

(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  
2009年12月23日(23.12.2009)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2009/154058 A1

- (51) 国際特許分類:  
C08L 63/00 (2006.01) C08L 23/24 (2006.01)  
C08K 3/36 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/059510
- (22) 国際出願日: 2009年5月25日(25.05.2009)
- (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 2008-161653 2008年6月20日(20.06.2008) JP  
特願 2008-161657 2008年6月20日(20.06.2008) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.)  
[JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 行政 慎一 (YUKIMASA, Shinichi) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP). 尾迫 康浩

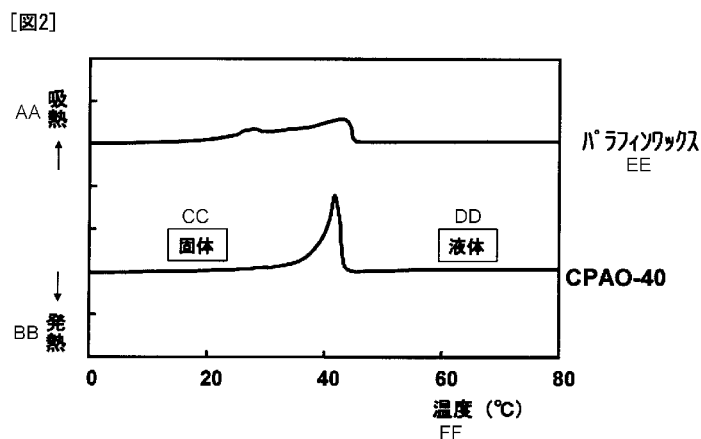
(OSAKO, Yasuhiro) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP).

- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目2番2号ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ

[続葉有]

(54) Title: EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL FOR SEMICONDUCTOR SEALING PURPOSES, EPOXY RESIN SHEET FOR SEMICONDUCTOR SEALING PURPOSES, AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) 発明の名称: 半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びそれらの製造方法



AA... ABSORPTION OF HEAT  
 BB... RELEASE OF HEAT  
 CC... SOLID  
 DD... LIQUID  
 EE... PARAFFIN WAX  
 FF... TEMPERATURE (CELSIUS)

(57) Abstract: Provided is an epoxy resin molding material for semiconductor sealing purposes, obtained by melt-milling at least (1-A) crystalline poly- $\alpha$ -olefin of melting point 30 to 90°C in a powder and/or spray-like form of particle diameter 75  $\mu$ m or below, (1-B) epoxy resin and (1-C) inorganic filler, the epoxy resin molding material containing from 0.2 to 5 mass % of said crystalline poly- $\alpha$ -olefin. Also provided are an excellent epoxy resin molding material for semiconductor sealing purposes having a very low failure rate (due to incomplete filling, wire displacement, void formation, semiconductor movement etc.) on molding the resin seal of a semiconductor element by transfer molding, and a method for producing same, wherein the epoxy resin composition for semiconductor sealing purposes is produced by spraying and adding the crystalline poly- $\alpha$ -olefin of melting point 30 to 90°C in the molten state. Furthermore, provided is an epoxy resin sheet for semiconductor sealing purposes having a sealing layer comprising sealing material wherein at least (2-A) crystalline poly- $\alpha$ -olefin of melting point 30 to 90°C in a powder and/or spray-like form of

particle diameter 50  $\mu$ m or below, (2-B) epoxy resin and (2-C) inorganic filler have been melt-milled and wherein from 0.2 to 5 mass% of said crystalline poly- $\alpha$ -olefin is included, and a protective film on one side or both sides of said sealing layer. Also provided are an excellent epoxy resin sheet for semiconductor sealing purposes having a very low failure rate (due to incomplete filling, wire displacement, void formation, semiconductor movement etc.) on molding the resin seal of a semiconductor element by press-bond molding, and a method for producing same, said method including a process

[続葉有]

WO 2009/154058 A1



(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, 添付公開書類:

GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL,  
NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF,  
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD,  
TG).

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

wherein crystalline poly- $\alpha$ -olefin of melting point 30 to 90°C is sprayed in the molten state and a sealing material is produced, and a process wherein crystalline poly- $\alpha$ -olefin of melting point from 30 to 90°C is coated or sprayed in the molten state onto a protective film and a peelable layer is formed.

(57) 要約: 少なくとも (1-A) 融点が 30~90°C の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径 75  $\mu$ m 以下の粉体及び/又は霧状体、(1-B) エポキシ樹脂、並びに (1-C) 無機充填材を溶融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂成形材料であって、該結晶性ポリアルファオレフィンを 0.2~5 質量%含有する半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、及び、融点が 30~90°C の結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融状態で噴霧して添加することを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法により、半導体素子のトランスファー成形による樹脂封止において、成形時の不良発生 (未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等) が極めて少ない優れた半導体封止用エポキシ樹脂成形材料及びその製造方法を提供する。また、少なくとも (2-A) 融点が 30~90°C の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径 50  $\mu$ m 以下の粉体及び/又は霧状体、(2-B) エポキシ樹脂、並びに (2-C) 無機充填材を溶融混練してなり、かつ、該結晶性ポリアルファオレフィンを 0.2~5 質量%含有する封止材料からなる封止層を有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材であって、さらに、該封止層の片面又は両面に保護フィルムを有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材、及び、融点が 30~90°C の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で噴霧して封止材料を製造する工程と、保護フィルムに融点が 30~90°C の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧して剥離層を形成する工程を含む半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法により、半導体素子の圧着成形による樹脂封止において、成形時の不良発生 (未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等) が極めて少ない優れた半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びその製造方法を提供する。

## 明 細 書

### 発明の名称：

半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びそれらの製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びそれらの製造方法に関する。さらに詳しくは、半導体装置をトランスファー成形法により樹脂封止する場合、特に、半導体装置を一括封止法により樹脂封止する場合に適した半導体封止用エポキシ樹脂成形材料及びその製造方法、並びに半導体装置を一括封止法により樹脂封止する場合に適した半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びその製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 情報通信分野に於ける急速な技術進歩に呼応して、電子機器の性能向上、軽薄短小化および低コスト化が強く求められている。この要求は、半導体を廉価な成形材料を用いてトランスファー成形により封止する大量生産方法を普及させた。この方法は、成形材料を金型内で熔融流動させ半導体を封止する方法である。現在は、多数の半導体を個別に樹脂封止する方法が主流である。近年、更なる合理化および低コスト化を進めるため、一括封止法が提案され一部で採用される動きとなっている。ここでいう一括封止法とは、半導体素子を整列搭載した子基板を樹脂封止する方法の総称であり、半導体業界ではMAP（モールドイングアレイパッケージ）と呼ばれる半導体装置の樹脂封止方法を示す。一括封止法は、従来の方法に比べて効率面で大きく優れる。例えば、子基板や成形材料の使用量を少なくできる、金型の寸法を小さく且つ種類を少なくできる等の利点がある。

[0003] しかしながら、一括封止法は様々な技術課題があり汎用化には至っていない。例えば、成形時に反りを生じ個別の半導体装置に切断することが難しい、外部電極接続用金線の間隙が狭い3DP（積層型パッケージ）では金線変

形が発生し易い、異種半導体を搭載するS i P（システムインパッケージ）では成形材料が細部へ充填し難い等の問題がある。すなわち、実用性や工業性の技術検討が未だに不十分で、問題の解決には至っていない。

[0004] 一括封止法においては、130℃以上の高温（例えば、150℃～180℃）で半導体搭載子基板上に成形材料を注入し硬化する。反りは、成形品が室温に冷却される時に収縮率の大きい樹脂側に曲がる現象である。この低減方法は、成形材料の熱膨張率を小さくし半導体に近づけるのが一般的である。具体的には、シリカ配合量を増やし樹脂成分（エポキシ樹脂、硬化剤）の軟化点を下げる手法が採用されている。しかし、成形材料の粘度上昇による成形不良（未充填、ボイドの発生）や樹脂成分の金型面への流出による作業性低下等の問題を抱えている。また、細部充填が重要な3DPやS i Pでは、成形材料の固形成分であるシリカを微粒化する必要があり成形材料の粘度上昇を避けることが難しい。この結果、金線変形や半導体移動といった不良が発生する。

[0005] 成形材料には、金型から成形品の取出しを円滑にするため離型剤が微量添加されている。この離型剤としては、主に長鎖脂肪酸エステル、長鎖脂肪酸金属塩および長鎖脂肪酸等が使用される。ポリオレフィン類を微量使用する例もあるが、半導体やリードフレームとの密着性を良くするため変性品（酸化型ポリエチエンワックス等）が用いられる。また、成形品の反りで生じる応力を緩和するため熱可塑性樹脂類を添加する例も報告されている。この場合、主に柔軟性に優れるが流動性で劣る熱可塑性エラストマーが用いられている。

[0006] 半導体のトランスファー成形による樹脂封止は、半導体装置の封止方法として最も普及している。半導体業界では、より合理的で効率的な一括封止法への期待は極めて高く、この方法が抱える問題の解決が強く要求されている。

[0007] 一方、上記問題を解決すべく、封止材料の流動距離を短くする成形方法が検討されている。封止材料を半導体基板全体に拡げ加熱熔融させた後に圧着

し更に加圧加熱し半導体装置を製造する方法（以下、圧着成形と称する）である。しかし、圧着成形を利用しても既存の封止材料を使用すると成形不良問題は改善されない。すなわち、実用性や工業性の技術検討が未だに不十分で問題の解決には至っていない。

[0008] 上述のように、半導体業界では、合理的で効率的な一括封止法への期待は極めて高いため、この方法が抱える問題の解決が強く要求されている。本発明者らは、半導体装置の更なる薄短小化および低コスト化を可能とする圧着成形による一括封止法に適した新しい封止材料を提供するものである。

[0009] 一般的に、剥離性フィルムは熱可塑性樹脂製フィルムの上に剥離層を形成している。例えば、易剥離性樹脂（ウレタン系、アクリル系、ポリエステル系、ポリビニルアルコール系の樹脂類）や離型剤（シリコーン系、フッ素系の樹脂類）で被膜している。フィルム材質は耐熱性や耐溶剤性等の要求水準に合ったものが使用されている。

[0010] 特許文献1：特開平6-211963号公報

特許文献2：特開平8-012850号公報

特許文献3：特開平10-204256号公報

特許文献4：特開2000-007885号公報

特許文献5：特開2000-281750号公報

特許文献6：特開2004-224849号公報

特許文献7：特開2004-300239号公報

特許文献8：特開平11-333869号公報

特許文献9：特開2002-212529号公報

特許文献10：特開2004-155853号公報

特許文献11：特開2006-117919号公報

特許文献12：特開2007-031585号公報

非特許文献1：日経マイクロデバイス 1984. 6. 11、P82-92

非特許文献2：電子材料2004年8月号、P44-70

非特許文献3：電子材料2003年3月号、P87-90

非特許文献4：電子材料2007年7月号別冊、P68-70

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

- [0011] 本発明は、上記のような状況下で、半導体素子のトランスファー成形による樹脂封止において、成形時の不良発生（未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等）が極めて少ない優れた半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、特に、トランスファー成形一括封止法に最適な半導体封止用エポキシ樹脂成形材料及びその製造方法を提供することを第一の目的とし、半導体素子の圧着成形による樹脂封止において、成形時の不良発生（未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等）が極めて少ない優れた半導体封止用エポキシ樹脂シート部材、特に、圧着成形一括封止法に最適な半導体封止用エポキシ樹脂シート部材及びその製造方法を提供することを第二の目的とするものである。

### 課題を解決するための手段

- [0012] 本発明者らは、鋭意研究を重ねた結果、好ましくは熔融状態で噴霧添加された特定の融点と粒径を有する結晶性ポリアルファオレフィン特定量と、エポキシ樹脂及び無機充填材を熔融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂成形材料により、上記第一の目的を達成し得ることと、好ましくは熔融状態で噴霧添加された特定の融点と粒径を有する結晶性ポリアルファオレフィンと、エポキシ樹脂及び無機充填材を熔融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂シート部材により、上記第二の目的を達成し得ることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち本発明は、

1. 少なくとも（1-A）融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径75μm以下の粉体及び／又は霧状体、（1-B）エポキシ樹脂、並びに（1-C）無機充填材を熔融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂成形材料であって、該結晶性ポリアルファオレフィンを0.2～5質量%含有する半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、

2. 前記結晶性ポリアルファオレフィンが、融点の $-15^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を開始し $+3^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を終了するものである上記1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、
  3. 前記(1-C)無機充填材がシリカ粉体である上記1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、
  4. 前記(1-C)無機充填材を80質量%以上含有する上記1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料、
  5. 融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融状態で噴霧して添加することを特徴とする上記1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法、
  6. 少なくとも(2-A)融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径 $50\mu\text{m}$ 以下の粉体及び/又は霧状体、(2-B)エポキシ樹脂、並びに(2-C)無機充填材を溶融混練してなり、かつ、該結晶性ポリアルファオレフィンを0.2~5質量%含有する封止材料からなる封止層を有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材であって、さらに、該封止層の片面又は両面に保護フィルムを有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材、
  7. 前記結晶性ポリアルファオレフィンが、融点の $-15^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を開始し $+3^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を終了するものである上記6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材、
  8. 前記保護フィルムの封止層側に、融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンを含む厚さ $0.1\sim 10\mu\text{m}$ の剥離層を有する上記6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材、及び
  9. 融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で噴霧して封止材料を製造する工程と、保護フィルムに融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧して剥離層を形成する工程とを含むことを特徴とする上記6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法、
- を提供するものである。

## 発明の効果

[0013] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は、半導体素子のトランスファー成形による樹脂封止において、成形時の不良発生（未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等）が極めて少ない、優れた半導体封止用エポキシ樹脂成形材料である。また、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材は、半導体素子の圧着成形による樹脂封止において、成形時の不良発生（未充填、金線変形、ボイド発生、半導体移動等）が極めて少ない、優れた半導体封止用エポキシ樹脂シート部材である。

## 図面の簡単な説明

[0014] [図1]一括封止型半導体装置の例を示す図である。

[図2]製造例1-3及び製造例2-5で得られた結晶性ポリアルファオレフィン及びパラフィンワックスの融解特性を示す図である。

[図3]製造例1-2～1-4並びに製造例2-2、2-5及び2-6で得られた融点の異なる結晶性ポリアルファオレフィンの融解特性を示す図である。

## 符号の説明

- [0015] 1：成形材料  
2：半導体  
3：金線  
4：子基板  
5：半導体装置

## 発明を実施するための最良の形態

[0016]（第一発明）

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は、少なくとも（1-A）融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径75μm以下の粉体及び／又は霧状体、（1-B）エポキシ樹脂、並びに（1-C）無機充填材を熔融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂成形材料であって、該結晶性ポリアルファオレフィンを0.2～5質量%含有する。



[0017] 上記（1-A）成分において用いられる融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィン（以下、結晶性ポリアルファオレフィンと略すことがある。）としては、上記規定を満たすものであれば特に限定されないが、炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体を1種以上重合して、あるいは、炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体を1種以上と他のオレフィンとを重合して得られたものが好ましい。

上記炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体の具体例としては、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、1-ヘンエイコセン、1-ドコセン、1-トリコセン、1-テトラコセン、1-ペンタコセン、1-ヘキサコセン、1-ヘプタコセン、1-オクタコセン、1-ノナコセン、1-トリアコンテン、1-ヘントリアコンテン、1-ドトリアコンテン、1-トリトリアコンテン、1-テトラトリアコンテン、1-ペンタトリアコンテン、1-ヘキサトリアコンテン、1-テトラコンテン、1-ペンタコンテン、1-ヘキサコンテン、1-ヘプタコンテン、1-オクタコンテン、1-ノナコンテン、1-オクタノナコンテン、1-ノナノナコンテン、1-ヘクテン、1-ヘンヘクテン、1-ドヘクテン、1-トリヘクテン等が挙げられ、これらのうち炭素数18～40のものが好ましく用いられる。

上記の $\alpha$ -オレフィン単量体は、1種を単独で用いることもできるが、2種以上の $\alpha$ -オレフィン単量体の混合物を用いることもできる。

また、2種以上の $\alpha$ -オレフィン単量体として、単量体の市販品同士のブレンド品や混合体の市販品を用いることが可能であり、例えば、リニアレン2024〔出光興産株式会社製：商品名〕等の市販品を用いることができる。

[0018] 本発明において、上記 $\alpha$ -オレフィン単量体を重合して、結晶性ポリアルファオレフィンを得るに際しては、触媒として、メタロセン化合物やTi-Mg系化合物などが好適に用いられる。

メタロセン化合物としては、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4, 5-ベンゾインデニル）ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4-フェニルインデニル）ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス（2-メチル-4-ナフチルインデニル）ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス（2-メチルインデニル）ジルコニウムジクロライド、エチレンビス（2-メチルインデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（3-トリメチルシリルメチルーインデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）（3-トリメチルシリルメチルーインデニル）（インデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（インデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（3-n-ブチルーインデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）（n-ブチルーインデニル）（インデニル）ジルコニウムジクロライド、（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（インデニル）ジルコニウムジクロライド、1, 1'-ジメチルシリレンビス（2-エチル-4-（2-フルオロ-4-ビフェニル）-4H-アズレニル）ジルコニウムジクロライド、及びジメチルシリレン（シクロペンタジエニル）（2, 4-ジメチル-4H-1-アズレニル）ジルコニウムジクロライド等のジルコニウムジクロライド化合物；並びにこれらのジルコニウムジクロライド化合物のジクロライドをジメチル或いはジベンジルに置換した化合物等のジルコニウム化合物；並びにこれらのジルコニウム化合物のジルコニウムをチタニウム又はハフニウムに置換したチタニウム化合物やハフニウム化合物等が挙げられる。これらのメタロセン化合物は、2種以上を併用してもよい。

また、この触媒として、通常、前記メタロセン化合物に加えて、トリイソブチルアルミニウム等の有機アルミニウム化合物、ジメチルアニリニウムテ

トラキスペンタフルオロフェニルボレート等の有機ホウ素化合物が用いられる。

[0019] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は、上記結晶性ポリアルファオレフィン $0.2 \sim 5$ 質量%、好ましくは $0.5 \sim 3$ 質量%含有することで、流動性に優れるものである。結晶性ポリアルファオレフィンの含有量が $0.2$ 質量%未満であると、流動性の向上効果が得られず、 $5$ 質量%を超えると成形品の強度低下等の問題が起こる。

上記結晶性ポリアルファオレフィンとしては、融点が $30 \sim 90^\circ\text{C}$ 、好ましくは $40 \sim 80^\circ\text{C}$ のものが用いられる。結晶性ポリアルファオレフィンの融点が $30^\circ\text{C}$ 未満であると粉碎時や打錠時に融着等の問題が発生するため、半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造時の作業性が悪化し、上記融点が $90^\circ\text{C}$ を超えると成形時の流動性が低下するため、未充填やボイドに起因する成形不良が発生しやすい。

また、上記結晶性ポリアルファオレフィンは、粒径が $75 \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $25 \mu\text{m}$ 以下の粉体及び／又は霧状体として用いられる。粒径が $75 \mu\text{m}$ を超えると、成形時に溶出する等の問題が発生する可能性がある。

上記(1-A)成分として、結晶性ポリアルファオレフィンの粉体を用いる場合には、例えば、原料の結晶性ポリアルファオレフィンをカッターミル等を用いて微粉碎し、所定の目開きの篩を用いることで、所望の粒径以下の粉体を得ることができる。また、結晶性ポリアルファオレフィンの霧状体を用いる場合には、結晶性ポリアルファオレフィンを溶融噴霧して、他の原料に添加することができるが、溶融噴霧時の噴霧条件(溶融温度、ノズル径、噴霧圧力等)を適宜調節することで粒径を任意に制御することができるので、霧状体の使用が好ましい。霧状の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径は、透明フィルムに結晶性ポリアルファオレフィンを噴霧しフィルム上の液滴の粒径を計測して確認することができる。

上記結晶性ポリアルファオレフィンは、融解温度幅が狭いものを用いることが好ましく、具体的には、融点の $-15^\circ\text{C}$ 以内で融解を開始し $+3^\circ\text{C}$ 以内

で融解を終了するものが好ましい。ここで、結晶性ポリアルファオレフィンが融解を開始する温度は、パーキンエルマー社製の示差走査型熱量計（DSC-7）を用い、試料を窒素雰囲気下190℃で5分保持した後、-30℃まで、5℃/分で降温させ、-30℃で5分保持した後、190℃まで10℃/分で昇温させる際の吸熱を開始する温度とし、融解を終了する温度は吸熱が完全に無くなる温度とした。

[0020] 一般に、結晶性ポリアルファオレフィンの競合として、同程度の融点を持つパラフィンワックスが知られている。両者の融解特性を比較すると、本願発明において用いられる結晶性ポリアルファオレフィンは結晶性であるため、上述のように融解温度幅が極めて狭いという特徴を有する。融点40℃程度の両者を比べると、パラフィンワックスは室温で融解を始めるため成形材料の室温加工には不適であるが、結晶性ポリアルファオレフィンは室温で固体のため全く問題がない。また、結晶性ポリアルファオレフィンは40℃になると直ちに融解し粘度が低下する。すなわち、本願発明において用いられる結晶性ポリアルファオレフィンは、融解温度幅が極めて狭いため、成形材料の製造加工時の作業性および成形時の流動性に優れるという特徴を有する。

[0021] 結晶性ポリアルファオレフィンは熱安定性に優れ、汎用のポリオレフィンワックスに比べて高温保管時の品質変化（酸化等）が少ない。通常、ポリオレフィンワックスは融点が100℃以上と高く、熱可塑性樹脂成形材料の離型剤として使用される。熱硬化性樹脂成形材料の場合には、離型性の効果はあまり期待できず密着性や粘着性を向上させる添加剤として利用される。この場合も予め変質させた酸化型製品を用い成形材料中での品質安定性の保持を図っている。すなわち、結晶性ポリアルファオレフィンは従来の離型剤として使用されるポリオレフィンワックスとは特性が異なる。

[0022] 上記（1-B）エポキシ樹脂としては、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、ビスフェノールS型エポキシ樹脂等（ビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールADジグ

リシジルエーテル、ビスフェノールSジグリシジルエーテル、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールGジグリシジルエーテル、テトラメチルビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールヘキサフルオロアセトンジグリシジルエーテル、ビスフェノールCジグリシジルエーテル等)、フェノールノボラック型エポキシ樹脂やクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレートなどの脂環式エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレート、ヒダントインエポキシ樹脂等の含窒素環エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、脂肪族系エポキシ樹脂、低吸水性硬化体タイプの主流であるビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロ環型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル等の多官能エポキシ樹脂、ビスフェノールAF型エポキシ樹脂などの含フッ素エポキシ樹脂、(メタ)アクリル酸グリシジルエステル等が挙げられる。これらは単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

(1-B) エポキシ樹脂の具体例としては、半導体封止材料用として市販されている各種製品が挙げられるが、例えば、日本化薬、大日本インキ化学工業、JER社製のエポキシ樹脂を挙げることができる。一括封止用成形材料では、エポキシ樹脂は多芳香環型低分子量品が主に用いられている。

上記(1-B) エポキシ樹脂は、常温で固形でも液状でもよいが、一般に、使用する(1-B) エポキシ樹脂の平均エポキシ当量は100~2000のものが好ましい。平均エポキシ当量が100より小さい場合には、半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の硬化体が脆くなる場合がある。また、平均エポキシ当量が2000を超える場合には、その硬化体のガラス転移温度( $T_g$ )が低くなる場合がある。

[0023] 上記(1-C) 無機充填材としては、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素、タルク、ケイ酸カルシウム、炭酸カルシウム、マイカ、クレイ、

チタンホワイト等の粉体、ガラス、カーボン等の短繊維が例示される。これらの中で熱膨張率と熱伝導率の点から、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素粉体が好ましく、特にシリカ粉体が好ましい。本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は流動性に優れるが、シリカ粉体を含有するものであると、流動性の向上効果が顕著に得られる。さらに、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の流動性を考えるとその形状は球状、又は球形と不定形の混合物が好ましい。上記シリカ粉体としては、例えば、半導体封止材料用として市販されている製品より任意に選択できる。具体的には、龍森、電気化学工業又はマイクロン社製のシリカ粉体を挙げることができ、粗粒を除去した熔射型球状品が主に用いられている。

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は（１－Ｃ）無機充填材を８０～９８質量％含有するものが好ましく、８５～９５質量％含有するものがより好ましい。

[0024] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は、本発明の効果に悪影響を与えない範囲において、エポキシ樹脂硬化剤、エポキシ樹脂硬化促進剤、改質剤、難燃剤、顔料、離型剤やその他の添加剤を含有してもよく、これらの成分としては、使用可能な特性を有しているものを適宜用いることができ、半導体封止材料用として市販されている製品等より任意に選択できる。これらの成分の具体例としては、大日本インキ化学工業、群栄化学工業、明和化成社製のエポキシ樹脂硬化剤、四国化成・北興化学工業・サンアプロ社製のエポキシ樹脂硬化促進剤を挙げることができる。一括封止用成形材料では、エポキシ樹脂硬化剤は多芳香環型低分子量品、エポキシ樹脂硬化促進剤はリン化合物が主に用いられている。

[0025] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料を製造する方法は、特に限定されないが、上記（１－Ａ）成分を均一分散することが好ましく、特に、以下に示す本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法によれば、（１－Ａ）成分を均一分散することができるため好ましい。

[0026] 本発明は、融点が３０～９０℃の結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融

状態で噴霧して添加する、上記半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法をも提供する。

結晶性ポリアルファオレフィン<sup>1</sup>を溶融状態で添加する際の溶融温度、ノズル径、噴霧圧力等の噴霧条件は、霧状の結晶性ポリアルファオレフィンが所望の粒径以下となる条件であれば特に限定されず、また、用いられる結晶性ポリアルファオレフィンの性状によっても異なるが、例えば、溶融温度50～200℃程度、ノズル径0.001～0.1mm程度、噴霧圧力0.1～10atm程度である。

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法においては、結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融状態で噴霧して添加するが、少なくとも(1-B)エポキシ樹脂及び(1-C)無機充填材を含む原料を混合しつつ、結晶性ポリアルファオレフィンを添加する方法が好ましく、結晶性ポリアルファオレフィン以外の全ての原料を混合しつつ、結晶性ポリアルファオレフィンを添加する方法が特に好ましい。

[0027] (第二発明)

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材は、少なくとも(2-A)融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径50 $\mu$ m以下の粉体及び／又は霧状体、(2-B)エポキシ樹脂、並びに(2-C)無機充填材を溶融混練してなり、かつ、該結晶性ポリアルファオレフィンを0.2～5質量%含有する封止材料からなる封止層を有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材であって、さらに、該封止層の片面又は両面に保護フィルムを有する。

[0028] 上記融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィン(以下、結晶性ポリアルファオレフィンと略すことがある。)としては、上記規定を満たすものであれば特に限定されないが、炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体を1種以上重合して、あるいは、炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体を1種以上と他のオレフィンとを重合して得られたものが好ましい。

上記炭素数10以上の $\alpha$ -オレフィン単量体の具体例としては、1-デセ

ン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、1-ヘンエイコセン、1-ドコセン、1-トリコセン、1-テトラコセン、1-ペンタコセン、1-ヘキサコセン、1-ヘプタコセン、1-オクタコセン、1-ノナコセン、1-トリアコンテン、1-ヘントリアコンテン、1-ドトリアコンテン、1-トリトリアコンテン、1-テトラトリアコンテン、1-ペンタトリアコンテン、1-ヘキサトリアコンテン、1-テトラコンテン、1-ペンタコンテン、1-ヘキサコンテン、1-ヘプタコンテン、1-オクタコンテン、1-ノナコンテン、1-オクタノナコンテン、1-ノナノナコンテン、1-ヘクテン、1-ヘンヘクテン、1-ドヘクテン、1-トリヘクテン等が挙げられ、これらのうち炭素数18~40のものが好ましく用いられる。

上記の $\alpha$ -オレフィン単量体は、1種を単独で用いることもできるが、2種以上の $\alpha$ -オレフィン単量体の混合物を用いることもできる。

また、2種以上の $\alpha$ -オレフィン単量体として、単量体の市販品同士のブレンド品や混合体の市販品を用いることが可能であり、例えば、リニアレン2024〔出光興産株式会社製：商品名〕等の市販品を用いることができる。

[0029] 本発明において、上記 $\alpha$ -オレフィン単量体を重合して、結晶性ポリアルファオレフィンを得るに際しては、触媒として、メタロセン化合物やTi-Mg系化合物などが好適に用いられる。

メタロセン化合物としては、ジメチルシリレンビス(2-メチル-4,5-ベンゾインデニル)ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス(2-メチル-4-ナフチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、ジメチルシリレンビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、エチレンビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、(1,2'-ジメチルシリレン)(2,1'-ジメチルシリレン)ビス



(3-トリメチルシリルメチルーインデニル) ジルコニウムジクロライド、(1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) (3-トリメチルシリルメチルーインデニル) (インデニル) ジルコニウムジクロライド、(1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) ビス(インデニル) ジルコニウムジクロライド、(1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) ビス(3-n-ブチルーインデニル) ジルコニウムジクロライド、(1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) (n-ブチルーインデニル) (インデニル) ジルコニウムジクロライド、(1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) ビス(インデニル) ジルコニウムジクロライド、1, 1'-ジメチルシリレンビス(2-エチルー4-(2-フルオロ-4-ビフェニル)-4H-アズレニル) ジルコニウムジクロライド、及びジメチルシリレン(シクロペンタジエニル) (2, 4-ジメチルー4H-1-アズレニル) ジルコニウムジクロライド等のジルコニウムジクロライド化合物；並びにこれらのジルコニウムジクロライド化合物のジクロライドをジメチル或いはジベンジルに置換した化合物等のジルコニウム化合物；並びにこれらのジルコニウム化合物のジルコニウムをチタニウム又はハフニウムに置換したチタニウム化合物やハフニウム化合物等が挙げられる。これらのメタロセン化合物は、2種以上を併用してもよい。

また、この触媒として、通常、前記メタロセン化合物に加えて、トリイソブチルアルミニウム等の有機アルミニウム化合物、ジメチルアニリニウムテトラキスペンタフルオロフェニルボレート等の有機ホウ素化合物が用いられる。

[0030] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材に用いられる封止材料は、上記結晶性ポリアルファオレフィン $0.2 \sim 5$ 質量%、好ましくは $0.5 \sim 3$ 質量%含有することで、流動性に優れるものである。結晶性ポリアルファオレフィンの含有量が $0.2$ 質量%未満であると、流動性の向上効果が得られず、 $5$ 質量%を超えると成形品の強度低下等の問題が起こる。

上記結晶性ポリアルファオレフィンとしては、融点が30～90℃、好ましくは40～80℃のものが用いられる。結晶性ポリアルファオレフィンの融点が30℃未満であると粉碎時や打錠時に融着等の問題が発生するため、半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造時の作業性が悪化し、また、結晶性ポリアルファオレフィンが封止材料より分離溶出する。上記融点が90℃を超えると成形時の流動性が低下するため、封止材料の品質バラツキ等の問題が起こる可能性がある。

また、上記結晶性ポリアルファオレフィンは、粒径が50μm以下、好ましくは20μm以下の粉体及び／又は霧状体として用いられる。粒径が50μmを超えると、成形時に溶出する等の問題が発生する可能性がある。

上記(2-A)成分として結晶性ポリアルファオレフィンの粉体を用いる場合には、例えば、原料のポリアルファオレフィンをカッターミル等を用いて微粉碎し、所定の目開きの篩を用いることで、所望の粒径以下の粉体を得ることができる。また、結晶性ポリアルファオレフィンの霧状体を用いる場合には、結晶性ポリアルファオレフィンを溶融噴霧して添加するが、溶融噴霧時の噴霧条件(溶融温度、ノズル径、噴霧圧力等)を適宜調節することで粒径を任意に制御することができるので霧状体の使用が好ましい。霧状の(2-A)結晶性ポリアルファオレフィンの粒径は透明フィルムに結晶性ポリアルファオレフィンを噴霧しフィルム上の液滴の粒径を計測して確認することができる。

上記(2-A)結晶性ポリアルファオレフィンは、融解温度幅が狭いものを用いることが好ましく、具体的には、融点の-15℃以内で融解を開始し+3℃以内で融解を終了するものが好ましい。ここで、(2-A)結晶性ポリアルファオレフィンが融解を開始する温度は、パーキンエルマー社製の示差走査型熱量計(DSC-7)を用い、試料を窒素雰囲気下190℃で5分保持した後、-30℃まで、5℃/分で降温させ、-30℃で5分保持した後、190℃まで10℃/分で昇温させる際の吸熱を開始する温度とし、融解を終了する温度は吸熱が完全に無くなる温度とした。

[0031] 一般に、結晶性ポリアルファオレフィンの競合として、同程度の融点を持つパラフィンワックスが知られている。両者の融解特性を比較すると、本願発明において用いられる結晶性ポリアルファオレフィンは結晶性であるため、上述のように融解温度幅が極めて狭いという特徴を有する。融点40℃程度の両者を比べると、パラフィンワックスは室温で融解を始めるため成形材料の室温加工には不適であるが、結晶性ポリアルファオレフィンは室温で固体のため全く問題がない。また、結晶性ポリアルファオレフィンは40℃になると直ちに融解し粘度が低下する。すなわち、本願発明において用いられる結晶性ポリアルファオレフィンは、融解温度幅が極めて狭いため、成形材料の製造加工時の作業性および成形時の流動性に優れるという特徴を有する。

[0032] 結晶性ポリアルファオレフィンは熱安定性に優れ、汎用のポリオレフィンワックスに比べて高温保管時の品質変化（酸化等）が少ない。通常、ポリオレフィンワックスは融点が100℃以上と高く、熱可塑性樹脂成形材料の離型剤として使用される。熱硬化性樹脂成形材料の場合には、離型性の効果はあまり期待できず密着性や粘着性を向上させる添加剤として利用される。この場合も予め変質させた酸化型製品を用い成形材料中での品質安定性の保持を図っている。すなわち、結晶性ポリアルファオレフィンは従来の離型剤として使用されるポリオレフィンワックスとは特性が異なる。

[0033] 上記（2-B）エポキシ樹脂としては、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、ビスフェノールS型エポキシ樹脂等（ビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールADジグリシジルエーテル、ビスフェノールSジグリシジルエーテル、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールGジグリシジルエーテル、テトラメチルビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールヘキサフルオロアセトンジグリシジルエーテル、ビスフェノールCジグリシジルエーテル等）、フェノールノボラック型エポキシ樹脂やクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、3,4-エポキシシクロヘキ

シルメチルー 3, 4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレートなどの脂環式エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレート、ヒダントインエポキシ樹脂等の含窒素環エポキシ樹脂、水添ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、脂肪族系エポキシ樹脂、低吸水性硬化体タイプの主流であるビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロ環型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル等の多官能エポキシ樹脂、ビスフェノール A F 型エポキシ樹脂などの含フッ素エポキシ樹脂、(メタ)アクリル酸グリシジルエステル等が挙げられる。これらは単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

(2-B) エポキシ樹脂の具体例としては、半導体封止材料用として市販されている各種製品が挙げられるが、例えば、日本化薬、大日本インキ化学工業、JER社製のエポキシ樹脂を挙げることができる。一括封止用成形材料では、エポキシ樹脂は多芳香環型低分子量品が主に用いられている。

上記(2-B) エポキシ樹脂は、常温で固形でも液状でもよいが、一般に、使用する(2-B) エポキシ樹脂の平均エポキシ当量は100~2000のものが好ましい。平均エポキシ当量が100より小さい場合には、半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の硬化体が脆くなる場合がある。また、平均エポキシ当量が2000を超える場合には、その硬化体のガラス転移温度( $T_g$ )が低くなる場合がある。

[0034] 上記(2-C) 無機充填材としては、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素、タルク、ケイ酸カルシウム、炭酸カルシウム、マイカ、クレイ、チタンホワイト等の粉体、ガラス、カーボン等の短繊維が例示される。これらの中で熱膨張率と熱伝導率の点から、シリカ、アルミナ、窒化ケイ素、炭化ケイ素粉体が好ましく、特にシリカ粉体が好ましい。本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材に用いられる封止材料は流動性に優れるが、シリカ粉体を含有するものであると、流動性の向上効果が顕著に得られる。さらに、上記封止材料の流動性を考えるとその形状は球状、又は球形と不定形の

混合物が好ましい。上記シリカとしては、例えば、半導体封止材料用として市販されている製品より任意に選択できる。具体的には、龍森、電気化学工業又はマイクロン社製のシリカ粉体を挙げることができ、粗粒を除去した熔射型球状品が主に用いられている。

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材に用いられる封止材料は（2-C）無機充填材を80～98質量%含有するものが好ましく、85～95質量%含有するものがより好ましい。特に、封止材料が、粒径50 $\mu$ m以下のシリカを85質量%以上含有する場合には、従来では封止材料の粘度が極めて高くなり半導体装置の樹脂封止が困難であったところ、本願発明において用いられる封止材料は結晶性ポリアルファオレフィンを含むため、流動性に優れるという顕著な効果が発現する。

[0035] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材に用いられる封止材料は、本発明の効果に悪影響を与えない範囲において、エポキシ樹脂硬化剤、エポキシ樹脂硬化促進剤、改質剤、難燃剤、顔料、離型剤やその他の添加剤を含有してもよく、これらの成分としては、使用可能な特性を有しているものを適宜用いることができ、半導体封止材料用として市販されている製品等より任意に選択できる。これらの成分の具体例としては、大日本インキ化学工業、群栄化学工業、明和化成社製のエポキシ樹脂硬化剤、四国化成・北興化学工業・サンアプロ社製のエポキシ樹脂硬化促進剤を挙げるができる。一括封止用成形材料では、エポキシ樹脂硬化剤は多芳香環型低分子量品、エポキシ樹脂硬化促進剤はリン化合物が主に用いられている。

[0036] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材は、封止層の片面又は両面に保護フィルムを有する。上記保護フィルムとしては、高純度で圧着成形に耐える材質のものならば特に限定されず、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、液晶ポリマー、ポリアミド（PI）等を挙げるができる。また、剥離性は特に必要としないので、品質とコストを勘案し任意に選択することができる。

上記保護フィルムは、封止層側の面に0.1～10 $\mu$ m程度の厚みで結晶

性ポリアルファオレフィンを含む剥離層が設けられていることが好ましく、結晶性ポリアルファオレフィンからなる剥離層が設けられていることがより好ましい。剥離層の厚みが0.1  $\mu\text{m}$ 以上であると、封止層からの保護フィルムの剥離が容易となり、10  $\mu\text{m}$ 以下であると、成形品の外観不良等の問題が起こりにくい。

[0037] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材に用いられる封止材料を製造する方法は特に限定されないが、結晶性ポリアルファオレフィンを均一分散することが好ましいため、結晶性ポリアルファオレフィンを微粉碎して用いる方法や、溶融状態で噴霧する方法が挙げられるが、以下に示す本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法における封止材料を製造する工程によれば、結晶性ポリアルファオレフィンを均一分散することができるため特に好ましい。

また、保護フィルム上に、結晶性ポリアルファオレフィンを用いて剥離層を形成する方法も、保護フィルムの封止層側の面に結晶性ポリアルファオレフィンが均一に分散される方法であれば特に限定されず、結晶性ポリアルファオレフィンを溶媒に溶解し、得られた溶液を保護フィルムに塗布した後、溶媒を乾燥除去する方法等を用いることもできるが、以下に示す本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法における結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧する工程によれば、結晶性ポリアルファオレフィンを均一に分散可能であり、簡便であり、かつ、異物混入の問題も起こりにくい。

[0038] 本発明はまた、融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で噴霧して封止材料を製造する工程と、保護フィルムに融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧して剥離層を形成する工程とを含む、上記半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法をも提供する。

結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で噴霧する工程における溶融温度、ノズル径、噴霧圧力等の噴霧条件は、結晶性ポリアルファオレフィンの

霧状体の粒径が50 $\mu$ m以下となる条件であれば特に限定されず、また、用いられる結晶性ポリアルファオレフィンの性状によっても異なるが、例えば、溶融温度50～200 $^{\circ}$ C程度、ノズル径0.001～0.1mm程度、噴霧圧力0.1～10atm程度である。

上記工程においては、結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融状態で噴霧して封止材料を製造するが、少なくとも(2-B)エポキシ樹脂及び(2-C)無機充填材を含む原料を混合しつつ、結晶性ポリアルファオレフィンを噴霧して添加する方法が好ましく、結晶性ポリアルファオレフィン以外の全ての原料を混合しつつ、結晶性ポリアルファオレフィンを噴霧して添加する方法が特に好ましい。

[0039] 保護フィルムに結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧する工程では、例えば、保護フィルム上に、溶融状態の結晶性ポリアルファオレフィンを、ナイフコーター、バーコーター又はロールコーティング等の公知の方法により塗布したり、スプレー等の公知の方法により噴霧したりして、所望の膜厚となるように塗布することができる。

[0040] 図1は、半導体素子を一括封止法により樹脂封止した半導体装置の例(3DP、SiP)を模式図で示したものである。1は成形材料、2は半導体素子、3は金線、4は子基板、5は半導体装置である。この図の3DPは、半導体を3個積層し金線で子基板と電気接続した構造である。SiPは、左から半導体、反転型半導体、半導体装置を子基板に搭載したものである。これら3DPおよびSiPは、半導体部品間の間隙が非常に狭いので、高粘度の成形材料を注入した場合、成形時に不良(金線変形、未充填、半導体移動等)が発生する可能性が高い。

## 実施例

[0041] 以下、本発明の成形材料およびその製造方法に関して、実施例及び比較例を示して具体的に説明するが、本発明はこれらに何ら制限されるものではない。

[0042] 製造例1-1((1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリ

レン)ービス(3-トリメチルシリルメチルインデン)ジルコニウムジクロライドの製造)

シュレンク瓶に(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ービス(インデン)のリチウム塩 3.0 g (6.97ミリモル)をTHF(テトラヒドロフラン)50ミリリットルに溶解し-78°Cに冷却した。

ヨードメチルトリメチルシラン2.1ミリリットル(14.2ミリモル)をゆっくりと滴下し室温で12時間攪拌した。

溶媒を留去しエーテル50ミリリットルを加えて飽和塩化アンモニウム溶液で洗浄した。

分液後、有機相を乾燥し溶媒を除去して(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ービス(3-トリメチルシリルメチルインデン)を3.04 g (5.88ミリモル)を得た(収率84%)。

次に、窒素気流下においてシュレンク瓶に前記で得られた(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ービス(3-トリメチルシリルメチルインデン)を3.04 g (5.88ミリモル)とエーテル50ミリリットルとを入れた。

-78°Cに冷却しn-BuLiのヘキサン溶液(1.54モル/L、7.6ミリリットル(11.7ミリモル))を滴下した。

温度を室温とし12時間攪拌後、エーテルを留去した。

得られた固体をヘキサン40ミリリットルで洗浄することによりリチウム塩をエーテル付加体として3.06 g (5.07ミリモル)を得た(収率73%)。

$^1\text{H-NMR}$  (90MHz、THF- $d_8$ )による測定の結果は、 $\delta$ : 0.04 (s、18H、トリメチルシリル); 0.48 (s、12H、ジメチルシリレン); 1.10 (t、6H、メチル); 2.59 (s、4H、メチレン); 3.38 (q、4H、メチレン)、6.2-7.7 (m、8H、Ar-H)であった。



[0043] 窒素気流下で得られたリチウム塩をトルエン50ミリリットルに溶解した。

−78℃に冷却し、ここへ予め−78℃に冷却した四塩化ジルコニウム1.2g(5.1ミリモル)のトルエン(20ミリリットル)懸濁液を滴下した。

滴下後、室温で6時間攪拌した。その反応溶液の溶媒を留去した。

得られた残渣をジクロロメタンにより再結晶化することにより、(1,2'-ジメチルシリレン)(2,1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを0.9g(1.33ミリモル)を得た(収率26%)。

<sup>1</sup>H-NMR(90MHz、CDCl<sub>3</sub>)による測定の結果は、δ:0.0(s、18H、トリメチルシリル);1.02,1.12(s、12H、ジメチルシリレン);2.51(dd、4H、メチレン);7.1-7.6(m,8H,Ar-H)であった。

[0044] 製造例1-2(CPAO-70の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、炭素数26及び28のα-オレフィンを含む混合物(C26:56.9質量%、C28:39.4質量%)400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110℃に昇温した。ついで攪拌しながら、製造例1で得られた(1,2'-ジメチルシリレン)(2,1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素を0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級αオレフィン重合体(CPAO-70)を195.0g得た。

[0045] 上記CPAO-70について、パーキンエルマー社製の示差走査型熱量計(DSC-7)を用い、試料を窒素雰囲気下190℃で5分保持した後、一

30°Cまで、5°C/分で降温させ、-30°Cで5分保持した後、190°Cまで10°C/分で昇温させることにより得られた融解吸熱カーブから観測されるピークトップを測定し、融点を求めたところ、70°Cであった。また、融解を開始する温度は55°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、71°Cであった。

[0046] 製造例 1-3 (CPAO-40の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、1-オクタデセン(C18) 400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例1で得られた(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体(CPAO-40)を211.0g得た。

また、上記CPAO-40について、製造例1-2と同様にして融点を求めたところ、42°Cであり、融解を開始する温度を求めたところ、30°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、43°Cであった。

[0047] 製造例 1-4 (CPAO-28の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、1-ヘキサデセン(C16) 400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例1-1で得られた(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体(CPAO-28)を205.0g得

た。

また、上記CPAO-28について、製造例1-2と同様にして融点を求めたところ、28℃であり、融解を開始する温度を求めたところ、15℃であり、融解を終了する温度を求めたところ、30℃であった。

[0048] 図2に製造例1-3で得られた結晶性ポリアルファオレフィンとパラフィンワックス（日本精蠟株式会社製：パラフィンワックス115）の融解特性を示す。図2に示されている、製造例3で得られた融点42℃の結晶性ポリアルファオレフィン（CPAO-40）とパラフィンワックスの融解特性を比べると、結晶性ポリアルファオレフィンの融解温度幅が狭いことが一目瞭然である。図3は融点の異なる結晶性ポリアルファオレフィン（28℃、40℃、70℃）の融解特性を示す図である。融解温度幅が狭いという特徴は融点が変わっても同じである。

[0049] 実施例1-1

半導体封止用エポキシ樹脂成形材料基準で85質量%の球状シリカ粉体（MSR-8030、株式会社龍森製、平均粒径12 $\mu$ m）、エポキシ樹脂（NC-3000、日本化薬株式会社製）8質量%、エポキシ樹脂硬化剤（カヤハードGPH、日本化薬株式会社製）4質量%、エポキシ樹脂硬化促進剤（TPP-K、北興化学工業株式会社製）0.5質量%、改質剤（KBM303、信越化学工業株式会社製）0.3質量%、離型剤（ヘキストS、ヘキスト社製）0.2質量%をヘンシェル型混合機に入れ、製造例1-2で得られたCPAO-70 2質量%（融点70℃）を、溶融噴霧しながら攪拌混合した。噴霧されたCPAO-70の粒径を、透明フィルムにCPAO-70を噴霧しフィルム上の液滴の粒径を計測したところ、25 $\mu$ m以下であった。次に、混合物を押出機（SK1、株式会社栗本鐵工所製）で混練した後、冷却・粉碎・打錠の加工を経て半導体封止用エポキシ樹脂成形材料を得た。得られた材料で模擬半導体部品（チップサイズ10mm $\times$ 10mmの176pin LQFP、外形24mm $\times$ 24mm $\times$ 1.4mm）をトランスファ成形（金型温度165℃、硬化時間3分）により封止し、外観、充填性及

び金線変形について下記の方法で評価した。なお、外観、充填性、金線変形評価に用いた模擬半導体部品は、片面銅箔基板に半導体を整列配置する擬似回路配線を加工し、半導体は搭載せずに半導体相当部と外部接続用端子部を金線で結線したものである。

[0050] (外観)

成形により封止された模擬半導体部品の外観を顕微鏡で観察し、以下の基準で評価した。

◎： 10  $\mu$ m以上の外観異常（割れ・欠け・へこみ・異物等）が無い。

○： 10～30  $\mu$ mの外観異常は2個以下／成形品であり、かつ、30  $\mu$ m以上の外観異常は無い。

△： 10～30  $\mu$ mの外観異常は5個以下／成形品であり、かつ、30  $\mu$ m以上の外観異常は無い。

×： 10～30  $\mu$ mの外観異常は6個以上／成形品であるか、又は、30  $\mu$ m以上の外観異常が有る。

(充填性)

成形により封止された模擬半導体部品を0.1mm研磨しその表面を顕微鏡で観察し、外観と同様の基準で評価した。

◎： 10  $\mu$ m以上の外観異常（割れ・欠け・へこみ・異物等）が無い。

○： 10～30  $\mu$ mの外観異常は2個以下／成形品であり、かつ、30  $\mu$ m以上の外観異常は無い。

△： 10～30  $\mu$ mの外観異常は5個以下／成形品であり、かつ、30  $\mu$ m以上の外観異常は無い。

×： 10～30  $\mu$ mの外観異常は6個以上／成形品であるか、又は、30  $\mu$ m以上の外観異常が有る。

(金線変形)

成形により封止された模擬半導体部品を軟X線装置で観察し、以下の基準で評価した。

無： 金線変形率（金線流れ幅/金線長さ、%表示）< 2%

小： 金線変形率 < 5 %

大： 金線変形率  $\geq$  5 %

[0051] 実施例 1-2

製造例 1-2 で得られた CPAO-70 に代えて、製造例 1-3 で得られた CPAO-40 (融点 42°C) を使用した以外は実施例 1-1 と同様にして半導体封止用エポキシ樹脂成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。

[0052] 実施例 1-3

実施例 1-1 における配合量を変更し、球状シリカ粉体 81 質量%、エポキシ樹脂 11 質量%及びエポキシ樹脂硬化剤 5 質量%とした以外は実施例 1-1 と同様にして半導体封止用エポキシ樹脂成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。

[0053] 実施例 1-4

CPAO-70 の溶融噴霧を行わず、CPAO-70 をカッターミルで粉碎し、円形篩 (目開き 50  $\mu$ m) を通過させて微粉碎品を得て、これを他の成分と同時に混合機に投入した以外は実施例 1-1 と同様にして半導体封止用エポキシ樹脂成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。

[0054] 比較例 1-1

結晶性ポリアルファオレフィンを使用せずに球状シリカ粉体の量を 87 質量%に変更し、その他は実施例 1-1 と同様にして成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。得られた成形材料は溶融粘度が高く、材料化時の作業性および成形時の流動性も非常に悪かった。

[0055] 比較例 1-2

製造例 1-2 で得られた CPAO-70 に代えて製造例 1-4 で得られた CPAO-28 (融点 28°C) を使用した以外は実施例 1-1 と同様にして成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。

[0056] 比較例 1-3

CPAO-70の微粉碎品に代えて、粗粒を使用した以外は実施例1-4と同様にして成形材料を製造し、外観、充填性及び金線変形について評価した。粗粒としては、実施例1-4と同様の方法でCPAO-70を粉碎し、円形篩（目開き75 $\mu$ m）の篩網上に残ったものを使用した。

[0057] 比較例1-4

CPAO-70の添加量を6質量%に増加した以外は実施例1-1と同様にして成形材料を製造した。得られた成形材料の硬化物は、強度が局部的に不足し正常な成形品が得られなかった。よって、外観、充填性及び金線変形は評価できなかった。

[0058] 比較例1-5

実施例1-1において、CPAO-70に代えてパラフィンワックス（日本精蠟株式会社製、パラフィンワックス115）を用いた以外は実施例1-1と同様にして材料化を行った。得られた成形材料は、べたつきがひどく正常な形状の成形品が得られなかったため、外観、充填性及び金線変形は評価できなかった。

[0059] 実施例1-1～1-4および比較例1-1～1-5の内容と結果を第1表に示す。実施例1-1～1-4および比較例1-1～1-5で得られた成形材料の外観、充填性及び金線変形を比較すると、実施例1-1～1-5の評価結果が抜群に優れることがわかる。また、比較例1-2および1-3の成形材料は、外観、充填性及び金線変形評価時のバラツキが大きかった。

[0060]

[表1]

第1表

組成 (質量%)	実施例					比較例				
	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5
(1-A)	2		2	2				2	6	
結晶性		2								
ポリアルファオレフィン						2				
CPAO特性	70	42	70	70		-	28	70	70	-
融点 (°C)										
粒径 (μm)	<25	<25	<25	<50		-	<25	>75	<25	-
パラフィンワックス										2
(1-B) エポキシ樹脂	8	8	11	8		8	8	8	8	8
(1-C) 球状シリカ粉体	85	85	81	85		87	85	85	81	85
エポキシ樹脂硬化剤	4	4	5	4		4	4	4	4	4
エポキシ樹脂硬化促進剤	0.5	0.5	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
改質剤	0.3	0.3	0.3	0.3		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
離型剤	0.2	0.2	0.2	0.2		0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
充填性	◎	◎	◎	○		×	○	△	-	-
金線変形	無	無	無	無		大	小	小	-	-
外觀	◎	○	◎	○		×	×	△	-	-

[0061] 製造例 2-1 ((1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) -ビス (3-トリメチルシリルメチルインデン) ジルコニウムジクロライドの製造)

シュレンク瓶に (1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) -ビス (インデン) のリチウム塩 3.0 g (6.97ミリモル) を THF (テトラヒドロフラン) 50ミリリットルに溶解し -78°C に冷却した。

ヨードメチルトリメチルシラン 2.1ミリリットル (14.2ミリモル) をゆっくりと滴下し室温で 12時間攪拌した。

溶媒を留去しエーテル 50ミリリットルを加えて飽和塩化アンモニウム溶液で洗浄した。

分液後、有機相を乾燥し溶媒を除去して (1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) -ビス (3-トリメチルシリルメチルインデン) を 3.04 g (5.88ミリモル) を得た (収率 84%)。

次に、窒素気流下においてシュレンク瓶に前記で得られた (1, 2'-ジメチルシリレン) (2, 1'-ジメチルシリレン) -ビス (3-トリメチルシリルメチルインデン) を 3.04 g (5.88ミリモル) とエーテル 50ミリリットルとを入れた。

-78°C に冷却し *n*-BuLi のヘキサン溶液 (1.54モル/L、7.6ミリリットル (11.7ミリモル)) を滴下した。

温度を室温とし 12時間攪拌後、エーテルを留去した。

得られた固体をヘキサン 40ミリリットルで洗浄することによりリチウム塩をエーテル付加体として 3.06 g (5.07ミリモル) を得た (収率 73%)。

<sup>1</sup>H-NMR (90MHz、THF-d<sub>8</sub>) による測定の結果は、 $\delta$ : 0.04 (s、18H、トリメチルシリル); 0.48 (s、12H、ジメチルシリレン); 1.10 (t、6H、メチル); 2.59 (s、4H、メチレン); 3.38 (q、4H、メチレン)、6.2-7.7 (m、8H、Ar-



H)であった。

[0062] 窒素気流下で得られたリチウム塩をトルエン50ミリリットルに溶解した。

−78°Cに冷却し、ここへ予め−78°Cに冷却した四塩化ジルコニウム1.2g(5.1ミリモル)のトルエン(20ミリリットル)懸濁液を滴下した。

滴下後、室温で6時間攪拌した。その反応溶液の溶媒を留去した。

得られた残渣をジクロロメタンにより再結晶化することにより、(1,2'-ジメチルシリレン)(2,1'-ジメチルシリレン)-ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを0.9g(1.33ミリモル)を得た(収率26%)。

<sup>1</sup>H-NMR(90MHz、CDCl<sub>3</sub>)による測定の結果は、 $\delta$ : 0.0(s、18H、トリメチルシリル); 1.02, 1.12(s、12H、ジメチルシリレン); 2.51(dd、4H、メチレン); 7.1-7.6(m, 8H, Ar-H)であった。

[0063] 製造例2-2(CPAO-70の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、Chevron Phillips Chemical社製アルファオレフィンC26-28 400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例1で得られた(1,2'-ジメチルシリレン)(2,1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素を0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体(CPAO-70)を195g得た。

[0064] 上記CPAO-70について、パーキンエルマー社製の示差走査型熱量計(DSC-7)を用い、試料を窒素雰囲気下190°Cで5分保持した後、一

30°Cまで、5°C/分で降温させ、-30°Cで5分保持した後、190°Cまで10°C/分で昇温させることにより得られた融解吸熱カーブから観測されるピークトップを測定し、融点を求めたところ、70°Cであった。また、融解を開始する温度は、55°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、71°Cであった。

[0065] 製造例2-3 (CPAO-60の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、Chevron Phillips Chemical社製アルファオレフィンC20-24 400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例1で得られた(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素を0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体(CPAO-60)を203g得た。

また、上記CPAO-60について、製造例2-2と同様にして融点を求めたところ、60°Cであり、融解を開始する温度を求めたところ、45°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、61°Cであった。

[0066] 製造例2-4 (CPAO-50の製造)

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、出光興産(株)製「リニアレン2024」400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例2-1で得られた(1, 2'-ジメチルシリレン)(2, 1'-ジメチルシリレン)ビス(3-トリメチルシリルメチルインデニル)ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素0.2MPa導入し、240分間重合した。

重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体（CPAO-50）を210g得た。

また、上記CPAO-50について、製造例2-2と同様にして融点を求めたところ、52°Cであり、融解を開始する温度を求めたところ、37°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、53°Cであった。

[0067] 製造例2-5（CPAO-40の製造）

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、1-オクタデセン（C18）400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例2-1で得られた（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（3-トリメチルシリルメチルインデニル）ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥することにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体（CPAO-40）を211g得た。

また、上記CPAO-40について、製造例2-2と同様にして融点を求めたところ、42°Cであり、融解を開始する温度を求めたところ、30°Cであり、融解を終了する温度を求めたところ、45°Cであった。

[0068] 製造例2-6（CPAO-28の製造）

加熱乾燥した1リットルオートクレーブに、1-ヘキサデセン（C16）400ミリリットル、トリイソブチルアルミニウム0.5ミリモルを加え、110°Cに昇温した。ついで攪拌しながら、製造例2-1で得られた（1, 2'-ジメチルシリレン）（2, 1'-ジメチルシリレン）ビス（3-トリメチルシリルメチルインデニル）ジルコニウムジクロライドを1.0マイクロモル、ジメチルアニリニウムボレートを4.0マイクロモル加え、更に水素を0.2MPa導入し、240分間重合した。重合反応終了後、アセトンで再沈操作を繰り返すことにより、反応物を析出させ、減圧下、加熱乾燥す

ることにより、高級 $\alpha$ オレフィン重合体（CPAO-28）を205 g得た。

また、上記CPAO-28について、製造例2-2と同様にして融点を求めたところ、28℃であり、融解を開始する温度を求めたところ、15℃であり、融解を終了する温度を求めたところ、30℃であった。

[0069] 図2に製造例2-5で得られた結晶性ポリアルファオレフィンとパラフィンワックス（日本精蠟株式会社製：パラフィンワックス115）の融解特性を示す。図2に示されている、製造例2-5で得られた融点42℃の結晶性ポリアルファオレフィン（CPAO-40）とパラフィンワックスの融解特性を比べると、結晶性ポリアルファオレフィンの融解温度幅が狭いことが一目瞭然である。図3は融点の異なる結晶性ポリアルファオレフィン（28℃、40℃、70℃）の融解特性を示す図である。融解温度幅が狭いという特徴は融点が変わっても同じである。

[0070] 実施例2-1

封止材料基準で85.5質量%の球状シリカ粉体（FB9454FD、粒径 $\leq 45\mu\text{m}$ 、電気化学工業株式会社製）、エポキシ樹脂（YX4000H、ジャパンエポキシレジン株式会社製）7質量%、エポキシ樹脂硬化剤（MEH7800、明和化成株式会社製）5質量%、エポキシ樹脂硬化促進剤（TPP、ケイアイ化成株式会社製）0.2質量%および改質剤（S530、チッソ株式会社製）0.3質量%をヘンシェル型混合機に入れ、製造例2-4で得られたCPAO-50（融点52℃）2質量%を、粒径が $15\pm 5\mu\text{m}$ となるように調整しつつ、溶融噴霧しながら攪拌混合し、封止材料を得た。CPAO-50の粒径は、透明フィルムにCPAO-50を噴霧しフィルム上の液滴の粒径を計測したところ、 $25\mu\text{m}$ 以下であった。つぎに、混合物を押出機（SK1、株式会社栗本鐵工所製）で混練した後、製造例2-5で得られたCPAO-40を溶融塗布した保護フィルム（PET、 $75\mu\text{m}$ 厚、東レ株式会社製）に挟み込み半導体封止用エポキシ樹脂シート部材を得た。CPAO-40の溶融塗布時の厚みは、 $6\pm 3\mu\text{m}$ になるように調整し

た。この部材の片面の保護フィルムを剥した後、模擬半導体基板（チップサイズ 10mm×10mmの176pinLQFP、外形24mm×24mm×1.4mm）を圧着成形（金型温度150℃、硬化時間3分）により封止し、剥離性、充填性、金線変形、外観について、下記の方法で評価した。なお、剥離性、充填性、金線変形、外観評価に用いた模擬半導体部品は、片面銅箔基板に半導体を整列配置する擬似回路配線を加工し、半導体は搭載せずに半導体相当部と外部接続用端子部を金線で結線したものである。

[0071] （剥離性）

エポキシ樹脂シート部材よりフィルムを剥がし、フィルム上に付着した封止材料を目視で確認し、以下の基準で評価した。

◎： 封止材料の付着は認められない。

○： 封止材料の付着が全体の1%以下（面積）、封止材料はシート原型を保持した。

△： 封止材料の付着が全体の5%未満、封止材料はシート原型を保持した。

×： 封止材料の付着が全体の5%以上、又は、封止材料は原型を保持せず。

（外観）

成形により封止された模擬半導体部品の外観を顕微鏡で観察し、以下の基準で評価した。

◎： 10μm以上の外観異常（割れ・欠け・へこみ・異物等）が無い。

○： 10～30μmの外観異常は2個以下／成形品であり、かつ、30μm以上の外観異常は無い。

△： 10～30μmの外観異常は5個以下／成形品であり、かつ、30μm以上の外観異常は無い。

×： 10～30μmの外観異常は6個以上／成形品であるか、又は、30μm以上の外観異常が有る。

（充填性）

成形により封止された模擬半導体部品を0.1mm研磨しその表面を顕微鏡で観察し、外観と同様の基準で評価した。

◎： 10 $\mu$ m以上の外観異常（割れ・欠け・へこみ・異物等）が無い。

○： 10～30 $\mu$ mの外観異常は2個以下／成形品であり、かつ、30 $\mu$ m以上の外観異常は無い。

△： 10～30 $\mu$ mの外観異常は5個以下／成形品であり、かつ、30 $\mu$ m以上の外観異常は無い。

×： 10～30 $\mu$ mの外観異常は6個以上／成形品であるか、又は、30 $\mu$ m以上の外観異常が有る。

（金線変形）

成形により封止された模擬半導体部品を軟X線装置で観察し、以下の基準で評価した。

無： 金線変形率（金線流れ幅/金線長さ、%表示）<2%

小： 金線変形率 <5%

大： 金線変形率  $\geq$ 5%

#### [0072] 実施例2-2

製造例2-4で得られたCPAO-50に代えて、製造例2-2で得られたCPAO-70（融点70 $^{\circ}$ C）を溶融噴霧した以外は実施例2-1と同様にして半導体封止用エポキシ樹脂シート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。

#### [0073] 実施例2-3

製造例2-5で得られたCPAO-40に代えて、製造例2-3で得られたCPAO-60（融点60 $^{\circ}$ C）を保護フィルムに溶融塗布した以外は実施例2-1と同様にして半導体封止用エポキシ樹脂シート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。

#### [0074] 実施例2-4

製造例2-5で得られたCPAO-40を溶融し、保護フィルムに噴霧して厚さ12 $\pm$ 4 $\mu$ mの塗膜を形成した以外は実施例2-1と同様にして半導

体封止用エポキシ樹脂シート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。

[0075] 比較例 2-1

実施例 2-1 において、結晶性ポリアルファオレフィンを使用せず、球状シリカ粉体の配合量を 87.5 質量%としてシート部材を製造し剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。得られた部材の剥離性は非常に悪く、封止材料の一部が保護フィルムに付着した。また、封止材料の熔融粘度が高く、注入性が非常に悪く正常な成形品が得られなかった。

[0076] 比較例 2-2

製造例 2-4 で得られた CPAO-50 の代わりに製造例 2-6 で得られた CPAO-28 (融点 28°C) を使用した以外は実施例 2-1 と同様にしてシート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。

[0077] 比較例 2-3

実施例 2-2 において、製造例 2-2 で得られた CPAO-70 を熔融噴霧する方法に代えて、CPAO-70 の粗粒 (粒径 50 μm 以上) を使用した以外は実施例 2-2 と同様にしてシート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。CPAO-70 の粗粒は、CPAO-70 を微粉碎し、目開き 50 μm の篩網を用いて篩分した後、篩網上に残ったものを使用した。

[0078] 比較例 2-4

製造例 2-4 で得られた CPAO-50 の添加量を 6 質量%に増加し、球状シリカ粉体を 81.5 質量%に減少した以外は実施例 2-1 と同様にしてシート部材を製造し、剥離性、充填性、金線変形、外観について評価した。この材料のフィルム剥離性は良好であったが、成形品のバラツキが非常に大きく正しい評価結果が得られなかった。

[0079] 実施例 2-1 ~ 2-4 及び比較例 2-1 ~ 2-4 の内容と評価結果を第 2 表に示す。実施例 2-1 ~ 2-4 及び比較例 2-1 ~ 2-4 で得られたシー

ト部材の剥離性、充填性、金線変形、外観を比較すると、実施例 1～4 の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材が抜群に優れることがわかる。また、比較例 2-2 および比較例 2-3 の封止材料は、剥離性、充填性、金線変形及び外観評価のバラツキも大きかった。

[0080]



[表2]

第2表

組成 (質量%)	実施例					比較例				
	2-1	2-2	2-3	2-4		2-1	2-2	2-3	2-4	
球状シリカ粉体	85.5	85.5	85.5	85.5		87.5	85.5	85.5	81.5	
エポキシ樹脂	7	7	7	7		7	7	7	7	
エポキシ樹脂硬化剤	5	5	5	5		5	5	5	5	
エポキシ樹脂硬化促進剤	0.2	0.2	0.2	0.2		0.2	0.2	0.2	0.2	
改質剤	0.3	0.3	0.3	0.3		0.3	0.3	0.3	0.3	
CPAO-70		2							2	
CPAO-60										
CPAO-50	2		2	2						6
CPAO-40										
CPAO-28										
融点 (°C)	52	70	52	52						
粒径 (μm)	10~20	10~20	10~20	10~20						
厚さ (μm)	3~9	3~9	3~9	8~16						
保護フィルム の剥離層	42	42	60	42						
剥離性	◎	◎	○	◎		×	◎	◎	◎	
充填性	◎	○	◎	◎		×	○	○	△	
金線変形	無	無	無	無		大	小	小	—	
外観	◎	◎	◎	○		×	×	△	—	

産業上の利用可能性

[0081] 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料は、半導体封止用トランスファー成形材料として用いた場合に成形性に優れており、特に、一括封止法において抜群の性能を発揮する。成形時の諸問題のため実用化が困難であった最先端半導体装置の樹脂封止を可能とする成形材料であり、既存の設備を使用して最先端の半導体装置を工業的に生産することを可能にする。

また、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材は、半導体封止用圧着成形用シート部材として用いた場合に成形性に優れており、特に、一括封止法において抜群の性能を発揮する。成形時の諸問題のため実用化が困難であった最先端半導体装置の樹脂封止を可能とするシート部材であり、既存の設備を使用して最先端の半導体装置を工業的に生産することを可能にする。

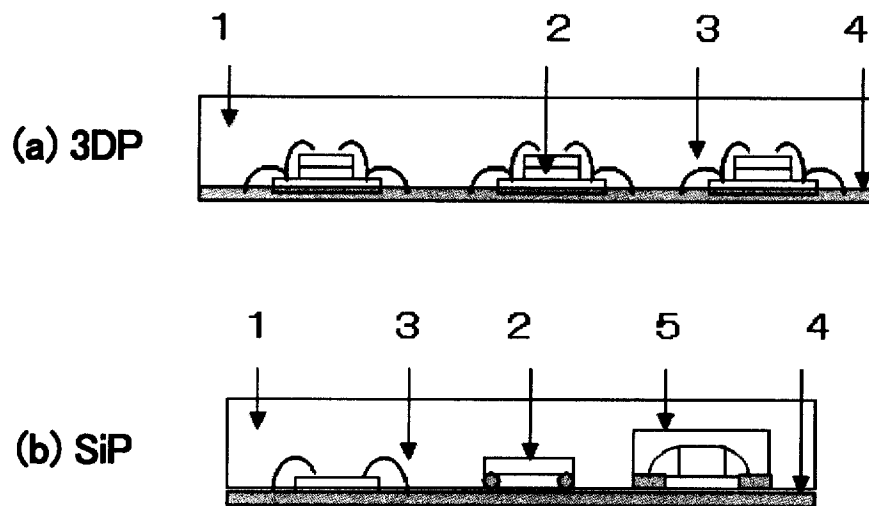
## 請求の範囲

- [請求項1]           少なくとも（１－Ａ）融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径 $75\ \mu\text{m}$ 以下の粉体及び／又は霧状体、（１－Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（１－Ｃ）無機充填材を溶融混練してなる半導体封止用エポキシ樹脂成形材料であって、該結晶性ポリアルファオレフィンを $0.2\sim 5$ 質量％含有する半導体封止用エポキシ樹脂成形材料。
- [請求項2]           前記結晶性ポリアルファオレフィンが、融点の $-15^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を開始し $+3^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を終了するものである請求項1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料。
- [請求項3]           前記（１－Ｃ）無機充填材がシリカ粉体である請求項1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料。
- [請求項4]           前記（１－Ｃ）無機充填材を $80$ 質量％以上含有する請求項1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料。
- [請求項5]           融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンを、溶融状態で噴霧して添加することを特徴とする請求項1に記載の半導体封止用エポキシ樹脂成形材料の製造方法。
- [請求項6]           少なくとも（２－Ａ）融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリアルファオレフィンの粒径 $50\ \mu\text{m}$ 以下の粉体及び／又は霧状体、（２－Ｂ）エポキシ樹脂、並びに（２－Ｃ）無機充填材を溶融混練してなり、かつ、該結晶性ポリアルファオレフィンを $0.2\sim 5$ 質量％含有する封止材料からなる封止層を有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材であって、さらに、該封止層の片面又は両面に保護フィルムを有する半導体封止用エポキシ樹脂シート部材。
- [請求項7]           前記結晶性ポリアルファオレフィンが、融点の $-15^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を開始し $+3^{\circ}\text{C}$ 以内で融解を終了するものである請求項6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材。
- [請求項8]           前記保護フィルムの封止層側に、融点が $30\sim 90^{\circ}\text{C}$ の結晶性ポリ

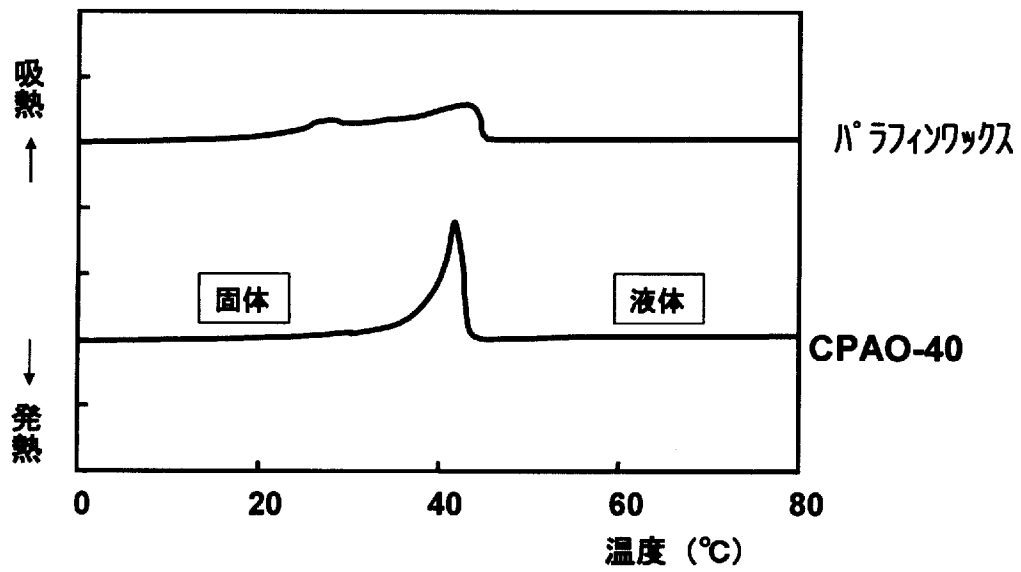
アルファオレフィンを含む厚さ0.1～10 $\mu$ mの剥離層を有する請求項6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材。

[請求項9] 融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で噴霧して封止材料を製造する工程と、保護フィルムに融点が30～90℃の結晶性ポリアルファオレフィンを溶融状態で塗布又は噴霧して剥離層を形成する工程とを含むことを特徴とする請求項6に記載の半導体封止用エポキシ樹脂シート部材の製造方法。

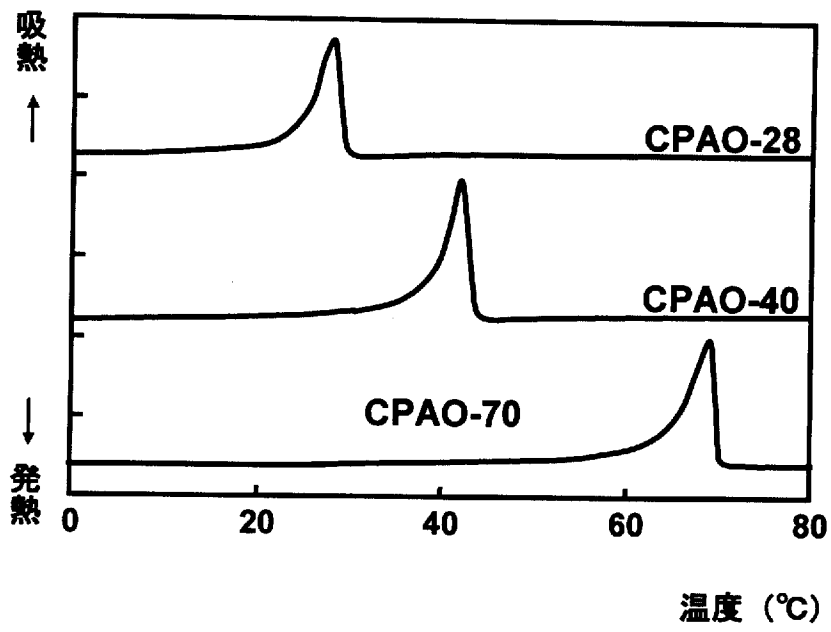
[図1]



[図2]



[図3]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP2009/059510

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
C08L63/00(2006.01) i, C08K3/36(2006.01) i, C08L23/24(2006.01) i

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)  
C08L63/00, C08K3/36, C08L23/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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.
A	WO 2006/080297 A1 (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 03 August, 2006 (03.08.06), Claims; Par. Nos. [0080], [0081]; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2001-500187 A (Landec Corp.), 09 January, 2001 (09.01.01), Claims; page 18, lines 15 to 25; examples & US 2001/0007881 A1 & US 6255367 B1 & EP 925332 A & WO 1998/011166 A1 & AU 4265297 A	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.       See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 01 July, 2009 (01.07.09)	Date of mailing of the international search report 14 July, 2009 (14.07.09)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/059510

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 2007-46017 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 22 February, 2007 (22.02.07), Claims; examples (Family: none)	1-9
P,A	JP 2008-214535 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 September, 2008 (18.09.08), Claims; examples (Family: none)	1-9



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int.Cl. C08L63/00(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08L23/24(2006.01)i

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))  
 Int.Cl. C08L63/00, C08K3/36, C08L23/24

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 1971-2009年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2009年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2009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
A	WO 2006/080297 A1 (住友ベークライト株式会社) 2006.08.03, 特許請求の範囲、【0080】、【0081】、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2001-500187 A (ランデック コーポレイション) 2001.01.09, 特許請求の範囲、第18頁第15行-第25行、実施例 & US 2001/0007881 A1 & US 6255367 B1 & EP 925332 A & WO 1998/011166 A1 & AU 4265297 A	1-9

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。

<p>* 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</p>	<p>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矛盾するものではなく、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                  「&amp;」同一パテントファミリー文献</p>
---	---

国際調査を完了した日 01.07.2009	国際調査報告の発送日 14.07.2009
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 吉備永 秀彦 電話番号 03-3581-1101 内線 3457
	4 J   4514

C (続き) . 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 2007-46017 A (出光興産株式会社) 2007.02.22, 特許請求の範囲、 実施例 (ファミリーなし)	1-9
PA	JP 2008-214535 A (出光興産株式会社) 2008.09.18, 特許請求の範 囲、実施例 (ファミリーなし)	1-9