合する特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環を有してもよい。第1のエポキシ樹脂が特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環を有する場合、第1のエポキシ樹脂が有する上記芳香族炭化水素環は1種でもよく、2種以上でもよい。また、第1のエポキシ樹脂が特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環を有する場合、第1のエポキシ樹脂が有する上記芳香族炭化水素環の数は、2以上が挙げられ、2～4の範囲であってもよく、2であってもよい。特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ナフタレン環等が挙げられ、その中でもベンゼン環が好ましい。

第1のエポキシ樹脂が特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環としてベンゼン環を有する場合、前記特定ベンゼン環以外のベンゼン環は、特定ベンゼン環の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さないことが好ましい。

[0020] 第1のエポキシ樹脂は、分子内に、エポキシ基を少なくとも2以上有する。第1のエポキシ樹脂が1分子中に有するエポキシ基の数は、2以上であれば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、グリシジルアミノ基、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）などから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。

その中でも、第1のエポキシ樹脂は、分子内にグリシジルオキシ基を有することが好ましく、特定ベンゼン環又は特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環に直接結合するグリシジルオキシ基を分子内に有することがより好ましい。つまり、上記グリシジルオキシ基は、特定ベンゼン環に直接結合してもよく、前記特定ベンゼン環以外の他の芳香族炭化水素環に直接結合してもよい。

また、第1のエポキシ樹脂が2以上のグリシジルオキシ基を有する場合、前記2以上のグリシジルオキシ基すべてが特定ベンゼン環及び特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環から選択される少なくとも1つに直接結合することが好ましく、前記2以上のグリシジルオキシ基すべてが特定ベンゼン環に直接結合するか又は特定ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環に直接結合することがより好ましく、前記2以上のグリシジルオキシ基すべてが特定ベンゼン環に直接結合するか又は特定ベンゼン環以外のベンゼン環に直接結合することがさらに好ましい。

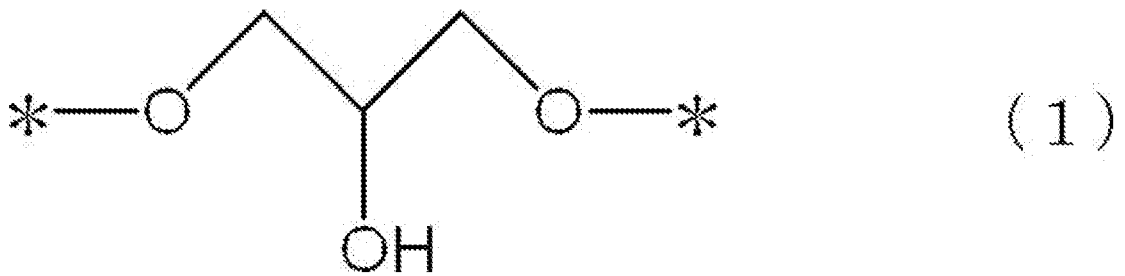
[0021] 第1のエポキシ樹脂は、2つの特定ベンゼン環の間に有するエーテル結合を、1分子中に少なくとも1以上有していればよく、2以上有していてもよい。

エーテル結合は、直接特定ベンゼン環に結合していることが好ましく、エーテル結合以外の他の連結基（置換又は無置換のアルキレン基等の炭化水素基、カルボニル基など）を介して特定ベンゼン環に結合してもよい。2つの特定ベンゼン環を連結する基は、1つのエーテル結合からなる基であってもよく、エーテル結合及びエーテル結合以外の他の連結基を含む基であってもよく、2以上のエーテル結合を含む基であってもよく、2以上のエーテル結合及びエーテル結合以外の他の連結基を含む基であってもよい。

2以上のエーテル結合及びエーテル結合以外の他の連結基を含む基としては、下記構造式（1）で表される2価の連結基が挙げられる。

なお、下記構造式（1）中、*は特定ベンゼン環との結合部を示す。

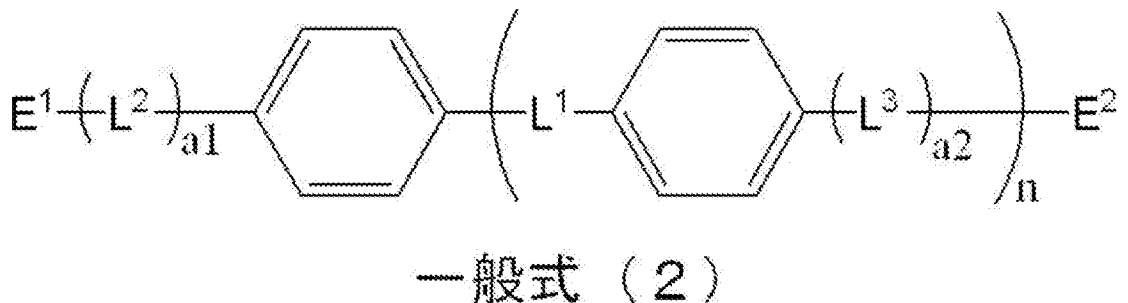
[0022] [化2]



[0023] 第1のエポキシ樹脂は、さらに他の置換基（アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、アミノ基等）を有してもよい。

[0024] 第1のエポキシ樹脂としては、例えば、下記一般式（2）で表されるエポキシ樹脂が挙げられる。

[0025] [化3]



[0026] 上記一般式（2）中、 E^1 及び E^2 はそれぞれ独立にエポキシ基を含む1価の基を示し、 L^1 はエーテル結合を含む2価の連結基を示し、 L^2 及び L^3 はそれぞれ独立に芳香族炭化水素環を含む2価の連結基を示し、 $a1$ 及び $a2$ はそれぞれ独立に0～3の整数を示し、 n は1～4の整数を示す。

[0027] 一般式（2）中の E^1 及び E^2 で示される1価の基としては、グリシジル基、グリシジルオキシ基、グリシジルオキシカルボニル基、グリシジルアミノ基、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）などが挙げられ、その中でもグリシジルオキシ基が好ましい。

一般式（2）中の L^1 で示される2価の連結基としては、エーテル結合、前

記構造式（１）で表される２価の連結基、ペルオキシ基、アセタール基等が挙げられる。

一般式（２）中の L^2 及び L^3 で示される２価の連結基としては、フェニレン基、ナフチレン基等が挙げられ、フェニレン基が好ましく、*p*-フェニレン基がより好ましい。

一般式（２）中の a_1 及び a_2 は、０～２の整数であることが好ましく、０～１の整数であることがより好ましい。

一般式（２）中の n は、１～３であることが好ましく、１～２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。

[0028] 封止組成物が後述する第３のエポキシ樹脂を含まない場合、第１のエポキシ樹脂におけるエポキシ基当量は、例えば 180 g/eq 以下が挙げられ、熱伝導率の向上と高温弾性率の上昇抑制とを両立する観点から、 $130\text{ g/eq} \sim 180\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $135\text{ g/eq} \sim 175\text{ g/eq}$ であることがより好ましく、 $140\text{ g/eq} \sim 170\text{ g/eq}$ であることがさらに好ましい。

また、封止組成物が後述する第３のエポキシ樹脂を含む場合、第１のエポキシ樹脂と第３のエポキシ樹脂との混合物におけるエポキシ基当量は、例えば 180 g/eq 以下が挙げられ、熱伝導率の向上と高温弾性率の上昇抑制とを両立する観点から、 $125\text{ g/eq} \sim 180\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $130\text{ g/eq} \sim 175\text{ g/eq}$ であることがより好ましく、 $135\text{ g/eq} \sim 170\text{ g/eq}$ であることがさらに好ましい。

ここで、上記「エポキシ基当量」は、以下のようにして測定する。具体的には、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。

[0029] 封止組成物が後述する第３のエポキシ樹脂を含まない場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第１のエポキシ樹脂の含有率は、高

温弾性率の上昇抑制と熱伝導率向上とを両立させる観点から、10質量%以上であることが好ましく、20質量%以上であることがより好ましく、25質量%以上であることがさらに好ましい。また、封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含まない場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第1のエポキシ樹脂の含有率は、封止組成物の成形性の観点から、70質量%以下であることが好ましく、50質量%以下であることがより好ましく、40質量%以下であることがさらに好ましい。封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含まない場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第1のエポキシ樹脂の含有率は、高温弾性率上昇抑制、熱伝導率向上、及び封止組成物の成形性の観点から、10質量%～70質量%であることが好ましく、20質量%～50質量%であることがより好ましく、25質量%～40質量%であることがさらに好ましい。

[0030] 封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含む場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第1のエポキシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計含有率は、高温弾性率の上昇抑制と熱伝導率向上とを両立させる観点から、10質量%以上であることが好ましく、20質量%以上であることがより好ましく、25質量%以上であることがさらに好ましい。また、封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含む場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第1のエポキシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計含有率は、封止組成物の成形性の観点から、70質量%以下であることが好ましく、50質量%以下であることがより好ましく、40質量%以下であることがさらに好ましい。封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含む場合、封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第1のエポキシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計含有率は、高温弾性率上昇抑制、熱伝導率向上、及び封止組成物の成形性の観点から、10質量%～70質量%であることが好ましく、20質量%～50質量%であることがより好ましく、25質量%～40質量%であることがさらに好ましい。

また、封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含む場合、第1のエポ

キシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計に対する第1のエポキシ樹脂の含有率は、例えば5質量%～35質量%が挙げられ、高温弾性率の上昇抑制の観点から10質量%～35質量%が好ましく、20質量%～35質量%がより好ましい。

[0031] 封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含まない場合、封止組成物全体に対する第1のエポキシ樹脂の含有率は、0.2質量%～3.0質量%であることが好ましく、0.4質量%～1.5質量%であることがより好ましく、0.6質量%～1.1質量%であることがさらに好ましい。

封止組成物が後述する第3のエポキシ樹脂を含む場合、封止組成物全体に対する第1のエポキシ樹脂及び第3のエポキシ樹脂の合計含有率は、0.2質量%～3.0質量%であることが好ましく、0.4質量%～1.5質量%であることがより好ましく、0.6質量%～1.1質量%であることがさらに好ましい。

[0032] (第2のエポキシ樹脂)

第2のエポキシ樹脂は、第1のエポキシ樹脂及び後述する第3のエポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂であり、かつ、融点又は軟化点が50℃以上であるエポキシ樹脂であれば特に限定されるものではない。

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。

なお、第2の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、60℃以上であることがより好ましく、70℃以上であることがさらに好ましい。また、第2のエポキシ樹脂における融点又は軟化点は、製造時の混練性の観点から、150℃以下であることが好ましく、130℃以下であることがより好ましく、120℃以下であることがさらに好ましい。第2の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と製造時の混練性の観点から、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。

[0033] 第2のエポキシ樹脂における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、成形性と高温弾性率上昇抑制との両立の観点から、120g/eq～270g/eqであることがより好ましく、150g/eq～240g/eqであることがさらに好ましい。

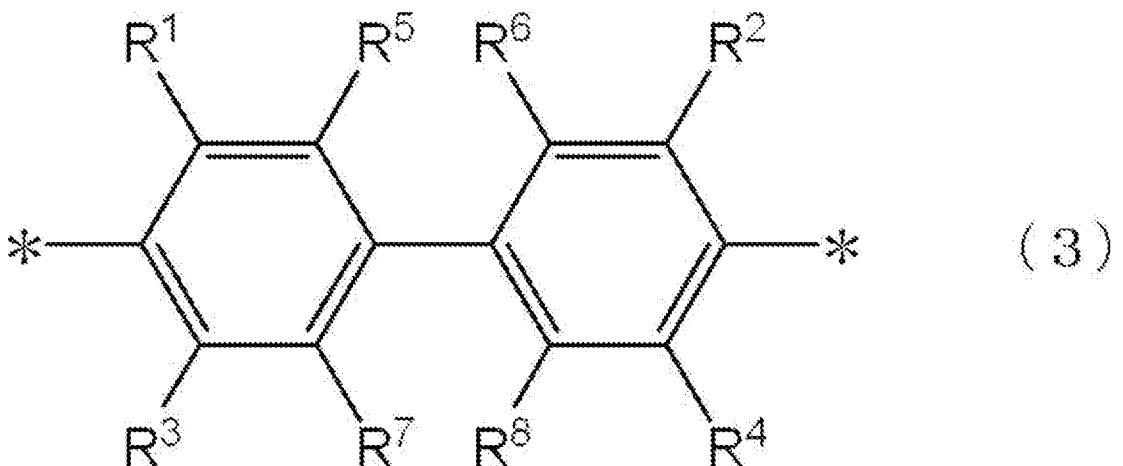
[0034] 第2のエポキシ樹脂は、分子内に、エポキシ基を少なくとも2以上有する。第2のエポキシ樹脂が1分子中に有するエポキシ基の数は、特に限定されるものではなく、2～8が挙げられ、2～6が好ましく、2～3がより好ましく、2が特に好ましい。

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、グリシジルアミノ基、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）などから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。

[0035] 第2のエポキシ樹脂は、分子内に、2以上のエポキシ基に加え、下記一般式（3）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（3）中、*は結合部を示し、R¹～R⁸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。

[0036] [化4]



[0037] 前記一般式(3)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(3)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。

[0038] 封止組成物に含まれる全エポキシ樹脂の総量に対する第2のエポキシ樹脂の含有率は、高温弾性率の上昇抑制と成形性とを両立する観点から、30質量%～90質量%であることが好ましく、50質量%～80質量%であることがより好ましく、60質量%～75質量%であることがさらに好ましい。

また、封止組成物全体に対する第2のエポキシ樹脂の含有率は、1.0質量%～5.0質量%であることが好ましく、1.5質量%～4.0質量%であることがより好ましく、1.7質量%～3.0質量%であることがさらに好ましい。

[0039] (第3のエポキシ樹脂)

第3のエポキシ樹脂は、第1のエポキシ樹脂以外の樹脂であって、ベンゼン環と前記ベンゼン環のパラ位に直接又は連結基を介して結合する少なくとも2つのエポキシ基とを有し、前記ベンゼン環が前記2つのエポキシ基の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さないエポキシ樹脂であれば特に限定されるものではない。

[0040] 第3のエポキシ樹脂が1分子中に有するベンゼン環の数は、特に限定されるものではなく、1～3の範囲が挙げられ、1～2であることが好ましく、1であることがより好ましい。

第3のエポキシ樹脂がベンゼン環を2以上有する場合、前記2以上のベンゼン環はいずれもパラ位のみが置換されている(つまり、オルト位及びメタ位に置換基を有さない)ことが好ましい。

第3のエポキシ樹脂は、ベンゼン環以外の芳香族炭化水素環をさらに有し

てもよい。

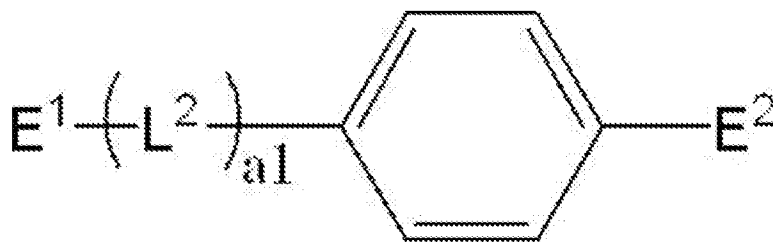
[0041] 第3のエポキシ樹脂が1分子中に有するエポキシ基の数は、2以上であれば特に限定されるものではなく、2が好ましい。

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、グリシジルアミノ基、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）などから選択される少なくとも一種の一部として、第3のエポキシ樹脂の分子中に含まれていてもよい。

その中でも、第3のエポキシ樹脂は、分子内にグリシジロキシ基を有することが好ましく、ベンゼン環に直接結合するグリシジロキシ基を分子内に有することがより好ましい。また、第3のエポキシ樹脂が2以上のグリシジロキシ基を有する場合、前記2以上のグリシジロキシ基すべてがベンゼン環に直接結合することが好ましい。

[0042] 第3のエポキシ樹脂としては、例えば、下記一般式（4）で表されるエポキシ樹脂が挙げられる。

[0043] [化5]



一般式（4）

[0044] 上記一般式（4）中、 E^1 、 E^2 、及び L^2 は、それぞれ、前記一般式（2）中の E^1 、 E^2 、及び L^2 と同じ基を示す。また、上記一般式（4）中、 a_1 は、前記一般式（2）中の a_1 と同じ数を示す。

[0045] 封止組成物に占める全エポキシ樹脂の含有率は、2.0質量%～6質量%

であることが好ましく、3.0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全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。

[0046] ー硬化剤ー

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。

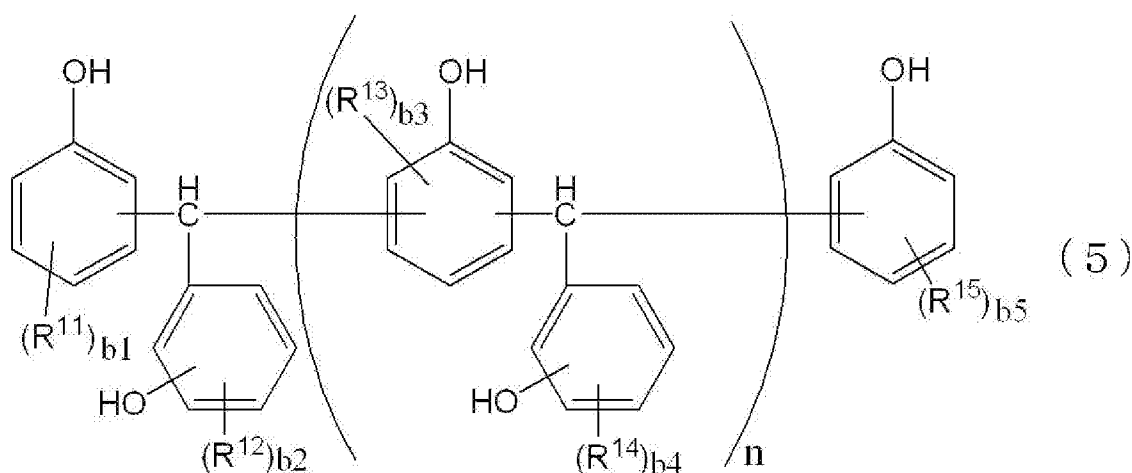
[0047] フェノール硬化剤としては、1分子中に2個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール樹脂、多価フェノール化合物等が挙げられる。具体的には、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、置換又は非置換のビフェノール等の多価フェノール化合物；フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール化合物及び α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、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て用いてもよい。

[0048] 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。

[0049] 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（５）で表されるフェノール樹脂が挙げられる。

[0050] [化6]



[0051] 上記一般式（５）中、 $\text{R}^{11} \sim \text{R}^{15}$ は、それぞれ独立に、炭素数１～１８の

1 価の有機基を示し、 $b_1 \sim b_2$ は、それぞれ独立に、0～4 の整数を示し、 b_3 は 0～3 の整数を示し、 $b_4 \sim b_5$ は、それぞれ独立に、0～4 の整数を示し、 n は 0～10 を示す。

[0052] 一般式 (5) 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 (5) 中の $b_1 \sim b_5$ 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 (5) 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。

[0053] 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 K0070:1992 に準拠して測定された値をいう。

[0054] 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。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、 $50^\circ\text{C} \sim 130^\circ\text{C}$ であることがより好ましく、 $55^\circ\text{C} \sim 100^\circ\text{C}$ 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。

[0055] 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。

[0056] ー無機充填材ー

無機充填材は、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。

無機充填材を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。

無機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、球状であることが好ましい。

[0057] 無機充填材としては、高熱伝導性の観点からアルミナを含むことが好ましい。無機充填材の全てがアルミナであってもアルミナとその他の無機充填材とが併用されていてもよい。

アルミナと併用可能なその他の無機充填材としては、球状シリカ、結晶シリカ等のシリカ、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。

[0058] 無機充填材としてアルミナとその他の無機充填材とが併用される場合、流動性の観点から、その他の無機充填材としてシリカを用いることが好ましい。

無機充填材としてアルミナとシリカとが併用される場合、無機充填材に占めるアルミナの含有率は、50質量%以上であることが好ましく、70質量%以上であることがより好ましく、85質量%以上であることがさらに好ましく、95質量%以上であることが特に好ましい。また、無機充填材に占めるアルミナの含有率は、99.6質量%以下であってもよい。

[0059] 無機充填材の含有率としては、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%以上であることが特に好ましく、80体積%以上であることが極めて好ましい。無機充填材の含有率は、封止組成物の成形性及び流動性の観点から、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及び流動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。

[0060] 無機充填材の平均粒子径としては、 $4\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $7\mu\text{m}$ ～ $70\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $7\mu\text{m}$ ～ $40\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。本開示において、無機充填材の平均粒子径は、無機充填材としてアルミナが単独で用いられている場合にはアルミナの平均粒子径を、無機充填材としてアルミナとその他の無機充填材とが併用されている場合には無機充填材全体としての平均粒子径をいう。

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。

[0061] 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。

[0062] 無機充填材の比表面積としては、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。

本開示において、無機充填材の比表面積は、無機充填材として例えばアルミナが単独で用いられている場合にはアルミナの比表面積を、無機充填材としてアルミナとその他の無機充填材とが併用されている場合には無機充填材の混合物の比表面積をいう。

無機充填材の比表面積（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°C 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°C ）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。

[0063] ーその他の成分ー

（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、2,5-トルキノ、1,4-ナフトキノ、2,3-ジメチルベンゾキノ、2,6-ジメチルベンゾキノ、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノ、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノ、フェニル-1,4-ベンゾキノ等のキノ化合物、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テ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テ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。

[0064] 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

イ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。

[0065] 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。

[0066] (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(6)又は下記一般式(7)で表される化合物等が挙げられる。

[0067] $Mg_{1-a}Al_a(OH)_2(CO_3)_{a/2} \cdot uH_2O$ (6)

(一般式(6)中、 a は $0 < a \leq 0.5$ であり、 u は正数である。)

$BiO_b(OH)_c(NO_3)_d$ (7)

(一般式(7)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。)

[0068] 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(6)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(7)で表される化合物としては、例えば、「IXE500」(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。

[0069] 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。

[0070] 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。

[0071] また、イオントラップ剤の平均粒子径は $0.1\mu\text{m}\sim 3.0\mu\text{m}$ 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。

[0072] (カップリング剤)

封止組成物は、カップリング剤をさらに含有してもよい。カップリング剤の種類は、特に制限されず、公知のカップリング剤を使用することができる。カップリング剤としては、シランカップリング剤、チタンカップリング剤等が挙げられる。カップリング剤は、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。

[0073] シランカップリング剤としては、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(β -メトキシエトキシ)シラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 δ -メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -[ビス(β -ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -(β -アミノエチル)アミノプロピルジメトキシメチルシラン、N-(トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、N-(ジメトキシメチルシリルイソプロピル)エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、N- β -(N-ビニルベンジルアミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、 γ -アニリノプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン等が挙げられる。

[0074] チタンカップリング剤としては、イソプロピルトリイソステアロイルチタ

ネート、イソプロピルトリス（ジオクチルパイロホスフェート）チタネート、イソプロピルトリ（N-アミノエチル-アミノエチル）チタネート、テトラオクチルビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、テトラ（2, 2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル）ビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、ビス（ジオクチルパイロホスフェート）オキシアセテートチタネート、ビス（ジオクチルパイロホスフェート）エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホンイルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ（ジオクチルホスフェート）チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス（ジオクチルホスファイト）チタネート等が挙げられる。

[0075] ー特定シラン化合物ー

なお、封止組成物は、上記カップリング剤として、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（以下「特定シラン化合物」ともいう）を含有してもよい。

上記鎖状炭化水素基は、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。

[0076] 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。

[0077] 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、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。

[0078] 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。

[0079] 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。

[0080] 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。

[0081] 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。

[0082] 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。

[0083] 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。

[0084] 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。

[0085] 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、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。

[0086] 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。

[0087] 封止組成物がカップリング剤を含有する場合、カップリング剤の含有率は、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。

また、カップリング剤の含有率は、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。カップリング剤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。カップリング剤の含有量は、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。

[0088]（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、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。

[0089]（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（シリコーン、シリコーンゴム等）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。

[0090] 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。

[0091] (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、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。

[0092] <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。

[0093] <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。

[0094] 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。

[0095] 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

[0096] 以下に本発明の実施例について説明するが、本発明はこれ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。

[0097] <実施例 1 ～ 6 及び比較例 1 ～ 2>

下記に示す成分を表 1 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 に示す成分の詳細は以下の通りである。

[0098] (A) エポキシ樹脂

エポキシ樹脂 A 1-1 : 第 1 のエポキシ樹脂、前記一般式 (2) で表されるエポキシ樹脂 (E^1 及び E^2 はいずれもグリシジルオキシ基、 L^1 はエーテル結合、 a_1 及び a_2 はいずれも 0、 n は 1)、エポキシ基当量「165 g / eq」、融点「83℃」

エポキシ樹脂 A 1-2 : 第 1 のエポキシ樹脂及び第 3 のエポキシ樹脂の混合物、前記一般式 (2) で表されるエポキシ樹脂 (E^1 及び E^2 はいずれもグリシジルオキシ基、 L^1 は前記構造式 (1) で表される連結基、 L^2 及び L^3 はいずれも *p*-フェニレン基、 a_1 及び a_2 はいずれも 0 又は 1、 n は 1) と前記一般式 (4) で表されるエポキシ樹脂 (E^1 及び E^2 はいずれもグリシジルオキシ基、 L^2 は *p*-フェニレン基、 a_1 は 0 又は 1) との混合物、エポキシ基当量「140 g / eq」

エポキシ樹脂 A 2-1 : 第 2 のエポキシ樹脂、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℃」、ビスフェニル型エポキシ樹脂

エポキシ樹脂 A 2-2 : 第 2 のエポキシ樹脂、日鉄ケミカル & マテリアル株式会社、品名「YSLV-70XY」、エポキシ基当量「192 g / eq」、融点「67℃」、ビスフェノール型エポキシ樹脂

[0099] (B) 硬化剤

フェノール樹脂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「HE 9 1 0－0 9」、水酸基当量「9 2～1 0 4 g／eq」、軟化点「7 5～8 5℃」

[0100] (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 1：8－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－5 8 0 3」

(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「MA 6 0 0」

(G) 添加剤

添加剤G 1：トリフェニルホスフィンオキシド、北興化学工業株式会社、品名「TP－5 0」

(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「BY 1 6－8 7 6」

[0101] (I) 無機充填材

フィラ I 1：シリカ粒子、株式会社トクヤマ、品名「CP－1 0 2」、球状、比表面積「1 9 0 m²／g～2 3 0 m²／g」

フィラ I 2：アルミナ粒子、株式会社アドマテックス、品名「AE 2 0 0 0」、球状、平均粒子径「0. 7 μm」

フィラ I 3：アルミナ粒子、デンカ株式会社、品名「DAB 1 0 S I T S 1」、球状、平均粒子径「1 0 μm」

[0102] 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 に示す。

[0103] (高温弾性率)

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℃、成形圧力 6.9 MPa、硬化時間 90 秒の条件で、127 mm×12.7 mm×4 mm の形状の試験片を作製した。その後、後硬化を 175℃で 6 時間の条件で行った。評価装置として、テンシロン (A & D 社) を用い、JIS-K-7171 (2016) に準拠した 3 点支持型曲げ試験を、260℃において行い、試験片の曲げ弾性率を求めた。

なお、曲げ弾性率 E は下記式にて定義され、260℃における測定によって得られた曲げ弾性率を「高温弾性率」とする。

下記式中、 E は曲げ弾性率 (MPa)、 P はロードセルの値 (N)、 y は変位量 (mm)、 l はスパン = 64 mm、 w は試験片幅 = 12.7 mm、 h は試験片厚さ = 4 mm である。

[0104] [数1]

$$E = \frac{l^3}{4wh^3} \frac{\Delta P}{\Delta y}$$

[0105] (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247V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（8）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。

$$\lambda = \alpha \times C_p \times \rho \cdots \text{式（8）}$$

（式（8）中、 λ は熱伝導率（W／（m・K））、 α は熱拡散率（m²／s）、 C_p は比熱（J／（kg・K））、 ρ は密度（kg／m³）をそれぞれ示す。）

[0106] [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	比較例 1	比較例 2
組成	エポキシ樹脂	A1-1	30	70	10	0	0	0	0	0
		A1-2	0	0	0	30	10	50	0	0
		A2-1	70	30	90	70	90	50	100	30
		A2-2	0	0	0	0	0	0	0	70
	硬化剤B1		56.8	60.4	55.0	60.7	56.2	64.5	54.2	54.2
	硬化促進剤C1		3.4	3.4	3.4	3.4	3.4	3	4	4
	カーボンナノチューブD1		15	15	15	15	15	15	15	15
	離型剤E1		1	1	1	1	1	1	1	1
	顔料F1		6	6	6	6	6	6	6	6
	添加剤G1		10	10	10	10	10	10	10	10
	改質剤H1		3	3	3	3	3	3	3	3
	フィラー	I1	14	14	14	14	14	14	14	14
		I2	287	292	285	293	286	298	285	285
		I3	2690	2738	2667	2742	2682	2787	2664	2664
合計			3186.2	3242.8	3159.4	3248.1	3176.6	3301.5	3156.2	3156.2
フィラーの平均粒子径 (μm)			9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
フィラー含有率 (体積%)			82	82	82	82	82	82	82	82
評価	高温弾性率 (GPa)		1.22	1.26	1.01	1.03	1.08	0.99	1.05	1.19
	熱伝導率 (W/(m・K))		8.29	8.47	7.95	8.20	7.96	8.60	7.70	7.44

[0107] 表1の評価結果から明らかなように、第1のエポキシ樹脂を含有する実施

例 1 ～ 6 の封止組成物は、第 1 のエポキシ樹脂を含有しない比較例 1 及び比較例 2 の封止組成物に比較して、熱伝導率の高い硬化物が得られている。また、実施例 1 ～ 6 の封止組成物の硬化物の高温弾性率は、比較例 1 及び比較例 2 の封止組成物の硬化物の高温弾性率と同等の値となっている。つまり、実施例 1 ～ 6 の封止組成物は、比較例 1 及び比較例 2 の封止組成物に比較して、硬化物における高温弾性率を低く抑えつつ、硬化物における熱伝導率が向上したことがわかる。

[0108] 日本国特許出願 2019-035227 号の開示は、その全体が参照により本開示に取り込まれる。

本開示における全ての文献、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、本開示中に参照により取り込まれる。

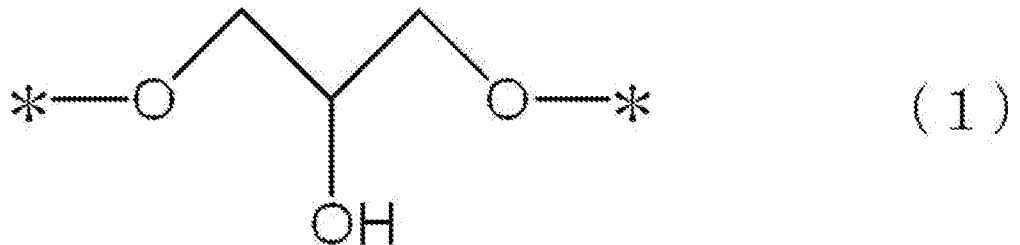
請求の範囲

- [請求項1] 少なくとも2つのベンゼン環と直接又は連結基を介して前記2つのベンゼン環を連結する少なくとも1つのエーテル結合とを分子内に有し、前記2つのベンゼン環が前記エーテル結合の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第1のエポキシ樹脂と、
硬化剤と、
無機充填材と、
を含有する封止組成物。
- [請求項2] 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に記載の封止組成物。
- [請求項3] 融点又は軟化点が50℃以上である第2のエポキシ樹脂をさらに含有する請求項1又は請求項2に記載の封止組成物。
- [請求項4] 前記第2のエポキシ樹脂の含有率は、封止組成物に含有されるエポキシ樹脂の総量に対して80質量%以下である請求項3に記載の封止組成物。
- [請求項5] 前記第2のエポキシ樹脂の含有率は、封止組成物に含有されるエポキシ樹脂の総量に対して50質量%以上である請求項3又は請求項4に記載の封止組成物。
- [請求項6] 前記第1のエポキシ樹脂は、分子内に2つのエポキシ基を有する請求項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2つのベンゼン環の少なくとも一方に対して、前記エーテル結合が直接結合している請求項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] 前記2つのベンゼン環を連結する基が、1つの前記エーテル結合からなる基である請求項1～請求項7のいずれか1項に記載の封止組成物。
- [請求項9] 前記2つのベンゼン環を連結する基が、2以上の前記エーテル結合を含む基である請求項1～請求項7のいずれか1項に記載の封止組成物。

物。

[請求項10] 前記2つのベンゼン環を連結する基が、下記構造式(1)で表される2価の連結基である請求項9に記載の封止組成物。

[化1]



(上記構造式(1)中、*は前記ベンゼン環との結合部を示す。)

[請求項11] 前記第1のエポキシ樹脂以外の樹脂であって、ベンゼン環と前記ベンゼン環のパラ位に直接又は連結基を介して結合する少なくとも2つのエポキシ基とを有し、前記ベンゼン環が前記2つのエポキシ基の結合位置のオルト位及びメタ位に置換基を有さない第3のエポキシ樹脂をさらに含有する請求項1～請求項10のいずれか1項に記載の封止組成物。

[請求項12] 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11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/JP2020/008300

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G 59/20 (2006.01)i; H01L 23/29 (2006.01)i; H01L 23/31 (2006.01)i; C08L 63/00 (2006.01)i; C08K 3/013 (2018.01)i

FI: C08G59/20; C08L63/00 Z; C08K3/013; 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; C08L63/00; 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)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-123847 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 22.04.2004 (2004-04-22) claims, paragraph [0039], examples	1-12
X	JP 2002-121260 A (NITTO DENKO CORP.) 23.04.2002 (2002-04-23) claims, paragraph [0064], examples	1-12
X	JP 9-176286 A (TOSHIBA CORP.) 08.07.1997 (1997-07- 08) claims, paragraph [0019], examples	1-12
X	JP 8-20628 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 23.01.1996 (1996-01-23) claims, paragraphs [0012] [0016], examples	1-12
X	JP 6-200126 A (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) 19.07.1994 (1994-07-19) claims, paragraph [0024], examples	1-12



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

01 May 2020 (01.05.2020)

Date of mailing of the international search report

19 May 2020 (19.05.2020)

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

Information on patent family members

International application no.

PCT/JP2020/008300

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2004-123847 A	22 Apr. 2004	(Family: none)	
JP 2002-121260 A	23 Apr. 2002	US 6555602 B1 claims, examples EP 1090942 A1 HK 1034726 A TW 257935 B KR 10-2001-0040021 A CN 1292401 A SG 97948 A	
JP 9-176286 A	08 Jul. 1997	(Family: none)	
JP 8-20628 A	23 Jan. 1996	(Family: none)	
JP 6-200126 A	19 Jul. 1994	(Family: none)	

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; C08L 63/00(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i FI: C08G59/20; C08L63/00 Z; C08K3/013; 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; C08L63/00; 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 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） CAplus/REGISTRY (STN)		
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 2004-123847 A（東レ株式会社）22.04.2004（2004-04-22） 特許請求の範囲，[0039]，実施例	1-12
X	JP 2002-121260 A（日東電工株式会社）23.04.2002（2002-04-23） 特許請求の範囲，[0064]，実施例	1-12
X	JP 9-176286 A（株式会社東芝）08.07.1997（1997-07-08） 特許請求の範囲，[0019]，実施例	1-12
X	JP 8-20628 A（住友ベークライト株式会社）23.01.1996（1996-01-23） 特許請求の範囲，[0012][0016]，実施例	1-12
X	JP 6-200126 A（新日鐵化学株式会社）19.07.1994（1994-07-19） 特許請求の範囲，[0024]，実施例	1-12
☐ 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 01.05.2020		国際調査報告の発送日 19.05.2020
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

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/JP2020/008300

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2004-123847	A	22.04.2004	(ファミリーなし)	
JP	2002-121260	A	23.04.2002	US 6555602 B1	
				CLAIMS, EXAMPLES	
				EP 1090942 A1	
				HK 1034726 A	
				TW 257935 B	
				KR 10-2001-0040021 A	
				CN 1292401 A	
				SG 97948 A	
JP	9-176286	A	08.07.1997	(ファミリーなし)	
JP	8-20628	A	23.01.1996	(ファミリーなし)	
JP	6-200126	A	19.07.1994	(ファミリーなし)	