

明 細 書

発明の名称：封止用樹脂シート

技術分野

[0001] 本発明は、封止用樹脂シート、詳しくは、素子を封止するための封止用樹脂シートに関する。

背景技術

[0002] 従来、熱硬化性樹脂および球形状のシリカを含む封止用シートを用いて、基板に実装された素子を、プレスにより封止し、その後、熱硬化性樹脂を熱硬化させて、封止用シートから硬化体を形成することが知られている（例えば、下記特許文献 1 参照。）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献 1：特開 2016-162909 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 近年、電子機器の高機能化に伴い、それに備えられる半導体素子や電子部品にも小型化が要求されている。それに伴い、半導体素子や電子部品を保護する樹脂（硬化体）に対しても、硬化時の寸法精度の向上が要求されている。

[0005] 具体的には、半導体素子や電子部品の側端縁から、半導体素子や電子部品、および、基板間に進入する硬化体の進入量をより低減したい要求がある。または、サイズやデザインが異なる複数の素子や、サイズやデザインが異なる端子に接続される複数の素子に対して封止するとき、全ての複数の素子を均一に封止できない場合がある。

[0006] しかし、特許文献 1 に記載の封止用シートは、同一の球形状のシリカを含み、かかるシリカは、加熱硬化時の熱硬化性樹脂の流動とともに、滑らかに転がり易く、そのため、上記要求を満足できないという不具合がある。

[0007] 本発明は、素子および基板間への硬化体の進入量を低減できる封止用樹脂シートを提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明〔１〕は、素子を封止するための封止用樹脂シートであり、熱硬化性樹脂から形成されるマトリクスと、非層状フィラーから形成され、前記マトリクス中に分散する第１ドメインと、層状フィラーから形成され、前記マトリクス中に分散する第２ドメインとを含み、前記第２ドメインが前記第１ドメイン間に位置する共分散領域を有する、封止用樹脂シートを含む。

[0009] 本発明〔２〕は、下記の第１工程～第４工程により求められる前記第２ドメインの最大長さＡの平均値 a および前記第１ドメインの最大長さＢの平均値 b が、下記式（１）を満足する、〔１〕に記載の封止用樹脂シートを含む。

[0010] $0.2 < a/b < 5$ （１）

第１工程：前記封止用樹脂シートを含む。をＴＥＭ観察して一の視野像を取得する。

第２工程：１０人の観察者が前記一の視野像を観察し、前記第２ドメインのうち、最も大きな前記第２ドメインの前記最大長さＡと、前記第１ドメインのうち、最も大きな前記第１ドメインの前記最大長さＢとを測定する。

第３工程：前記最大長さＡの前記１０人の観察者の前記平均値 a と、前記最大長さＢの前記１０人の観察者の前記平均値 b とを取得する。

第４工程：前記平均値 a 、および、前記平均値 b を、前記式（１）に代入する。

[0011] 本発明〔３〕は、前記第２ドメインの前記最大長さＡの前記平均値 a が、前記第１ドメインの前記最大長さＢの前記平均値 b より大きい、〔２〕に記載の封止用樹脂シートを含む。

[0012] 本発明〔４〕は、前記第２ドメインの前記最大長さＡの前記平均値 a が、 $1\mu\text{m}$ 以上、 $10\mu\text{m}$ 以下である、〔２〕または〔３〕に記載の封止用樹脂シートを含む。

[0013] 本発明〔５〕は、前記封止用樹脂シートを含む。をＴＥＭ観察して一の視野像を取得し、前記一の視野像で確認される前記第２ドメインが、２以上のアスペクト比を有する、〔１〕～〔４〕のいずれか一項に記載の封止用樹脂シートを含む。

[0014] 本発明〔６〕は、前記封止用樹脂シートを含む。をＴＥＭ観察して一の視野像を取得し、前記一の視野像で確認される前記第１ドメインが、略円形状を有する、〔１〕～〔５〕のいずれか一項に記載の封止用樹脂シートを含む。

発明の効果

[0015] 本発明の封止用樹脂シートは、非層状フィラーから形成される第１ドメインと、層状フィラーから形成される第２ドメインとを含み、第２ドメインが第１ドメイン間に位置する共分散領域を有する。そのため、熱硬化性樹脂が加熱により一旦軟化して、マトリクスが流動し易くなっても、共分散領域によって、封止用樹脂シートの材料の流動を可及的に抑制できる。そのため、硬化体を形成するときに、素子および基板間への硬化体の進入量を低減することができる。

[0016] また、本発明の封止用樹脂シートを、サイズやデザインが異なる複数の素子、さらには、サイズやデザインが異なる端子に接続される複数の素子に配置し、これを加熱して硬化体を形成するときに、これらの隙間への硬化体の進入量を制御して、複数の素子を均一に封止することができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図１]図１は、本発明の封止用樹脂シートの一実施形態のＴＥＭ写真の画像処理図であり、下図は、一の視野像、上図は、下図において四角枠で囲まれる領域の拡大像である。

[図２]図２は、図１において、第１ドメインが白線で、第２ドメインが黒線で描画された一の視野像の画像処理図である。

[図３]図３Ａ～図３Ｄは、本発明の封止用樹脂シートの一実施形態を用いて、複数の電子素子を封止して、電子素子パッケージを製造する工程断面図であ

り、図 3 A が、封止用樹脂シートを準備する工程、図 3 B が、電子素子を準備する工程、図 3 C が、封止用樹脂シートをプレスして封止体を形成する工程、図 3 D が、封止体を加熱して硬化体を形成する工程である。

[図4]図 4 A～図 4 D は、図 3 A に示す封止用樹脂シートと第 2 封止用樹脂シートとを備える封止用多層樹脂シートを用いて、複数の電子素子を封止して、電子素子パッケージを製造する工程断面図であり、図 4 A が、封止用多層樹脂シートを準備する工程、図 4 B が、電子素子を準備する工程、図 4 C が、封止用多層樹脂シートをプレスして封止体を形成する工程、図 4 D が、封止体を加熱して、硬化体を形成する工程である。

[図5]図 5 A～図 5 D は、実施例における硬化体進入長さを測定する方法であり、図 5 A が、封止用多層樹脂シートを準備する工程（ステップ A）、図 5 B が、電子素子（ダミー素子）を準備する工程（ステップ B）、図 5 C が、封止用多層樹脂シートをプレスして封止体を形成する工程（ステップ C）、図 5 D が、封止体を加熱して、硬化体を形成する工程（ステップ D）である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の封止用樹脂シートの一実施形態を、図 1～図 2 を適宜参照して説明する。

[0019] なお、図 1～図 2 は、後述する実施例 3 における封止用樹脂シートの TEM 写真の画像処理図である。

[0020] 封止用樹脂シート 1 は、素子を封止するための樹脂シートであって、厚み方向に直交する面方向に延びる略板形状（フィルム形状）（図 3 A 参照）を有する。

[0021] 図 1 に示すように、封止用樹脂シート 1 は、マトリクス領域 2 と、共分散領域 3 とを有する。詳しくは、封止用樹脂シート 1 を TEM 観察して取得した一の視野像（後述）中、封止用樹脂シート 1 は、マトリクス領域 2 と、共分散領域 3 とを有する。

[0022] <マトリクス領域>

マトリクス領域 2 は、封止用樹脂シート 1 において共分散領域 3 以外の領域である。マトリクス領域 2 は、共分散領域 3 に対するマトリクス 4 から成る。

[0023] マトリクス 4 は、封止用樹脂シート 1 を構成するための樹脂マトリクスである。

[0024] マトリクス 4 は、熱硬化性樹脂から形成される。

[0025] 熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミド樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂などが挙げられる。これらは、単独または 2 種以上併用することができる。

[0026] 熱硬化性樹脂として、好ましくは、エポキシ樹脂が挙げられる。エポキシ樹脂は、後の調製方法で詳述する。

[0027] 熱硬化性樹脂は、完全硬化前（B ステージまたは A ステージを含む）、および、完全硬化後（C ステージ）のいずれでもよい。但し、後述する TEM 観察においては、熱硬化性樹脂は、好ましくは、完全硬化後（C ステージ）である。

[0028] <共分散領域>

共分散領域 3 は、マトリクス 4 中に分散する粒子ドメインである。

[0029] 共分散領域 3 は、形状が互いに異なる第 1 ドメイン 5 および第 2 ドメイン 6 を含んでおり、第 1 ドメイン 5 および第 2 ドメイン 6 のそれぞれが共に分散（点在）する領域である。

[0030] <第 1 ドメイン>

第 1 ドメイン 5 は、封止用樹脂シート 1 をプレスして封止体を形成し、続いて、封止体を加熱して硬化させて硬化体を得るときに、硬化体の強度を確保するための硬化体補強領域である。

[0031] 第 1 ドメイン 5 は、非層状フィラーから形成される。

[0032] 非層状フィラーの形状は、次に説明する第 2 ドメイン 6 の層状フィラーの形状以外であれば、特に限定されない。封止用樹脂シート 1 を TEM 観察し

て一の視野像を取得し、一の視野像（後述）で確認されたときの非層状フィラーの形状としては、例えば、略円形状（図1参照）（略楕円形状を含む。）、例えば、略正形状、略三角形状などの多角形状（但し、扁平な略四角形状を除く）などが挙げられる。

[0033] 一の視野像で確認されたときの非層状フィラーの形状として、図1に示すように、好ましくは、略円形状が挙げられる。一の視野像で確認されたときの非層状フィラーの形状が略円形状であれば、分散性に優れ、封止用樹脂シートの流動を均一に抑制できる。

[0034] なお、一の視野像における第1ドメイン5の最大長さBの平均値bは、後で詳述する。

[0035] 具体的には、非層状フィラーの材料としては、例えば、石英（ケイ酸）、シリカ（無水ケイ酸）などのケイ酸化合物（ケイ素化合物）（但し、後述するケイ酸塩化合物を含まず）、例えば、酸化アルミニウム（アルミナ）、窒化アルミニウムなどのアルミニウム化合物などが挙げられる。これらは、単独使用または2種以上併用することができる。非層状フィラーの材料として、好ましくは、ケイ酸化合物、より好ましくは、シリカが挙げられる。つまり、非層状フィラーとして、好ましくは、ケイ酸化合物フィラー、より好ましくは、シリカフィラーが挙げられる。

[0036] <第2ドメイン>

第2ドメイン6は、封止用樹脂シート1から封止体および硬化体（後述）を形成するときの流動調整領域である。具体的には、封止用樹脂シート1を加熱して硬化体を形成するときに、硬化体の流動性を低減するための硬化時流動低減領域である。詳しくは、封止用樹脂シート1をプレスして封止体を形成し、続いて、封止体を加熱して硬化させる場合に、まず、封止体の流動性を高めつつ、その後の加熱によって、硬化体の流動性を低減するための封止時流動向上兼硬化時流動低減領域でもある。

[0037] 第2ドメイン6は、層状フィラーから形成される。

[0038] 層状フィラーは、例えば、二次元（面方向に）に広がった層が、厚み方向

に積み重なった構造（三次元構造）を有するフィラーである。層状フィラーは、複数の薄層 7 がその厚み方向に積層された形状を有する。

[0039] 具体的には、図 1 の上図に示すように、封止用樹脂シート 1 を T E M 観察して一の視野像を取得し、一の視野像（後述）で確認されたときの層状フィラーの形状としては、扁平矩形状（板形状）（周縁の一部が円弧形状である形状を含む。）が挙げられる。

[0040] 一の視野像において、第 2 ドメイン 6 の最大長さ A の平均値 a（図 2 参照）は、後で詳述する。

[0041] 具体的には、層状フィラーの材料としては、例えば、ケイ酸塩化合物、例えば、窒化ホウ素などのホウ素化合物、例えば、炭素（グラファイト）などの炭素系物質などが挙げられる。好ましくは、ケイ酸塩化合物が挙げられる。

[0042] ケイ酸塩化合物は、フィロケイ酸塩と呼称される。

[0043] 具体的には、ケイ酸塩化合物としては、例えば、モンモリロナイト、バイデライト、ノントロナイト、サポナイト、ヘクトライト、ソーコナイト、スチーブンスナイトなどのスメクタイト、例えば、カオリナイト、例えば、ハロイサイト、例えば、タルク、例えば、マイカなどが挙げられる。ケイ酸塩化合物として、好ましくは、熱硬化性樹脂との混合性を向上させる観点から、スメクタイトが挙げられ、より好ましくは、モンモリロナイトが挙げられる。

[0044] また、層状フィラーは、表面が変性されていない未変性物であってもよく、また、表面が有機成分により変性された変性物でもよい。好ましくは、熱硬化性樹脂との優れた親和性を得る観点から、層状フィラーは、表面が有機成分により変性されている。具体的には、層状フィラーとして、表面が有機成分で変性されたケイ酸塩化合物、より好ましくは、表面が有機成分で変性された有機化スメクタイト、さらに好ましくは、表面が有機成分で変性された有機化ベントナイトが挙げられる。

[0045] 有機成分として、アンモニウム、イミダゾリウム、ピリジニウム、フォス

フォニウムなどの有機カチオン（オニウムイオン）が挙げられる。

[0046] アンモニウムとしては、例えば、ジメチルジステアリルアンモニウム、ジステアリルアンモニウム、オクタデシルアンモニウム、ヘキシルアンモニウム、オクチルアンモニウム、2-ヘキシルアンモニウム、ドデシルアンモニウム、トリオクチルアンモニウムなどが挙げられる。イミダゾリウムとしては、例えば、メチルステアリルイミダゾリウム、ジステアリルイミダゾリウム、メチルヘキシルイミダゾリウム、ジヘキシルイミダゾリウム、メチルオクチルイミダゾリウム、ジオクチルイミダゾリウム、メチルドデシルイミダゾリウム、ジドデシルイミダゾリウムなどが挙げられる。ピリジニウムとしては、例えば、ステアリルピリジニウム、ヘキシルピリジニウム、オクチルピリジニウム、ドデシルピリジニウムなどが挙げられる。フォスフォニウムとしては、例えば、ジメチルジステアリルフォスフォニウム、ジステアリルフォスフォニウム、オクタデシルフォスフォニウム、ヘキシルフォスフォニウム、オクチルフォスフォニウム、2-ヘキシルフォスフォニウム、ドデシルフォスフォニウム、トリオクチルフォスフォニウムなどが挙げられる。有機カチオンは、単独使用または2種以上併用することができる。好ましくは、アンモニウム、より好ましくは、ジメチルジステアリルアンモニウムが挙げられる。

[0047] 有機化ケイ酸塩化合物として、好ましくは、表面がアンモニウムで変性された有機化スメクタイト、より好ましくは、表面がジメチルジステアリルアンモニウムで変性された有機化ベントナイトが挙げられる。

[0048] <封止用樹脂シート1のTEM観察により取得される一の視野像>

この封止用樹脂シート1におけるマトリクス領域2および共分散領域3（、さらには、それらを成すマトリクス4、第1ドメイン5および第2ドメイン6）は、封止用樹脂シート1のTEM（透過型電子顕微鏡）観察により取得される一の視野像（図1および図2）により観察される。

[0049] なお、TEM観察のためのサンプル作製およびTEMの条件等については、後の実施例で詳述する。

- [0050] この一の視野像で観察されるマトリクス領域2は、連続する一つの領域（連続相）である。一の視野像において、マトリクス4は、均質な領域として形成されている。そのため、上記した一の視野像において、マトリクス4は、均一のグレー（濃淡の差が実質的にない）領域として識別される。
- [0051] この一の視野像で観察される共分散領域3は、マトリクス領域2中に分散（点在）して観察される。
- [0052] 共分散領域3では、第1ドメイン5および第2ドメイン6が共に分散している。
- [0053] 第1ドメイン5は、単独で存在する単独ドメイン8、および／または、単独ドメイン8が一方向に複数連結した鎖状ドメイン9を含む。鎖状ドメイン9は、部分的に分岐してもよい。
- [0054] 好ましくは、第1ドメイン5は、単独ドメイン8および鎖状ドメイン9の両方を含む。
- [0055] 一の視野像において、単独ドメイン8の数、および、鎖状ドメイン9の数の合計に対する、鎖状ドメイン9の数の割合の下限は、例えば、0.01、好ましくは、0.1であり、その上限は、例えば、0.8、好ましくは、0.7である。
- [0056] なお、鎖状ドメイン9の数に関し、隣接する2つの第1ドメイン5が連結する場合には、それらは、1つとしてカウントする。
- [0057] 第2ドメイン6は、共分散領域3において、隣接する第1ドメイン5間に位置する。具体的には、第2ドメイン6は、隣接する複数の単独ドメイン8間に位置する第2ドメイン6、隣接する単独ドメイン8および鎖状ドメイン9間に位置する第2ドメイン6、隣接する複数の鎖状ドメイン9間に位置する第2ドメイン6などを含む。これらのうち、隣接する複数の鎖状ドメイン9間に位置する第2ドメイン6が、最も高い比率（面積比率など）で存在する。
- [0058] なお、一の視野像において、第2ドメイン6の存在を特定しづらい場合には、図1の上図に示すように、上記した箇所のみを拡大し、薄層7の存在を

確認することによって、層状フィラーの存在を特定する。

[0059] また、次の第1工程～第4工程により求められる第2ドメイン6の最大長さAの平均値aおよび第1ドメイン5の最大長さBの平均値bが、例えば、下記式(1)を満足する。

[0060] $0.2 < a/b < 5$ (1)

第1工程：封止用樹脂シート1をTEM観察して一の視野像を取得する。

[0061] 第2工程：10人の観察者が一の視野像を観察し、第2ドメインのうち、最も大きな第2ドメインの最大長さAと、第1ドメインのうち、最も大きな第1ドメインの最大長さBとを測定する。

[0062] 第3工程：最大長さAの10人の観察者の平均値aと、最大長さBの10人の観察者の平均値bとを取得する。

[0063] 第4工程：平均値a、および、平均値bを、式(1)に代入する。

[0064] 第1工程では、TEM観察して取得される一の視野像は、図1および図2に示される。

[0065] 第2工程では、図2に示すように、複数ある第2ドメイン6のうち、最も大きな第2ドメインの最大長さAが、10人の観察者のそれぞれによって、測定される。第2ドメイン6の最大長さAの測定は、観察者によって若干ずれる可能性を考慮して、10人の観察者によって、第2ドメイン6の最大長さAが測定される。上記したように、第2ドメイン6の存在が特定しづらい場合があり、そのため、観察者によって第2ドメイン6の最大長さAがばらつくことがある。従って、観察者の数を10とし、その平均値aを求めることにより、ばらつき(誤差)を低減し、測定の精度を高めている。

[0066] 具体的には、第1観察者によって測定される第2ドメイン6の最大長さA1、第2観察者によって測定される第2ドメイン6の最大長さA2(A1と異なってもよい)、、、、第10観察者によって測定される第2ドメイン6の最大長さA10(A1およびA2と異なってもよい)が、それぞれ、取得される。

[0067] 第1ドメイン5の最大長さBの平均値bについても、上記と同様である。

なお、第1ドメイン5の最大長さBは、単独ドメイン8の最大長さBに相当する。鎖状ドメイン9に関しても、それを構成する単独ドメイン8の最大長さBが第1ドメイン5の最大長さBとされる。

[0068] 第3工程では、平均値aは、 $(A_1 + A_2 + \dots + A_{10}) / 10$ の計算結果として求められる。平均値bも、上記と同様である。

[0069] 第1ドメイン5の最大長さBの平均値bは、複数の異なるメジアン径を有する第1非層状フィラーおよび第2非層状フィラーを有する場合（後述）には、上記した平均値bは、サイズが大きい第1非層状フィラーのメジアン径に依存する。

[0070] 上記式（1）を満足すれば、硬化体が素子の周側面を確実に被覆して、良好な封止特性を担保しながら、素子および基板間への硬化体の進入量を低減することができる。

[0071] 式（1）の下限を下回った場合、層状フィラーが、非層状フィラーのサイズに対して、過度に分散された状態であるため、流動を可及的に抑制できない場合がある。また、式（1）の上限を上回った場合、樹脂シート中の層状フィラーの分散が、非層状フィラーのサイズに対して不十分のため、硬化体が、素子の周側面を均一に確実に被覆することができない場合がある。

[0072] 好ましくは、第2ドメインの最大長さAの平均値aが、第1ドメインの最大長さBの平均値bより大きい。これにより、層状フィラーを含む第2ドメインの樹脂流動への寄与が大きくなるため、素子および基板間への硬化体の進入量をより一層低減することができる。

[0073] つまり、第2ドメインの最大長さAの平均値a、および、第1ドメインの最大長さBの平均値bは、好ましくは、下記式（2）を満足する。さらに、平均値aおよび平均値bは、より好ましくは、下記式（3）、さらに好ましくは、下記式（4）を満足する。

[0074] $1 < a / b$ （2）

1. $3 < a / b$ （3）

1. $5 < a / b$ （4）

また、第2ドメインの最大長さAの平均値a、および、第1ドメインの最大長さBの平均値bは、好ましくは、下記式(5)、より好ましくは、下記式(6)を満足する。

[0075] $a/b < 3$ (5)

$$a/b < 2 \quad (6)$$

具体的には、第2ドメイン6の最大長さAの平均値aの下限は、例えば、 $0.1 \mu\text{m}$ 、好ましくは、 $1 \mu\text{m}$ である。また、第2ドメイン6の最大長さAの平均値aの上限は、例えば、 $30 \mu\text{m}$ 、好ましくは、 $10 \mu\text{m}$ である。第2ドメイン6の最大長さAの平均値aが上記した下限を下回った場合、層状フィラーが過度に分散された状態であるため、流動を可及的に抑制できない場合がある。第2ドメイン6の最大長さAの平均値aが上記した上限を上回った場合、樹脂シート中の層状フィラーの分散が不十分のため、硬化体が、素子の周側面を均一に確実に被覆することができない場合がある。

[0076] また、一の視野像(後述)で確認されたときの第2ドメイン6(層状フィラー)のアスペクト比の下限は、例えば、1.5、好ましくは、2、より好ましくは、3である。第2ドメイン6のアスペクト比の上限は、例えば、100以下である。

[0077] なお、第2ドメイン6のアスペクト比は、最大長さAに直交する方向(幅方向)の最大長さ(幅)Xの平均値xである。この平均値xは、上記した平均値aの測定方法に準じて求められる。

[0078] 第2ドメイン6のアスペクト比が上記した下限以上であれば、樹脂流動時に、層状フィラーの第2ドメインが、非層状フィラーの第1ドメインの流動をより一層抑制でき、そのため、封止用樹脂シートの材料の流動を可及的に抑制できる。

[0079] 一の視野像の観察において、封止用樹脂シート1におけるマトリクス領域2の面積割合の下限は、例えば、5面積%、好ましくは、10面積%である。封止用樹脂シート1におけるマトリクス領域2の面積割合の上限は、例えば、50面積%、好ましくは、40面積%である。

[0080] 一の視野像の観察において、封止用樹脂シート1における共分散領域3の面積割合の下限は、例えば、50面積%、好ましくは、60面積%、より好ましくは、70面積%である。封止用樹脂シート1における共分散領域3の面積割合の上限は、例えば、95面積%、好ましくは、90面積%、より好ましくは、85面積%である。

[0081] 一の視野像において、第1ドメイン5の数、および、第2ドメイン6の数の合計における第2ドメイン6の数の割合の下限は、例えば、1%、好ましくは、5%である。第1ドメイン5の数、および、第2ドメイン6の数の合計における第2ドメイン6の数の割合の上限は、例えば、50%、好ましくは、30%である。

[0082] 一の視野像において、第1ドメイン5の数に対する第2ドメイン6の数の比率の下限は、例えば、0.01、好ましくは、0.05である。第1ドメイン5の数に対する第2ドメイン6の数の比率の上限は、例えば、1、好ましくは、0.5である。

[0083] 上記した各割合が上記した範囲にあれば、封止用樹脂シートの材料の流動を可及的に抑制でき、素子および基板間への硬化体の進入量を低減することができる。

[0084] <封止用樹脂シートの製造>

この封止用樹脂シート1を製造するには、上記した熱硬化性樹脂、非層状フィラーおよび層状フィラーを配合して、混合物（組成物）を調製する。

[0085] なお、熱硬化性樹脂の好適な例であるエポキシ樹脂は、主剤、硬化剤および硬化促進剤を含有するエポキシ樹脂組成物として調製される。

[0086] 主剤としては、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、変性ビスフェノールA型エポキシ樹脂、変性ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂などの2官能エポキシ樹脂、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、トリスヒドロキシフェニルメタン型エポキシ樹脂、テトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂

脂などの3官能以上の多官能エポキシ樹脂などが挙げられる。これら主剤は、単独で使用または2種以上を併用することができる。主剤として、好ましくは、2官能エポキシ樹脂、より好ましくは、ビスフェノールF型エポキシ樹脂が挙げられる。

[0087] 主剤のエポキシ当量の下限は、例えば、10g/eq.、好ましくは、100g/eq.である。主剤のエポキシ当量の上限は、例えば、300g/eq.、好ましくは、250g/eq.である。

[0088] 主剤の軟化点の下限は、例えば、50℃、好ましくは、70℃、より好ましくは、72℃、さらに好ましくは、75℃である。主剤の軟化点の上限は、例えば、130℃、好ましくは、110℃、より好ましくは、90℃である。

[0089] 主剤の軟化点が上記した下限以上であれば、図3Cに示す工程において、封止用樹脂シート1が流動できる。従って、図3Cに示す工程の時間短縮、および、図3Cに示す工程における封止用樹脂シート1の厚み方向一方向を平坦にできる。

[0090] 硬化剤は、加熱によって、上記した主剤を硬化させる潜在性硬化剤である。硬化剤としては、例えば、ノボラック型フェノール樹脂などのフェノール樹脂が挙げられる。硬化剤がフェノール樹脂であれば、フェノール樹脂が主剤とともに、それらの硬化体が、高い耐熱性と高い耐薬品性とを有する。従って、硬化体は、封止信頼性に優れる。

[0091] 硬化促進剤は、加熱によって、主剤の硬化を促進する触媒（熱硬化触媒）である。硬化促進剤としては、例えば、有機リン系化合物、例えば、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール（2PHZ-PW）などのイミダゾール化合物などが挙げられる。好ましくは、イミダゾール化合物が挙げられる。

[0092] 混合物（固形分）（封止用樹脂シート1に相当）における熱硬化性樹脂（好ましくは、エポキシ樹脂組成物）の含有割合の下限は、例えば、5質量%、好ましくは、15質量%、より好ましくは、17質量%である。混合物（

固形分)における熱硬化性樹脂(好ましくは、エポキシ樹脂組成物)の含有割合の上限は、例えば、30質量%、好ましくは、25質量%、より好ましくは、20質量%、さらに好ましくは、18質量%である。

[0093] 混合物における主剤の割合の下限は、例えば、1質量%、好ましくは、3質量%、より好ましくは、10質量%である。混合物における主剤の割合の上限は、例えば、30質量%、好ましくは、15質量%、より好ましくは、12.5質量%である。エポキシ樹脂組成物における主剤の割合の下限は、例えば、30質量%、好ましくは、50質量%である。エポキシ樹脂組成物における主剤の割合の上限は、例えば、80質量%、好ましくは、70質量%である。

[0094] 硬化剤の割合は、下記の当量比となるように設定される。具体的には、主剤中のエポキシ基1当量に対する、フェノール樹脂中の水酸基の合計の下限が、例えば、0.7当量、好ましくは、0.9当量である。主剤中のエポキシ基1当量に対する、フェノール樹脂中の水酸基の合計の上限が、例えば、1.5当量、好ましくは、1.2当量である。具体的には、主剤100質量部に対する硬化剤の含有部数の下限は、例えば、20質量部、好ましくは、40質量部である。主剤100質量部に対する硬化剤の含有部数の上限は、例えば、80質量部、好ましくは、60質量部である。

主剤100質量部に対する硬化促進剤の含有部数の下限は、例えば、0.05質量部である。主剤100質量部に対する硬化促進剤の含有部数の上限は、例えば、5質量部である。

[0095] 非層状フィラーの形状としては、例えば、略球形状、略針形状などの形状(層状以外の形状)が挙げられる。好ましくは、略球形状が挙げられる。

[0096] 混合物における非層状フィラーの含有割合の下限は、例えば、50質量%、好ましくは、55質量%、より好ましくは、60質量%、さらに好ましくは、65質量%である。混合物における非層状フィラーの含有割合の上限は、例えば、90質量%、好ましくは、85質量%、より好ましくは、80質量%、さらに好ましくは、75質量%である。

- [0097] 非層状フィラーの含有割合および／または含有部数が上記した下限以上であれば、図1Cに示す工程における封止用樹脂シート1が流動できる。
- [0098] また、非層状フィラーは、第1非層状フィラーと、第1非層状フィラーのメジアン径より小さいメジアン径を有する第2非層状フィラーとを含むことができる。
- [0099] 第1非層状フィラーのメジアン径の下限は、例えば、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $3\text{ }\mu\text{m}$ である。第1非層状フィラーのメジアン径は、例えば、 $50\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $30\text{ }\mu\text{m}$ である。
- [0100] 第2非層状フィラーのメジアン径の上限は、例えば、 $0.9\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $0.8\text{ }\mu\text{m}$ である。第2非層状フィラーのメジアン径の下限は、例えば、 $0.01\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ である。
- [0101] 第1非層状フィラーのメジアン径の、第2非層状フィラーのメジアン径に対する比の下限は、例えば、2、好ましくは、5である。第1非層状フィラーのメジアン径の、第2非層状フィラーのメジアン径に対する比の上限は、例えば、50、好ましくは、20である。
- [0102] 第1非層状フィラーおよび第2非層状フィラーの材料は、ともに同一あるいは相異っていてもよい。
- [0103] さらに、非層状フィラーは、その表面が、部分的あるいは全体的に、シランカップリング剤などで表面処理されていてもよい。
- [0104] 非層状フィラーが第1非層状フィラーと第2非層状フィラーとを含む場合には、混合物における第1非層状フィラーの含有割合の下限は、混合物中、例えば、30質量%、好ましくは、40質量%である。混合物における第1非層状フィラーの含有割合の上限は、混合物中、例えば、60質量%、好ましくは、50質量%である。第1非層状フィラー100質量部に対する第2非層状フィラーの含有部数の下限は、例えば、30質量部、好ましくは、40質量部、より好ましくは、50質量部である。第1非層状フィラー100質量部に対する第2非層状フィラーの含有部数の上限は、例えば、70質量部、好ましくは、60質量部、より好ましくは、55質量部である。

- [0105] 層状フィラーの形状は、層状であって、板形状、薄片形状などを含む。また、層状フィラーは、劈開性を有する。
- [0106] 混合物における層状フィラーの含有割合の下限は、例えば、1質量%、好ましくは、2質量%、より好ましくは、3質量%で、さらに好ましくは、3.5質量%、とりわけ好ましくは、4質量%、最も好ましくは、4.5質量%である。混合物における層状フィラーの含有割合の上限は、例えば、25質量%、好ましくは、15質量%、より好ましくは、10質量%、さらに好ましくは、9質量%、とりわけ好ましくは、8質量%、最も好ましくは、7質量%である。
- [0107] なお、非層状フィラー100質量部に対する層状フィラーの含有部数の下限は、例えば、1質量部、好ましくは、2質量部、より好ましくは、3質量部、さらに好ましくは、5質量部である。非層状フィラー100質量部に対する層状フィラーの含有部数の上限は、例えば、25質量部、好ましくは、20質量部、より好ましくは、15質量部、さらに好ましくは、10質量部、とりわけ好ましくは、8質量部である。
- [0108] 層状フィラーのメジアン径の下限は、例えば、1 μm 、好ましくは、5 μm 、より好ましくは、10 nm である。層状フィラーのメジアン径の上限は、例えば、100 μm 、好ましくは、50 μm 、より好ましくは、10 μm である。
- [0109] なお、層状フィラーのメジアン径は、例えば、レーザー散乱法における粒度分布測定法によって求められた粒度分布に基づいて、D50値（累積50%メジアン径）として求められる。
- [0110] 層状フィラーとしては、市販品を用いることができ、具体的には、エスペンシリーズ（ホーゲン社製）などが用いられる。
- [0111] また、混合物には、例えば、熱可塑性樹脂、顔料、シランカップリング剤、その他の添加剤を添加することができる。
- [0112] なお、上記した添加剤のうち、熱可塑性樹脂およびシランカップリング剤は、熱硬化性樹脂とともにマトリクス4を構成でき、顔料は、非層状フィラ

ーとともに、第1ドメイン5を構成できる。

- [0113] 熱可塑性樹脂としては、例えば、天然ゴム、ブチルゴム、イソプレンゴム、クロロプレンゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-アクリル酸エステル共重合体、ポリブタジエン樹脂、ポリカーボネート樹脂、熱可塑性ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂（6-ナイロンや6, 6-ナイロンなど）、フェノキシ樹脂、アクリル樹脂、飽和ポリエステル樹脂（PETなど）、ポリアミドイミド樹脂、フッ素樹脂、スチレン-イソブチレン-スチレンブロック共重合体などが挙げられる。これら熱可塑性樹脂は、単独使用または2種以上併用することができる。
- [0114] 熱可塑性樹脂として、好ましくは、熱硬化性樹脂との分散性を向上させる観点から、アクリル樹脂が挙げられる。
- [0115] アクリル樹脂としては、例えば、直鎖または分岐のアルキル基を有する（メタ）アクリル酸アルキルエステルと、その他のモノマー（共重合性モノマー）とを含むモノマー成分を重合してなる、カルボキシル基含有（メタ）アクリル酸エステルコポリマー（好ましくは、カルボキシル基含有アクリル酸エステルコポリマー）などが挙げられる。
- [0116] アルキル基としては、例えば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、n-ブチル、t-ブチル、イソブチル、ペンチル、ヘキシルなどの炭素数1～6のアルキル基などが挙げられる。
- [0117] その他のモノマーとしては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、カルボキシエチルアクリレート、カルボキシペンチルアクリレート、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸などのカルボキシル基含有モノマーなどが挙げられる。
- [0118] 熱可塑性樹脂の重量平均分子量の下限は、例えば、10万、好ましくは、30万である。熱可塑性樹脂の重量平均分子量の上限は、例えば、100万、好ましくは、90万である。なお、重量平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）により、標準ポリスチレン換算値に基づいて測定される。

- [0119] 熱可塑性樹脂の割合（固形分割合）は、熱硬化性樹脂の熱硬化を阻害しないように調整される。具体的には、混合物における熱可塑性樹脂の割合（固形分割合）の下限は、例えば、1質量%、好ましくは、2質量%である。混合物における熱可塑性樹脂の割合（固形分割合）の上限は、例えば、10質量%、好ましくは、5質量%である。
- [0120] なお、熱可塑性樹脂は、適宜の溶媒で希釈されて調製されていてもよい。
- [0121] 顔料としては、例えば、カーボンブラックなどの黒色顔料が挙げられる。顔料の粒子径の下限は、例えば、0.001 μm である。顔料の粒子径の上限は、例えば、1 μm である。混合物に対する顔料の割合の下限は、例えば、0.1質量%であり、上限は、例えば、2質量%である。顔料の粒子径は、顔料を電子顕微鏡で観察して求めた算術平均径である。
- [0122] シランカップリング剤としては、例えば、エポキシ基を含有するシランカップリング剤が挙げられる。エポキシ基を含有するシランカップリング剤としては、例えば、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシランなどの3-グリシドキシジアルキルジアルコキシシラン、例えば、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシランなどの3-グリシドキシアルキルトリアルコキシシランが挙げられる。好ましくは、3-グリシドキシアルキルトリアルコキシシランが挙げられる。混合物におけるシランカップリング剤の含有割合の下限は、例えば、0.1質量%、好ましくは、1質量%である。混合物におけるシランカップリング剤の含有割合の上限は、例えば、10質量%、好ましくは、5質量%である。
- [0123] また、必要により、溶媒をさらに配合して、混合物のワニス調製する。溶媒としては、特に限定されず、例えば、アセトンなどのケトン系溶媒、例えば、メタノールなどのアルコール系溶媒などが挙げられ、好ましくは、ケトン系溶媒が挙げられる。
- [0124] ワニスにおける固形分濃度の下限は、例えば、40質量%、好ましくは、60質量%である。ワニスにおける固形分濃度の上限は、例えば、99質量%、好

ましくは、90質量%である。

[0125] 上記した各成分（添加剤および溶媒を含む）を配合し、それらを混合する。

[0126] 混合条件としては、例えば、熱硬化性樹脂に対して、非層状フィラーおよび層状フィラーが十分に分散される条件が選択される。

[0127] 例えば、自転・公転ミキサー、ディスパー、ビーズミル、ホモミキサー、プラネタリーミキサーなど混合機を用いて、上記した各成分を攪拌混合する。好ましくは、自転・公転ミキサーを用いて、上記した各成分を攪拌混合する。

[0128] 自転・公転ミキサーは、混合物を収容する密閉型の容器（円筒状容器など）を、容器内に位置する回転中心（第1中心）を軸とする回転（自転）と、容器外に位置する回転中心（第2中心）を軸とする回転（公転）とを同時に実施する装置である。また、第1中心の軸と、第2中心の軸とは、平行してもよく、また、交差してもよい。好ましくは、傾斜角（例えば、30度以上、60度以下の傾斜角）で交差する。

[0129] 自転・公転ミキサーであれば、混合物に、自転に基づくせん断力と、公転に基づく遠心力とを同時に与えることができる。これによって、熱硬化性樹脂に対して、非層状フィラーおよび層状フィラーが十分に分散する。

[0130] なお、自転・公転ミキサーは、市販品を用いることができ、具体的には、シンキー社製の「あわとり練太郎」シリーズなどが用いられる。

[0131] 具体的には、混合機が自転・公転ミキサーであれば、自転数の下限が、例えば、1,000rpmであり、また、自転数の上限が10,000rpmである。公転数の下限が、例えば、1,000rpmであり、また、公転数の上限が10,000rpmである。混合時間の下限は、例えば、1分、好ましくは、3分であり、また、その上限は、例えば、30分、好ましくは、10分である。

[0132] また、混合機が自転・公転ミキサーであれば、容器への遠心力の下限が、例えば、10MPa、好ましくは、100MPaであり、また、その上限は

、例えば、10,000 MPaである。

[0133] 混合のタイミングは、各成分の配合中、および、配合後のいずれでもよく、好ましくは、配合中、および、配合後の両方である。具体的には、まず、熱硬化性樹脂、非層状フィラーおよび層状フィラー（さらに添加剤）を配合し、続いて、上記した混合機で攪拌し（第1回目の混合）、その後、溶媒を加え、続いて、それらを上記した混合機で攪拌する（第2回目の混合）。

[0134] なお、第2回目の混合条件は、例えば、第1回目の混合条件と相異なってもよく、また、同一であってもよい。好ましくは、それらは同一である。

[0135] その後、ワニスを、図示しない剥離シートに塗布し、その後、加熱により乾燥させて、シート形状を有する封止用樹脂シートを製造する。

[0136] なお、この封止用樹脂シートは、Bステージ（半硬化状態）であって、具体的には、Cステージ前の状態である。つまり、完全硬化前の状態である。封止用樹脂シートは、上記した乾燥における加熱や、押出混練における加熱によって、Aステージ組成物から、Bステージシートに形成される。

[0137] 封止用樹脂シートの厚みの下限は、例えば、10 μm 、好ましくは、25 μm 、より好ましくは、50 μm である。封止用樹脂シートの厚みの上限は、例えば、3000 μm 、好ましくは、1000 μm 、より好ましくは、500 μm 、さらに好ましくは、300 μm 、とりわけ好ましくは、100 μm である。

[0138] Bステージの封止用樹脂シート1は、TEM観察の薄片状サンプルを確実に作製する観点から、加熱（プレスが伴わない常圧加熱）によってCステージとし、Cステージの封止用樹脂シート1とすることができる。なお、Bステージの封止用樹脂シート1がTEM観察に供されて、取得された一の視野像も、Cステージの封止用樹脂シート1がTEM観察に供されて、取得された一の視野像と実質的に同一である。つまり、Bステージの封止用樹脂シート1における共分散領域3と、Cステージの封止用樹脂シート1における共分散領域3とは、実質的に同一に組織される。

[0139] <封止用多層樹脂シート>

封止用樹脂シートは、封止用多層樹脂シートに、第2封止用樹脂シートとともに備えられてもよい。

[0140] 封止用多層樹脂シートは、封止用樹脂シートと、第2封止用樹脂シートとを厚み方向一方側に順に備える。具体的には、封止用多層樹脂シートは、封止用樹脂シートと、その厚み方向一方向全面に配置される第2封止用樹脂シートとを備える。好ましくは、封止用多層樹脂シートは、封止用樹脂シートと、第2封止用樹脂シートとのみを備える。

[0141] 第2封止用樹脂シートのTEM観察により取得された一の視野像において、非層状フィラー（第2ドメイン6）を含む共分散領域3が観察されない以外は、例えば、上記した封止用樹脂シート1と同様である。

[0142] 第2封止用樹脂シートの厚みの下限は、例えば、 $25\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $50\mu\text{m}$ 、より好ましくは、 $100\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは、 $150\mu\text{m}$ である。第2封止用樹脂シートの厚みの上限は、例えば、 $1000\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $500\mu\text{m}$ 、より好ましくは、 $300\mu\text{m}$ である。

[0143] 封止用多層樹脂シートは、封止用樹脂シートと第2封止用樹脂シートとを貼り合わせるにより、準備される。

[0144] <電子素子パッケージの製造>

封止用樹脂シートによって、素子の一例としての電子素子を封止して、電子素子パッケージを製造する方法を、図3A～図3Dを参照して説明する。

[0145] （封止用樹脂シートを用いる例）

この方法では、図3Aに示すように、まず、封止用樹脂シート1を準備する。封止用樹脂シート1は、厚み方向に互いに対向する厚み方向一方向およびおよび他方面を有する。

[0146] 別途、図3Bに示すように、電子素子21を準備する。

[0147] 電子素子21は、例えば、基板22に複数実装されている。複数の電子素子21と、基板22とは、素子実装基板24に、バンプ23とともに、備えられる。つまり、この素子実装基板24は、複数の電子素子21と、基板22と、バンプ23とを備える。

- [0148] 基板 2 2 は、面方向に延びる略平板形状を有する。基板 2 2 の厚み方向一方向 2 5 には、電子素子 2 1 の電極（図示せず）と電氣的に接続される端子（図示せず）が設けられている。
- [0149] 複数の電子素子 2 1 のそれぞれは、面方向に延びる略平板形状（チップ形状）を有する。複数の電子素子 2 1 は、互いに面方向に間隔を隔てて配置されている。複数の電子素子 2 の厚み方向他方面 2 8 は、基板 2 2 の厚み方向一方向 2 5 に平行する。複数の電子素子 2 1 のそれぞれの厚み方向他方面 2 8 には、電極（図示せず）が設けられている。電子素子 2 1 の電極は、次に説明するバンプ 2 3 を介して、基板 2 2 の端子と電氣的に接続されている。なお、電子素子 2 1 の厚み方向他方面 2 8 は、基板 2 2 の厚み方向一方向 2 5 との間に隙間（空間）2 6 が隔てられる。
- [0150] バンプ 2 3 は、複数の電子素子 2 1 のそれぞれの電極（図示せず）と、基板 2 2 のそれぞれの端子とを電氣的に接続する。バンプ 2 3 は、電子素子 2 1 の電極と、基板 2 2 の端子の間に配置される。バンプ 2 3 の材料としては、例えば、半田、金などの金属などが挙げられる。バンプ 2 3 の厚みは、隙間 2 6 の厚み（高さ）に相当する。バンプ 2 3 の厚みは、素子実装基板 2 4 の用途および目的に応じて適宜設定される。
- [0151] 次いで、図 3 B に示すように、封止用樹脂シート 1 を、複数の電子素子 2 1 に配置する。具体的には、封止用樹脂シート 1 の厚み方向他方面を、複数の電子素子 2 1 の厚み方向一方向に接触させる。
- [0152] 次いで、図 3 C に示すように、封止用樹脂シート 1 および素子実装基板 2 4 を、プレスする。好ましくは、封止用樹脂シート 1 および素子実装基板 2 4 を、低温で熱プレスする。
- [0153] 例えば、2 つの平板を備えるプレス 2 7 により、封止用樹脂シート 1 および素子実装基板 2 4 を厚み方向に挟みながら、それらをプレスする。なお、プレス 2 7 の平板には、例えば、図示しない熱源を備えられる。
- [0154] プレス条件（圧力、時間、さらには、温度など）は、特に限定されず、複数の電子素子 2 1 間に封止用樹脂シート 1 が進入できる一方、素子実装基板

24が損傷しない条件が選択される。より具体的には、プレス条件は、封止用樹脂シート1にせん断応力を十分に付与して、これにより、封止用樹脂シート1が流動して、隣接する電子素子21間に進入し、複数の電子素子21のそれぞれの周側面を被覆しつつ、電子素子21と平面視で重複しない基板22の厚み方向一方向25に接触できるように、設定される。

[0155] 具体的には、プレス圧の下限は、例えば、0.05MPa、好ましくは、0.1MPaである。プレス圧の上限は、例えば、10MPa、好ましくは、5MPaである。プレス時間の下限は、例えば、0.3分、好ましくは、0.5分である。プレス時間の上限は、例えば、10分、好ましくは、5分である。

[0156] 具体的には、加熱温度の下限は、例えば、40℃、好ましくは、60℃である。加熱温度の上限は、例えば、100℃、好ましくは、95℃である。

[0157] 封止用樹脂シート1のプレス（せん断応力の付与）によって、封止用樹脂シート1は、電子素子21の外形に対応して塑性変形する。封止用樹脂シート1の厚み方向他方向は、複数の電子素子21の厚み方向一方向および周側面に対応する形状に変形する。

[0158] なお、封止用樹脂シート1は、Bステージを維持しながら、塑性変形する。

[0159] これによって、封止用樹脂シート1は、複数の電子素子21のそれぞれの周側面を被覆しつつ、平面視において、電子素子21と重複しない基板22の厚み方向一方向25に接触する。

[0160] これによって、電子素子21を封止する封止体31が、封止用樹脂シート1から形成（作製）される。封止体31の厚み方向一方向は、平坦面になる。

[0161] その後、図3Dに示すように、封止体31を加熱して、封止体31から硬化体41を形成する。

[0162] 具体的には、封止体31および素子実装基板24をプレス27から取り出し、続いて、封止体31および素子実装基板24を乾燥機で、大気圧下で、

加熱する。

- [0163] 加熱温度（キュア温度）の下限は、例えば、100℃、好ましくは、120℃である。加熱温度（キュア温度）の上限は、例えば、200℃、好ましくは、180℃である。加熱時間の下限は、例えば、10分、好ましくは、30分である。加熱時間の上限は、例えば、180分、好ましくは、120分である。
- [0164] 上記した封止体31の加熱によって、封止体31から、Cステージ化（完全硬化）した硬化体41が形成される。硬化体41の厚み方向一方向は、露出面である。
- [0165] なお、隙間へのわずかな進入が許容された封止体31の端縁が、隙間26の内部にさらにわずかに進入して、硬化体41となることが許容されるが、その程度は、可及的に小さく抑制される。
- [0166] そして、この封止用樹脂シート1は、図1～図2に示すように、非層状フィラーから形成される第1ドメイン5と、層状フィラーから形成される第2ドメイン6とを含み、第2ドメイン6が第1ドメイン5間に位置する共分散領域3を有する。そのため、熱硬化性樹脂が加熱により一旦軟化して、マトリクス4が流動し易くなっても、共分散領域3によって、封止用樹脂シート1の材料（混合物）の流動を可及的に抑制できる。そのため、図3Dに示すように、硬化体41を形成するときに、電子素子21および基板22間への硬化体41の進入量を低減することができる。
- [0167] 封止用樹脂シート1を、サイズやデザインが異なる複数の電子素子21、さらには、サイズやデザインが異なる端子に接続される複数の電子素子21に配置し、これを加熱して硬化体41を形成するときに、これらの隙間への硬化体41の進入量を制御して、複数の電子素子21を均一に封止することができる。
- [0168] また、上記式（1）（ $0.2 < a/b < 5$ ）を満足すれば、電子素子21の周側面を確実に被覆して、良好な封止特性を担保しながら、電子素子21および基板22間への硬化体41の進入量を低減することができる。

- [0169] さらに、第2ドメインの最大長さAの平均値aが、第1ドメインの最大長さBの平均値bより大きい場合には、電子素子21および基板22間への硬化体41の進入量をより一層低減することができる。
- [0170] また、第2ドメイン6の最大長さAの平均値aが、 $1\mu\text{m}$ 以上であれば、封止用樹脂シート1の材料の流動を可及的に抑制できる。第2ドメイン6の最大長さAの平均値aが、 $10\mu\text{m}$ 以下であれば、硬化体41が、電子素子21の周側面を確実に被覆することができる。
- [0171] 一の視野像で確認される第2ドメイン6が、2以上のアスペクト比を有すれば、封止用樹脂シート1の材料の流動を可及的に抑制できる。
- [0172] 一の視野像で確認される第1ドメイン5が、略円形状を有すれば、強度に優れる硬化体41を形成できる。
- [0173] (封止用多層樹脂シートを用いる例)
封止用多層樹脂シート11によって、複数の電子素子21を封止し、続いて、硬化体41を形成して、電子素子硬化体パッケージ50を製造する方法を、図4A～図4Dを参照して説明する。
- [0174] 図4Aに示すように、封止用多層樹脂シート11を準備する。具体的には、封止用樹脂シート1と第2封止用樹脂シート12とを貼り合わせる。
- [0175] 図4Bに示すように、基板22に実装される複数の電子素子21を準備する。
- [0176] 続いて、封止用樹脂シート1の厚み方向他方面が電子素子21の厚み方向一方面に接触するように、封止用多層樹脂シート11を電子素子21に配置する。
- [0177] 図4Cに示すように、その後、封止用樹脂シート1および素子実装基板24を、プレスする。
- [0178] プレスによって、封止用樹脂シート1は、流動し、隣接する電子素子21間に進入する。
- [0179] 一方、第2封止用樹脂シート12は、共分散領域3を有しないことから、プレスされても、流動性が向上せず、隣接する電子素子21間に進入するこ

とが抑制される。

[0180] これにより、封止用多層樹脂シート 1 1 から、複数の電子素子 2 1 を封止する封止体 3 1 が形成される。

[0181] なお、封止用樹脂シート 1 が上記した下限以上の割合で非層状フィラーを含有し、第 2 封止用樹脂シート 1 2 が上記した下限以上の割合で非層状フィラーを含有すれば、次の図 4 C に示すプレスによって、封止用樹脂シート 1 と第 2 封止用樹脂シート 1 2 とが、流動できる。

[0182] このとき、封止用樹脂シート 1 は、電子素子 2 1 に接触する一方、第 2 封止用樹脂シート 1 2 は、封止用樹脂シート 1 に対して電子素子 2 1 の反対側に位置する。つまり、封止体 3 1 において隙間 2 6 に面する端縁は、封止用樹脂シート 1 から形成される。一方、封止体 3 1 の厚み方向一方向は、第 2 封止用樹脂シート 1 2 から形成される。

[0183] その後、図 4 D に示すように、封止体 3 1 を加熱して、封止体 3 1 から硬化体 4 1 を形成する。

[0184] この封止用多層樹脂シート 1 1 も、上記した封止用樹脂シート 1 と同じ作用効果を奏することができる。

[0185] とりわけ、封止用樹脂シート 1 および第 2 封止用樹脂シート 1 2 が、50℃以上、130℃以下の軟化点を有するエポキシ樹脂の主剤を含有すれば、図 4 C に示す工程において、封止用樹脂シート 1 および第 2 封止用樹脂シート 1 2 が流動できる。従って、図 4 C に示す工程の時間短縮、および、図 4 C に示す工程における第 2 封止用樹脂シート 1 2 の厚み方向一方向を平坦にできる。

[0186] さらに、封止用樹脂シート 1 および第 2 封止用樹脂シート 1 2 が、エポキシ樹脂の主剤とともにフェノール樹脂を硬化剤として含有すれば、硬化体 4 1 が、高い耐熱性と高い耐薬品性を有する。従って、硬化体 4 1 は、封止信頼性に優れる。

[0187] なお、図 4 C に示す工程において、第 2 封止用樹脂シート 1 2 は、押圧力を受けて流動化し、厚み方向一方向が平坦になる。また、図 4 C に示す工程

において、封止用多層樹脂シート 1 1 では、上述のように、第 2 封止用樹脂シート 1 2 とともに封止用樹脂シート 1 が、押圧力を受けて軟化流動して、電子素子 2 1 の外形に追従して変形する。図 4 C に示す工程では、封止用樹脂シート 1 が、隙間 2 6 にわずかに進入することが許容される。

[0188] そして、図 4 D に示す工程では、封止用樹脂シート 1 は、昇温に伴う複素粘度 η^* の低下に基づいて、流動が抑制され、隙間 2 6 への過度の進入が抑制される。すなわち、封止用樹脂シート 1 を含む封止用多層樹脂シート 1 1 が硬化した硬化体 4 1 では、硬化体進入長さ Y を低減できる。

[0189] 変形例

以下の各変形例において、上記した一実施形態と同様の部材および工程については、同一の参照符号を付し、その詳細な説明を省略する。また、各変形例は、特記する以外、一実施形態と同様の作用効果を奏することができる。さらに、一実施形態およびその変形例を適宜組み合わせることができる。

[0190] 図示しないが、一の視野像において、封止用樹脂シート 1 は、第 2 ドメイン 6 が第 1 ドメイン 5 間に位置せず、周囲をマトリクス 4 のみに囲まれる第 2 ドメイン 6 の単分散領域を有することもできる。同時に、一の視野像において、封止用樹脂シート 1 は、第 1 ドメイン 5 がマトリクス 4 のみに囲まれる単分散領域を有する。

[0191] また、混合物の調製において、溶媒を用いずに、熱硬化性樹脂、非層状フィラーおよび層状フィラーを混合することもできる。この場合には、熱硬化性樹脂、非層状フィラーおよび層状フィラーを、公知の混練機を用いて、混練する。

[0192] 封止用多層樹脂シート 1 1 における第 2 封止用樹脂シート 1 2 は、多層であってもよい。

[0193] 素子の一例として、基板 2 2 の厚み方向一方向 2 5 に対して隙間 2 6 を隔てて配置される電子素子 2 1 を挙げ、これを封止用樹脂シート 1 で封止したが、例えば、図示しないが、基板 2 2 の厚み方向一方向 2 5 に接触する電子素子 2 1 を挙げることができ、これを封止用樹脂シート 1 で封止することが

できる。

- [0194] また、素子の一例として、電子素子 21 を挙げたが、半導体素子を挙げることもできる。

実施例

- [0195] 以下に調製例、実施例および比較例を示し、本発明をさらに具体的に説明する。なお、本発明は、何ら調製例、実施例および比較例に限定されない。また、以下の記載において用いられる配合割合（含有割合）、物性値、パラメータなどの具体的数値は、上記の「発明を実施するための形態」において記載されている、それらに対応する配合割合（含有割合）、物性値、パラメータなど該当記載の上限（「以下」、「未満」として定義されている数値）または下限（「以上」、「超過」として定義されている数値）に代替することができる。

- [0196] 調製例で使用了各成分を以下に示す。

- [0197] 層状フィラー：ホーゲン社製のエスベン NX（表面がジメチルジステアリルアンモニウムで変性された有機化ベントナイト）（ケイ酸塩化合物）

主剤：新日鐵化学社製の YSLV-80XY（ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、エポキシ当量 200 g / eq.、軟化点 80℃）

硬化剤：群栄化学社製の LVR-8210DL（ノボラック型フェノール樹脂、潜在性硬化剤、水酸基当量：104 g / eq.、軟化点：60℃）

硬化促進剤：四国化成工業社製の 2PHZ-PW（2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール）

アクリル樹脂：根上工業社製の HME-2006M、カルボキシル基含有のアクリル酸エステルコポリマー（アクリル系ポリマー）、重量平均分子量：60 万、ガラス転移温度（T_g）：-35℃、固形分濃度 20 質量%のメチルエチルケトン溶液

シランカップリング剤：信越化学社製の KBM-403（3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン）

第 1 非層状フィラー：FB-8SM（球状熔融シリカ粉末（無機フィラ

一)、メジアン径 $7.0\mu\text{m}$)

第2非層状フィラー：アドマテックス社製のSC220G-SMJ（平均粒径 $0.5\mu\text{m}$ ）を3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学社製の製品名：KBM-503）で表面処理した無機フィラー。無機フィラーの100質量部に対して1質量部のシランカップリング剤で表面処理した無機フィラー。

[0198] カーボンブラック：三菱化学社製の#20、顔料、粒子径 50nm

[0199] 調製例1～調製例6および比較調製例1

表1に記載の配合処方に従って、各成分を容器に配合して、混合物を容器内で調製し、続いて、容器を自転・公転ミキサーにセットして、混合物を攪拌し（第1回目の混合）した。その後、容器に適量の溶媒（メチルエチルケトン）を加え、その後、さらに、自転・公転ミキサーにセットして、溶媒を含む混合物を攪拌した（第2回目の混合）。

[0200] 自転・公転ミキサーの種類・条件等を下記に示す。

自転・公転ミキサー：あわとり練太郎、型式「AR-100」

（第1回目の混合）

自転数： 2000rpm

公転数： 2000rpm

混合時間：5分

（第2回目の混合）

自転数： 2000rpm

公転数： 2000rpm

混合時間：5分

これによって、混合物のワニスを調製した。

[0201] 次いで、ワニスを剥離シートの表面に塗布した後、 120°C で、2分間乾燥させて、厚み $65\mu\text{m}$ の封止用樹脂シート1を作製した。封止用樹脂シート1は、Bステージであった。

[0202] 調製例7

表2に記載の配合処方に従って、調製例1と同様の手法によって、混合物のワニス調製した。続いて、ワニスを剥離シートの表面に塗布した後、120℃で、2分間乾燥させて、厚み195 μm の第2封止用樹脂シート12を作製した。第2封止用樹脂シート12は、Bステージであった。

[0203] 実施例1～6および比較例1

表3に示すような調製例の組合せで、封止用樹脂シートと第2封止用樹脂シートとを張り合わせて、厚み260 μm の封止用多層樹脂シートを作製した。

[0204] 評価

下記項目を評価した。その結果を、表3に記載する。

<TEM観察>

(1) 共分散領域の有無

まず、実施例1～6および比較例1の封止用多層樹脂シートのそれぞれを、150℃、1時間加熱して、Cステージシートを作製した。Cステージシートのサンプリングによって、サンプル（薄片）を作製した。具体的には、CステージシートをFIB加工装置（日立社製のFIB2200）にセットし、加速電圧10～40kVのイオンビームと、微小プローブとを用いて、Cステージシートを厚み方向に切断して、サンプルを取得した。

[0205] その後、電界放射型透過電子顕微鏡（FE-TEM）（JEOL社製のJEM-2800）によって、加速電圧200kVで、Cステージシートの断面を観察した。

[0206] TEM観察の一の視野像から、第2ドメイン6が第1ドメイン5間に位置する共分散領域3の有無を確認した。

[0207] 実施例3におけるCステージシートのTEM写真の一の視野像（画像処理図）を図1～図2に示す。

[0208] (2) 第1ドメインの最大長さBの平均値b、第2ドメイン6の最大長さAの平均値a、 a/b

上記した第1工程～第4工程を実施して、第1ドメインの最大長さBの平

均値 b 、第2ドメイン6の最大長さ A の平均値 a の算出のそれぞれを算出した。続いて、 a/b を求めた。

[0209] (3) マトリクス領域の面積割合、および、第1ドメインの数の割合
マトリクス領域の面積割合、および、第1ドメインの数の割合等を求めた。

[0210] <硬化体の評価>

(1) 硬化体進入長さ

下記のステップA～ステップEを実施して、硬化体進入長さ Y を測定した。

[0211] ステップA：図5Aに示すように、各実施例および各比較例の封止用多層樹脂シート11から、縦10mm、横10mm、厚み260 μ mのサンプルシート61を準備する。

[0212] ステップB：図5Bに示すように、縦3mm、横3mm、厚み200 μ mのダミー素子71が、厚み20 μ mのバンプ23を介してガラス基板72に実装されたダミー素子実装基板74を準備する。

[0213] ステップC：図5Cに示すように、サンプルシート61によって、ダミー素子実装基板74におけるダミー素子71を、真空平板プレスにより、温度65℃、圧力0.1MPa、真空度1.6kPa、プレス時間1分で封止して、サンプルシート61から封止体31を形成する。

[0214] ステップD：図5Dに示すように、封止体31を、150℃、大気圧下、1時間加熱により熱硬化させて、封止体31から硬化体41を形成する。

[0215] ステップE：図5Dの拡大図に示すように、ダミー素子71の側端縁75を基準として、側端縁75からダミー素子71とガラス基板72との隙間26に硬化体41が進入する硬化体進入長さ Y を測定する。

[0216] そして、下記の基準に従って、硬化体進入長さ Y を評価した。

○：硬化体進入長さ Y が、0 μ m以上、20 μ m以下であった。

△：硬化体進入長さ Y が、20 μ m超過、30 μ m以下、または、0 μ m未満、-5 μ m以上であった。

×：硬化体進入長さYが、 $30\mu\text{m}$ 超過、または、 $-5\mu\text{m}$ 未満であった。

[0217] なお、評価中、「マイナス」は、ダミー素子71の側端縁75より外側に突出する空間（図5Dの太い破線参照）が形成されることを意味する。「マイナス」の絶対値が、その空間の突出長さに相当する。

[0218]

[表1]

混合物			調製例1	調製例2	調製例3	調製例4	調製例5	調製例6	比較調製例1	
層状フィラー	有機ペントナイト (ジメチルジステアリル アンモニウム変性)	エスペンNX	(部)	0.43	0.57	0.71	0.86	1	1.43	0
		混合物における含有割合	[%]	3	4	5	6	7	10	0
		非層状フィラー100部に対する部数	(部)	4	6	7	9	10	14	0
		主剤	(部)	1.8	1.73	1.66	1.59	1.52	1.31	2.01
熱硬化性樹脂 (エポキシ樹脂 組成物)	エポキシ樹脂	YSLV-80XY	(部)	0.98	0.94	0.9	0.87	0.83	0.712	1.01
		硬化剤	(部)	0.026	0.025	0.024	0.023	0.022	0.02	0.029
		硬化促進剤	(部)	13	12	12	11	11	9	14
		混合物における主剤の割合	[%]	64	64	64	64	64	64	66
熱硬化性樹脂	熱硬化性樹脂における主剤の割合	混合物における主剤の割合	[%]	54	54	54	55	55	54	50
		主剤100部に対する硬化剤の部数	(部)	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.5	1.4
		主剤100部に対する硬化促進剤の部数	(部)	20	19	18	17	17	14	21
		混合物における熱硬化性樹脂の含有割合	[%]	0.79	0.76	0.73	0.7	0.67	0.58	0.87
熱可塑性樹脂	アクリル樹脂(固形分のみ)	HME-2006M	(部)	6	5	5	5	5	4	6
		混合物における熱可塑性樹脂の割合	[%]	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
		シランカップリング剤	(部)	1	1	1	1	1	1	1
		混合物におけるシランカップリング剤の含有割合	[%]	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5
非層状フィラー	第1非層状フィラー	FB-8SM	(部)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
		第2非層状フィラー	(部)	70	70	70	70	70	70	70
		含有割合	[%]	45	46	46	45	45	45	46
		混合物における第1非層状フィラーの含有割合	[%]	54	54	54	54	54	54	54
顔料	カーボンブラック	第1非層状フィラー100質量部に対する第2非層状フィラーの部数	(部)	0.12	0.11	0.11	0.1	0.099	0.086	0.13
		#20	(部)	1	1	1	1	1	1	1
		混合物に対する顔料の割合	[%]	1	1	1	1	1	1	1

混合物の処方

[0219]

[表2]

混合物					調製例7
熱硬化性樹脂 (エポキシ樹脂 組成物)	主剤	エポキシ樹脂	YSLV-80XY	(部)	1.84
	硬化剤	フェノール樹脂	LVR-8210DL	(部)	1
	硬化促進剤	イミダゾール系	2PHZ-PW	(部)	0.02
	混合物における主剤の割合			[%]	7
	熱硬化性樹脂における主剤の割合			[%]	64
	主剤100部に対する硬化剤の部数			(部)	54
	主剤100部に対する硬化促進剤の部数			(部)	1.1
	混合物における熱硬化性樹脂の含有割合			[%]	11
熱可塑性樹脂	アクリル樹脂(固形分のみ)		HME-2006M	(部)	0.17
シランカップリング剤	混合物における熱可塑性樹脂の割合			[%]	1
	グリシジル基含有			(部)	0.35
	混合物におけるシランカップリング剤の含有割合			[%]	1
	第1非層状フィラー			(部)	15.15
非層状フィラー	第2非層状フィラー		FB-8SM	(部)	8.16
	含有割合			[%]	87
	混合物における第1非層状フィラーの含有割合			[%]	57
	第1非層状フィラー100質量部に対する第2非層状フィラーの部数			(部)	54
顔料	カーボンブラック		#20	(部)	0.1
	混合物に対する顔料の割合			[%]	0

混合物の処方

表2

[0220] [表3]

表3

封止用多層樹脂シート		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	
第2封止用樹脂シート		調製例7	調製例7	調製例7	調製例7	調製例7	調製例7	調製例7	
封止用樹脂シート		調製例1	調製例2	調製例3	調製例4	調製例5	調製例6	比較調製例1	
封止用樹脂 シートの物性等	共分散領域の有無		あり	あり	あり	あり	あり	なし	
	第1ドメイン	形状	円形	円形	円形	円形	円形	円形	
		最大長さBの平均値b	1.1	0.7	1.1	0.6	2.5	0.3	0.8
	第2ドメイン	形状	層状(板状)	層状(板状)	層状(板状)	層状(板状)	層状(板状)	層状(板状)	—
		最大長さAの平均値a	1.3	2.1	1.8	1.5	2.0	1.0	—
	a/b		1.2	3.0	1.7	2.5	0.8	3.5	—
封止用多層樹脂 シートの評価		○	○	○	○	△	△	×	

なお、上記発明は、本発明の例示の実施形態として提供したが、これは単なる例示に過ぎず、限定的に解釈してはならない。当該技術分野の当業者に

よって明らかな本発明の変形例は、後記請求の範囲に含まれる。

産業上の利用可能性

[0221] 封止用樹脂シートは、素子の封止に用いられる。

符号の説明

[0222] 1 封止用樹脂シート

3 共分散領域

4 マトリクス

5 第1ドメイン

6 第2ドメイン

21 電子素子21

A 最も大きな第2ドメインの最大長さ

B 最も大きな第1ドメインの最大長さ

a 第2ドメインの最大長さの平均値

b 第1ドメインの最大長さの平均値