(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
2010 年 7 月 1 日(01.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/073457 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 33/18 (2006.01) *H01L 23/29* (2006.01)
C01B 33/12 (2006.01) *H01L 23/31* (2006.01)
C01F 7/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/005730

(22) 国際出願日: 2009 年 10 月 29 日(29.10.2009)

(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 2008-324881 2008 年 12 月 22 日(22.12.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社(DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町２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): 西泰久(NISHI, Yasuhisa) [JP/JP]; 〒8368510 福岡県大牟田市新開町１番地　電気化学工業株式会社　大牟田工場内 Fukuoka (JP). 村田弘(MURATA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒8368510 福岡県大牟田市新開町１番地　電気化学工業株式会社　大牟田工場内 Fukuoka (JP).

(74) 代理人: 正林真之，外(SHOBAYASHI, Masayuki et al.); 〒1700013 東京都豊島区東池袋１丁目２５番８号　タカセビル本館 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, CL, 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, JP, 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, PE, 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 (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2010/073457 A1

(54) **Title**: POWDER, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND RESIN COMPOSITION CONTAINING SAME

(54) 発明の名称 : 粉末、その製造方法、及びその粉末を含む樹脂組成物

(57) **Abstract**: Provided is a semiconductor sealing material in which the contamination rate of conductive foreign matter is extremely low. Further provided are powder comprising spherical silica powder and/or spherical alumina powder suitable for preparing such a semiconductor sealing material, a method for producing the same, and a resin composition. The powder comprises spherical silica powder and/or spherical alumina powder, and when a color reaction test for particles using an aqueous potassium ferricyanide solution under specific conditions is performed for magnetizable particles having a particle size of 45 μm or more, the ratio of the number of particles which develop color to the total number of the magnetizable particles is 20% or less. Such powder can be produced by supplying a specific amount of oxygen gas and/or water vapor to at least one arbitrary site at which the atmospheric temperature is 1600 to 1800°C in a furnace at an angle of 60° to 90° with respect to the injection direction of a starting material of the powder, and setting the relative velocity of the starting material of the powder and/or the spherical powder to stainless steel and/or iron to 5 m/s or less.

(57) 要約: 本発明の課題は、導電性異物の混入率が極めて少ない半導体封止材を提供することであり、また、そのような半導体封止材を調製するのに好適な球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末、その製造方法、及び樹脂組成物を提供することである。 本発明に係る粉末は、粒子径が４５μｍ以上の着磁性粒子について、特定条件でフェリシアン化カリウム水溶液による粒子呈色反応試験を行ったときに、呈色した粒子の個数割合が、着磁性粒子の総個数に対して２０%以下である、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末である。このような粉末は、炉内のうち雰囲気温度が１６００～１８００℃となっている任意の少なくとも１個所に、特定量の酸素ガス及び／又は水蒸気を粉末原料の噴射方向に対し６０°～９０°の角度にて供給し、粉末原料及び／又は球状粉末とステンレス鋼及び／又は鉄との相対速度を５ｍ／ｓ以下にすることによって製造できる。

明　細　書

発明の名称 ：

粉末、その製造方法、及びその粉末を含む樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末、その製造方法及びその粉末を含む樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 電子機器の小型軽量化及び高性能化の要求に対応して、半導体の小型化、薄型化、及び高密度実装化が急速に進展している。このため、半導体の構造は、従来のＱＦＰやＳＯＰなどのリード端子型の構造よりも、薄型化及び高密度実装化に有利なＢＧＡやＬＧＡなどのエリアアレイ型の構造が増えつつある。さらに、近年では、一つの半導体パッケージ内に複数のＩＣチップが積層されたスタックドチップ構造も積極的に採用されるようになっており、半導体構造の複雑化及び高密度実装化がますます進んでいる。また、半導体の小型化、薄型化、及び高密度実装化に伴い、半導体内部の金ワイヤーの配線間隔も狭くなっており、最新の半導体では、金ワイヤーの間隔が５０μｍ程度のものも実用化され始めている。

[0003] 一方、半導体をパッケージング（封止）する半導体封止材には、熱膨張率を下げる、熱伝導率を上げる、難燃性を向上させる、耐湿性を向上させる等の目的で、シリカ質粉末やアルミナ質粉末などのフィラーが充填されているが、これらの粉末には、その製造工程において、微細な金属質粒子が異物として混入することがある。これは、シリカ質粉末及びアルミナ質粉末などのフィラーの製造設備の一部が、一般には、鉄やステンレス鋼などの金属で作られており、その表面が、上記粉末を粉砕する際や、気流で輸送する際、分級、篩分けを行う際、ブレンドを行う際などに、粉末により削られるためである。このように、半導体封止材に充填されるシリカ質粉末及びアルミナ質粉末などに導電性の金属質粒子が混入していると、この導電性の金属質粒子

によって半導体のワイヤー等の配線間の短絡（ショート）が引き起こされる可能性が高くなってしまう。このため、シリカ質粉末及びアルミナ質粉末などに混入している導電性の金属質粒子を除去あるいは無害化（非導電化）する試みが種々検討されている。

[0004] シリカ質粉末及びアルミナ質粉末中の金属質粒子を除去あるいは無害化（非導電化）する技術としては、金属質粒子を含んだ球状シリカ粉末を硫酸水溶液中に入れ、金属質粉末を溶解し、除去する方法が開示されている（特許文献１）。しかしながら、この方法では、酸処理後の球状シリカ粉末を洗浄、加熱乾燥、解砕させる必要があり、多大なコストがかかるばかりでなく、加熱乾燥工程、粉末化のための解砕工程で、金属質粉末が再び混入してしまうリスクが大きいという問題点がある。また、残留する硫酸イオンのために、該球状シリカ粉末を充填した半導体封止材の信頼性が低下してしまう問題も発生する。一方、金属質粉末を酸化し、非導電化する目的で、金属質粒子を含んだ破砕状シリカを、大気中、７００～１５００℃の温度領域で加熱し、金属質粒子を酸化させることも開示されている（特許文献２）。この方法では、シリカ質粉末を高温で加熱するために、シリカ粉末どうしが融着、凝集してしまう問題や、シリカ質粉末の中に埋もれている金属質粒子がすべて酸化されないという問題がある。また、金属質粒子が酸化されたとしても、加熱温度が低温であるため、酸化皮膜は金属質粒子の表面のみであり、酸化皮膜の厚みや機械的強度によっては、酸化皮膜が破壊した際に、金属質粒子が再び導電性を有する粒子となる問題もあり、上記方法が根本的な解決策とはなっていないのが実情である。一方、シリカ質粉末原料及び／又はアルミナ質粉末原料を炉内に形成された火炎で溶融、球状化処理した後、炉外に搬送して球状粉末を捕集する方法において、炉内壁への粉末の付着を防止するため、空気、酸素ガス等のガスを炉内に噴射する方法が提案されている（特許文献３、４）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２００７－００５３４６号公報

特許文献2：特開２００４－１７５８２５号公報

特許文献3：特開２００１－２３３６２７号公報

特許文献4：特開昭６０－１０６５２４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の目的は、小型化、高密度化した半導体の封止に用いられる、導電性異物の混入率が少ない半導体封止材を調製するのに好適な球状のシリカ質粉末及び／又はアルミナ質粉末からなる粉末、その製造方法、及び樹脂組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、以下の方法で呈色反応試験を行ったときに、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合が、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数に対して２０％以下である、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末を提供する。

（１）５０ｇの粉末試料を精秤し、それをイオン交換水８００ｇに分散させてスラリーを調製する。

（２）厚み２０μｍのゴム製カバーを被せた１００００ガウスの棒磁石を、上記スラリーに浸漬して着磁性粒子を捕獲し、それを目開き４５μｍのポリエステル製フィルターで篩う。フイルター上に残った粒子を、「粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数」とみなし、その個数を数える。

（３）上記フイルター上の粒子に、２０℃の室温下、塩酸１０質量%水溶液、プロピレングリコール５０質量%水溶液およびフェリシアン化カリウム０．５質量%水溶液の等質量混合溶液を約０．５ｍｌ滴下して粒子を湿潤させ、２０分間放置する。その結果、呈色した粒子を「粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子」とみなし、その個数を数える。式、（粒子径が４５μｍ

以上の着磁性呈色粒子の個数）×１００／（粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の総個数）、により、粒子径が４５μｍ以上の着磁性粒子に存在する粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合を算出する。

（４）つぎに、呈色反応試験を終えた粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子を選び、エポキシ樹脂で包埋し硬化させた後、切断・研磨して粒子断面を露出させ、断面の中心に存在する酸素の有無をエネルギー分散型Ｘ線分光器（ＥＤＳ）で分析する。その結果、断面の中心から酸素が検出された粒子を「中心部まで酸化されている粒子」とみなし、その個数を数える。式、（中心部まで酸化されている粒子の個数）×１００／（粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の個数）、により、粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子に存在する中心部まで酸化されている粒子の個数割合を算出する。なお、ＥＤＳの分析条件は、加速電圧１５ｋＶ、照射電流１０ｎＡ、倍率２０００倍、画素あたりの積算時間１００ｍｓｅｃ、画素サイズ０．２μｍ□、画素数２５６×２５６ｐｉｘｅｌｓである。

[0008] 本発明にあっては、（ｉ）粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数が、粉末５０ｇあたり５個以下であること、（ｉｉ）粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の総個数が、粉末５０ｇあたり５０個以下であること、（ｉｉｉ）中心部まで酸化されている粒子の個数割合が６０％以上、特に７０％以上であること、又は（ｉｖ）粉末の平均球形度が０．７５以上、平均粒子径が３～５０μｍであることが好ましい。

[0009] また、本発明は、シリカ質粉末原料及び／又はアルミナ質粉末原料を炉内に形成された火炎で溶融し、球状化処理した後、炉外に搬送して球状粉末を捕集する工程を有し、この工程が、炉内のうち雰囲気温度が１６００～１８００℃となっている任意の少なくとも１個所に、原料粉末１ｋｇあたり０．３～０．６m^3の酸素ガス及び／又は水蒸気を、粉末原料の噴射方向に対し６０°～９０°の角度にて供給する工程、及び、粉末原料の溶融、球状化処理

から球状粉末の捕集までの間において、粉末原料及び／又は球状粉末とステンレス鋼及び／又は鉄とが接触する部分におけるこれらの相対速度を５ｍ／ｓ以下にする工程を有する、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末の製造方法も提供する。この発明においては、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末が、上記した本発明の粉末のいずれかであることが好ましい。

[0010] また、本発明は、本発明の粉末を含有してなる樹脂組成物も提供する。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、小型化、高密度化した半導体の封止に用いられる導電性異物の混入率が少ない半導体封止材を調製するのに好適な球状のシリカ質粉末及び／又はアルミナ質粉末からなる粉末、その製造方法、及び樹脂組成物が提供される。

発明を実施するための形態

[0012] 本発明の粉末は、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる。シリカ質粉末を用いた半導体封止材は、シリカ質粉末以外の酸化物粉末を用いたものよりも熱膨張率が低くなる利点を有する。また、アルミナ質粉末を用いた半導体封止材は、アルミナ質粉末以外の酸化物粉末を用いたものよりも熱伝導率が高くなる利点を有する。シリカ質粉末及び／又はアルミナ質粉末からなる粉末は、それぞれ単独の粉末であってもよく、両者の混合粉末であってもよい。

[0013] 本発明の粉末の平均球形度は０．７５以上が好ましく、特に好ましくは０．８０以上、更に好ましくは０．９０以上である。このような平均球形度によって、半導体封止材の粘度が低下し、封止時のワイヤー流れなどの不具合の発生を容易に低減させることができる。平均球形度は、以下のようにして測定する。すなわち、実体顕微鏡（ニコン社製商品名「モデルＳＭＺ－１０型」）にて撮影した粒子像を画像解析装置（マウンテック社製商品名「ＭａｃＶｉｅｗ」）に取り込み、写真から粒子の投影面積（Ａ）と周囲長（ＰＭ）を測定する。周囲長（ＰＭ）に対応する真円の面積を（Ｂ）とすると、そ

の粒子の球形度はＡ／Ｂである。試料の周囲長（ＰＭ）と同一の周囲長を持つ真円を想定すると、ＰＭ＝２πｒ、Ｂ＝πｒ^{2}であるから、Ｂ＝π×（ＰＭ／２π）^{2}であり、個々の粒子の球形度は、Ａ／Ｂ＝Ａ×４π／（ＰＭ）^{2}で求められる。このようにして任意の粒子２００個の球形度を求め、その平均値を平均球形度とする。

[0014] 本発明の粉末の平均粒子径は３～５０μｍであることが好ましい。平均粒子径が３μｍ未満であると、半導体封止材の粘度が上昇し、封止時に半導体のワイヤーが変形するという不具合が発生する恐れがある。一方、平均粒子径が５０μｍを超えると、粒子が粗すぎて半導体チップを傷つけたり、粗い粒子が半導体のワイヤーに衝突してワイヤーが変形したりする恐れがある。特に好ましい平均粒子径は５～４５μｍである。平均粒子径とは、粉末の累積粒度分布において、累積値５０質量%である粒子径のことであり、レーザー回折散乱法による粒度測定に基づいて測定することができる。本発明においては、シーラス社製商品名「シーラスグラニュロメーター　モデル９２０」の測定機を用い、水と粉末とを混合し、超音波ホモジナイザーで２００Ｗの出力で１分間かけて粉末を分散処理してから測定する。なお、粒子径チャンネルは、１、１．５、２、３、４、６、８、１２、１６、２４、３２、４８、６４、９６、１２８、１９６μｍである。

[0015] 本発明のシリカ質粉末の非晶質率（溶融率）は９８質量%以上であることが好ましい。非晶質率は、粉末Ｘ線回折装置（ＲＩＧＡＫＵ社製商品名「モデルＭｉｎｉ　Ｆｌｅｘ」）を用い、ＣｕＫα線の２θが２６°～２７．５°の範囲においてＸ線回折分析を行い、特定回折ピークの強度比から測定する。シリカ質粉末の場合、結晶質シリカでは２６．７°に主ピークが存在するが、非晶質シリカではピークが存在しない。非晶質シリカと結晶質シリカとが混在していると、結晶質シリカの割合に応じた高さの２６．７°のピークが得られるので、結晶質シリカ標準試料のＸ線強度に対する試料のＸ線強度の比から、結晶質シリカ混在比（試料のＸ線回折強度／結晶質シリカのＸ線回折強度）を算出し、下記の式、

非晶質率（質量%）＝（１－結晶質シリカ混在比）×１００

から非晶質率を求めることができる。

[0016] 本発明の粉末は、上記の呈色反応試験を行ったときに、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合が、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数に対して２０%以下、好ましくは１５%以下、特に好ましくは１０%以下である。４５μｍ以上の着磁性粒子において紺色に呈色する粒子（すなわち粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子）が含まれるということは、着磁性粒子の一部又は全部が１０質量%塩酸水溶液に溶解してＦｅイオンを放出し、着磁性粒子が導電性を示すことを意味している。粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子はステンレス鋼粒子、鉄粒子などであり、粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の典型は酸化鉄粒子である。呈色反応試験においては、着磁性呈色粒子、着磁性非呈色粒子のいずれも、１００００Ｇの棒磁石で捕獲される。

[0017] 粒子径が４５μｍ以上の着磁性粒子の着磁性と、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の導電性との関係についての更なる説明は以下のとおりである。粉末中に混入しているほぼすべての着磁性粒子は、製造設備の摩耗、切削、剥離等に由来するステンレス鋼（ＳＵＳ３０４、ＳＵＳ３１６、ＳＵＳ４３０等）粒子、鉄（Ｆｅ）粒子、及びこれらの酸化物粒子である。粉末の製造工程において、加熱された一部のステンレス鋼粒子、鉄粒子では、その外側から順にヘマタイト（Fe_2O_3）、マグネタイト（Fe_3O_4）のような酸化物皮膜が形成されているが、いずれも少なくとも１００００ガウスの磁石で捕獲される着磁性粒子である。このうち、ステンレス鋼粒子、鉄粒子は塩酸溶解性で導電性を有するが、ヘマタイトは塩酸溶解性が極めて小さく導電性もほとんど有しない絶縁体である。したがって、着磁性粒子の塩酸水溶液に対する易溶解性が判別できれば、着磁性粒子の導電性の大小を判断することができる。すなわち、塩酸水溶液の作用により、着磁性粒子の表面からＦｅイオンが溶出し、フェリシアン化カリウム水溶液と接触させた際に、紺色の呈色反応を示す着磁性呈色粒子は、ステンレス鋼粒子、鉄粒子であり、

導電性を有すると判別され、呈色反応を示さない着磁性非呈色粒子は、少なくともヘマタイト皮膜を有するこれらの酸化物粒子であり、導電性を有しない（極めて小さい）と判別することができる。本発明の粉末はこのような新規な観点に基づいて構成されている。

[0018] 粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合が、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と着磁性非呈色粒子との総個数に対して２０％を超えると、半導体封止材で封止した半導体の短絡不良率が急激に上昇する。なお、粒子径が４５μｍ未満の着磁性呈色粒子の個数割合も少ない方が好ましいが、現在の最先端半導体における金ワイヤーの間隔が５０μｍ程度であるため、これらの粒子が金ワイヤーを跨ぎ、半導体の短絡不良を引き起こす原因とはなりにくい。したがって、現時点においては、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合を規制することに重要な意義がある。

[0019] 本発明の粉末は、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数が、粉末５０ｇあたり５個以下が好ましく、特に３個以下であることが好ましい。これによって、本発明の効果が助長される。粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数は、０個が理想であるが、半導体１個あたりに使用される半導体封止材中の粉末は約１～３ｇ程度であるため、確率論的に、粉末に起因する半導体の短絡不良率は極めて小さい値になる傾向にある。したがって、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数が、粉末５０ｇあたり５個以下であれば、半導体の短絡不良を低減するという観点において十分な効果が得られる。また、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数（すなわち、粒子径が４５μｍ以上の着磁性粒子の個数）が、粉末５０ｇあたり５０個以下、特に４０個以下であることで、本発明の効果をより一層高めることができる。すなわち、導電性を示さない着磁性非呈色粒子は、そのハンドリング方法によってはヘマタイトなどの酸化皮膜が破壊し、再び導電性を示す恐れがあるので、あらかじめその恐れを軽減しておくことができる。

[0020] 本発明の粉末は、上記（４）を行って算出された「中心部まで酸化されて

いる粒子」の個数割合が、６０%以上が好ましく、特に７０%以上であることが好ましい。これによって、粉末のハンドリング中、たとえ着磁性非呈色粒子の表層が破壊しても、中心部まで酸化されている粒子が多いので、再び導電性を有する粒子が発生する恐れが極めて少なくなる。なお、中心部まで酸化されている粒子の個数割合が６０%未満であっても、本発明の効果を急激に損なうことはない。

[0021] なお、呈色反応試験において、（１）、（２）の操作は、フィルターの材質、目開きを変更したことを除き、特開２００８－１４５２４６号公報の段落［００２３］～［００２５］）の記載に準じて行った。また、（４）の操作におけるＥＤＳとして、ＪＥＯＬ社製商品名「ＪＳＭ－６３０１Ｆ型操作電子顕微鏡」に取り付けたＯＸＦＯＲＤ社製商品名「ＩＮＣＡ型ＥＤＳ」を用いた。なお、着磁性非呈色粒子の切断にはダイヤモンドカッターを用い、断面研磨はダイヤモンド砥粒を用いて鏡面研磨により行った。また、断面観察の際には、オスミウムコーターでオスミウムを約５ｎｍの厚みで蒸着し、導電性を付与した。この条件で任意の４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の断面１０個を撮影した。また、粒子の個数はマイクロスコープで拡大して数えた。

[0022] 本発明の粉末において、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数と、粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の個数の増減方法については後述するが、その一例を示すと、着磁性呈色粒子の個数割合を減らし、中心部まで酸化されている粒子の個数割合を増やすには、着磁性粒子の酸化を促進するため、より高温な雰囲気下で、原料粉末に対する酸素ガス及び／又は水蒸気の供給量を多くすればよい。また、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数を低減するには、粉末原料及び／又は球状粉末とステンレス鋼及び／又は鉄との相対速度を５ｍ／ｓ以下にすればよい。粉末の平均粒子径は粉末原料の平均粒子径を調整することで増減でき、平均球形度は粉末原料の火炎への供給量を少なくすると大きくなる。

[0023] 本発明の粉末の製造方法について説明する。

[0024] 従来の粉末の製造方法では、平均球形度を大きくし、粒子が凝集したまま溶融されないようにするため、粉末原料を強力に分散して火炎中に噴射できるバーナーが用いられている。しかし、粉末原料を強力に分散するあまり、火炎中で熱履歴を十分に受けないまま火炎外に出る粒子が存在し、酸化されない着磁性粒子が多数存在していた。また、着磁性粒子がいったん酸化されたとしても、火炎を形成するための可燃性ガス（例えばプロパンガスなど）中の炭素成分、水素成分などにより還元され、ほぼ未酸化の状態に戻って、火炎外に出る着磁性粒子も存在していた。本発明の製造方法によれば、このような課題を解決し、本発明の粉末を製造することができる。

[0025] 本発明の製造方法では、シリカ質粉末原料及び／又はアルミナ質粉末原料を炉内に形成された火炎で溶融し、球状化処理した後、炉外に搬送して球状粉末を捕集する。これを実現できる装置としては、例えばバーナーを備えた炉体に捕集装置が接続されたものが使用される。炉体は、縦型、横型のいずれであってもよい。捕集装置には、重力沈降室、サイクロン、バッグフィルター、電気集塵機等の一つ以上が設けられ、それらの捕集条件を調整することによって、球状粉末を捕集することができる。一例は、特開平１１－５７４５１号公報、特開２００１－２３３６２７号公報などに開示されている。

[0026] 本発明の製造方法は、炉内のうち雰囲気温度が１６００～１８００℃となっている任意の少なくとも１個所に、原料粉末１ｋｇあたり０．３～０．６ｍ^{3}の酸素ガス及び／又は水蒸気を、粉末原料の噴射方向に対し６０°～９０°の角度にして供給することを第一の要件とする。複数の箇所から、酸素ガス及び／又は水蒸気を供給するときは、それらの合計量が０．３～０．６ｍ^{3}である。

[0027] 炉体のうち雰囲気温度が１６００～１８００℃である部位は、Ｂ型熱電対（測定可能温度：０～１８００℃）、ＩｒＲｈ熱電対（測定可能温度：１１００～２０００℃）などで測ることによって特定できる。通常、その部位は、原料粉末が火炎温度で溶融、球状化した直後付近にあって、原料粉末／球

状粉末が浮遊している場である。このような場に、酸素ガス及び／又は水蒸気を供給すると、ステンレス鋼粒子、鉄粒子に熱が伝わりやすくなるだけでなく、これらの粒子が酸素ガス及び／又は水蒸気と十分に接触することができるため、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数を確実に減らし、中心部まで酸化されている粒子の個数を増やすことができる。すなわち、酸素ガス及び／又は水蒸気を供給する個所の雰囲気温度が１６００℃未満であると、このような作用効果が小さくなる一方、１８００℃を超えると、酸素ガスが燃焼反応に消費されて、着磁性粒子の酸化に寄与しなくなることに加え、水蒸気が火炎の温度を下げ、原料粉末の溶融、球状化を妨げる恐れがある。好ましい雰囲気温度は１７００～１８００℃である。なお、供給するガスが、空気や窒素ガスであると、ステンレス鋼粒子、鉄粒子を十分に酸化させることができない。

[0028] 特許文献２には、球状シリカ質粉末を製造した後、大気中、７００～１５００℃の温度で加熱して金属質粒子を酸化させる方法が記載されている。しかし、この方法では、球状シリカ質粉末は高温で加熱されることがあるので、シリカ質粉末同士が融着し凝集する、球状シリカ質粉末の中に埋もれている金属質粒子が酸化されない、仮に酸化されても酸化されるのが表面のみである、などの問題がある。このことは、特許文献２の実施例１～３で製造された粉末について呈色反応試験を行ったところ、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合が、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数に対して約４０～７０％であったことから明白である。

[0029] 酸素ガス及び／又は水蒸気の供給量が、原料粉末１ｋｇあたり０．３ｍ^{3}未満であると、ステンレス鋼粒子、鉄粒子が酸素ガス及び／又は水蒸気が十分に接触しにくいので、上記作用効果が小さくなる一方、０．６ｍ^{3}を超えると、原料粉末の溶融、球状化が損なわれる恐れがある。好ましい酸素ガス及び／又は水蒸気の供給量は、原料粉末１ｋｇあたり０．４～０．５ｍ^{3}である。

[0030] 雰囲気温度が１６００～１８００℃である場の少なくとも１箇所に、粉末

原料の噴射方向に対し６０°～９０°の角度で酸素ガス及び／又は水蒸気を供給するには、取付角度を調節して、酸素ガス及び／又は水蒸気の供給管を炉体に取り付ければよい。供給角度が上記範囲を外れると、ステンレス鋼粒子、鉄粒子が酸素ガス及び／又は水蒸気が十分に接触しにくいので、上記作用効果が小さくなるおそれがある。好ましい供給角度は、粉末原料の噴射方向に対し７０°～９０°であり、特に好ましくは９０°（直角）である。

[0031] 酸素ガス及び／又は水蒸気の供給管は、炉体の少なくとも１箇所に設けられるが、好ましくは設置位置を結ぶ直線が直交するような位置にそれぞれ１箇所の計４箇所に設置する。このような位置関係に設置することによって、ステンレス鋼粒子、鉄粒子を酸素ガス及び／又は水蒸気と十分に接触させることができ、確実に、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数を減らし、中心部まで酸化されている粒子の個数を増やすことができる。さらに好ましくは、この設置箇所から上下に５０ｃｍ離れた位置にある平面上、円周状にそれぞれ４箇所、つまり合計１２ヶ所に設置する。これによって、雰囲気温度が１６００～１８００℃である場に酸素ガス及び／又は水蒸気を供給することが容易になり、ステンレス鋼粒子、鉄粒子を酸素ガス及び／又は水蒸気と一段と十分に接触させることができる。

[0032] 本発明の製造方法は、上記方法において、粉末原料の溶融、球状化処理から球状粉末の捕集までの間に、粉末原料及び／又は球状粉末と、ステンレス鋼及び／又は鉄とが接触する部分におけるこれらの相対速度を５ｍ／ｓ以下にすることを第二の要件とする。

[0033] ここでいう相対速度とは、例えば固定された配管等のように、装置の構成部材が移動しないときは、粉末原料及び／又は球状粉末の移動速度（たとえば、粉末の気流搬送速度、落下速度など）であり、捕集装置などに貯蔵された球状粉末など、粉末が移動しない場合は、装置の構成部材の移動速度（たとえば、スライド板のスライド速度、回転バルブの周速など）である。本発明で規制される相対速度は、粉末原料及び／又は球状粉末とステンレス鋼及び／又は鉄との相対速度であり、５ｍ／ｓ以下である。相対速度が５ｍ／ｓ

を超えると、ステンレス鋼及び／又は鉄が摩耗し、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子が混入する、酸化された着磁性非呈色粒子が破壊され、再び着磁性呈色粒子になるなどの恐れがある。この部分における好ましい相対速度は４ｍ／ｓ以下、更に好ましくは３ｍ／ｓ以下である。５ｍ／ｓを超える相対速度である部分はステンレス鋼及び／又は鉄を露出させず、アルミナ、天然ゴム、ウレタンなどの非金属質の材料でライニングする。

[0034] 本発明の樹脂組成物について説明する。

[0035] 本発明の樹脂組成物は樹脂と、本発明の粉末とを含有するものである。樹脂組成物中の粉末の含有率は１０～９５質量%が好ましく、更に好ましくは４０～９３質量%である。樹脂としては、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ユリア樹脂、不飽和ポリエステル、フッ素樹脂、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド等のポリアミド、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリフェニレンスルフィド、芳香族ポリエステル、ポリスルホン、液晶ポリマー、ポリエーテルスルホン、ポリカーボネイト、マレイミド変成樹脂、ＡＢＳ樹脂、ＡＡＳ（アクリロニトリル－アクリルゴム・スチレン）樹脂、ＡＥＳ（アクリロニトリル・エチレン・プロピレン・ジエンゴム－スチレン）樹脂等を使用することができる。

[0036] これらの中、半導体封止材に用いる樹脂組成物中の樹脂としては、１分子中にエポキシ基を２個以上有するエポキシ樹脂が好ましく、例えば、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、フェノール類とアルデヒド類のノボラック樹脂をエポキシ化したもの、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ及びビスフェノールＳなどのグリシジルエーテル、フタル酸やダイマー酸などの多塩基酸とエポクロルヒドリンとの反応により得られるグリシジルエステル酸エポキシ樹脂、線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、複素環式エポキシ樹脂、アルキル変性多官能エポキシ樹脂、β－ナフトールノボラック型エオキシ樹脂、１，６－ジヒドロキシナフタレン型エポキシ樹脂、２，７－ジヒドロキシナフタレン型エ

ポキシ樹脂、ビスヒドロキシビフェニル型エポキシ樹脂、更には難燃性を付与するために臭素などのハロゲンを導入したエポキシ樹脂等が挙げられる。なかでも、耐湿性や耐ハンダリフロー性の点からは、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスヒドロキシビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン骨格のエポキシ樹脂等が好適である。

[0037] 樹脂組成物がエポキシ樹脂組成物である場合、樹脂組成物は、エポキシ樹脂の硬化剤、又はエポキシ樹脂の硬化剤とエポキシ樹脂の硬化促進剤を含む。エポキシ樹脂の硬化剤としては、例えばフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシノール、クロロフェノール、ｔ－ブチルフェノール、ノニルフェノール、イソプロピルフェノール、オクチルフェノール等の群から選ばれた１種又は２種以上の混合物をホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド又はパラキシレンとともに酸化触媒下で反応して得られるノボラック型樹脂、ポリパラヒドロキシスチレン樹脂、ビスフェノールＡやビスフェノールＳ等のビスフェノール化合物、ピロガロールやフロログルシノール等の３官能フェノール類、無水マレイン酸、無水フタル酸や無水ピロメリット酸等の酸無水物、メタフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン等の芳香族アミン等が挙げられる。エポキシ樹脂と硬化剤との反応を促進するために、上記した例えばトリフェニルホスフィン、ベンジルジメチルアミン、２－メチルイミダゾール等の硬化促進剤が好ましい。

[0038] 本発明の樹脂組成物は、更に以下の成分を必要に応じて含有することができる。

低応力化剤として、シリコーンゴム、ポリサルファイドゴム、アクリル系ゴム、ブタジエン系ゴム、スチレン系ブロックコポリマーや飽和型エラストマー等のゴム状物質、各種熱可塑性樹脂、シリコーン樹脂等の樹脂状物質、更にはエポキシ樹脂、フェノール樹脂の一部又は全部がアミノシリコーン、エポキシシリコーン、アルコキシシリコーンなどで変性された樹脂など、

シランカップリング剤として、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシ

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等のエポキシシラン、アミノプロピルトリエトキシシラン、ウレイドプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノシラン、フェニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン等の疎水性シラン化合物やメルカプトシランなど、

表面処理剤として、Ｚｒキレート、チタネートカップリング剤、アルミニウム系カップリング剤など、

難燃助剤として、Sb_2O_3、Sb_2O_4、Sb_2O_5など、難燃剤として、ハロゲン化エポキシ樹脂やリン化合物など、

着色剤として、カーボンブラック、酸化鉄、染料、顔料など、

離型剤として、天然ワックス類、合成ワックス類、直鎖脂肪酸の金属塩、酸アミド類、エステル類、パラフィンなどが挙げられる。

[0039] 本発明の樹脂組成物は、所定量の上記各材料をブレンダーやヘンシェルミキサー等によりブレンドした後、加熱ロール、ニーダー、一軸又は二軸押し出し機等により混練したものを冷却後、粉砕することによって製造することができる。

実施例

[0040] 実施例１～７、比較例１～９

表１に示される市販の結晶シリカ粉末Ｓ１（平均粒子径２６μｍ）、Ｓ２（平均粒子径５μｍ）、Ｓ３（平均粒子径４５μｍ）、アルミナ粉末Ａ１（平均粒子径３１μｍ）、Ａ２（平均粒子径３μｍ）、Ａ３（平均粒子径５１μｍ）を用意した。これらの原料粉末を、表２及び表３に記載された製造条件にて火炎中で溶融、球状化し、種々の球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末を製造した。

[0041] 用いた装置は、特開平１１－５７４５１号公報の図１に記載された装置に以下の（イ）～（ニ）の改良を加えたものである。比較例９では、これらの改良を加えていない装置を用いた。

（イ）Ｂ型熱電対で測定された炉内の雰囲気温度が１５００℃、１６００℃、１７００℃、１８００℃又は１９００℃のいずれかとなっている炉体の同一円周上に、取付角度を粉末原料の噴射方向（特開平１１－５７４５１号公報の図１における下方向）に対し３０°、６０°、９０°又は１２０°のいずれかにベアリングで調節して酸素ガス及び／又は水蒸気の供給管を設置した。供給管の設置本数は合計４本であり、設置位置を結ぶ直線が直交するような位置にそれぞれ１本ずつ設置した。

（ロ）バーナーの接粉部には、アルミナ製の管を使用し、炉体の内壁にはアルミナレンガを貼りつけた。

（ハ）粉末とステンレス鋼及び／又は鉄との相対速度が５ｍ／ｓ以上となる部分、具体的には、特開平１１－５７４５１号公報の図１の排気連絡口（符合９）、粉末一次回収口（符合１０）、粉末二次回収口（符合１１）をアルミナでライニングした。また、粉末二次回収装置バッグフィルター（符合１２）を天然ゴムでライニングした。

（ニ）粉末二次回収口の出口に設置したステンレスＳＵＳ３０４製の回転バルブの周速を１～１８ｍ／ｓの間に調整した。なお、本試験においては、粉末一次回収口は使用せず閉じたままとし、すべての粉末は粉末二次回収口より回収した。

[0042] 酸素ガス及び／又は水蒸気を、上記４本の供給管の各々より均等に、４本の合計で原料粉末１ｋｇあたり０～１．０m^3の量で供給した。供給した酸素ガスの温度は２０℃、水蒸気ガスの温度は１０５～１１０℃とした。原料粉末の供給量は１００～１７０ｋｇ／Ｈｒとした。火炎の形成にはプロパンガス、酸素ガスを用いた。なお、火炎の最高温度はアルミナの融点以上の約２０００℃～２１００℃であった。

[0043] 捕集された球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末中の、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数、４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の個数、中心部まで酸化されている着磁性非呈色粒子の個数を測定した。また、球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の平均球形度、平均粒子径を測

定した。それらの結果を表１、２に示す。なお、球状シリカ質粉末の非晶質率は、いずれも９９質量%以上であった。

[0044] 球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の半導体封止材の充填材としての特性を評価するため、以下に従う試験を行った。それらの結果を表１、２に示す。

[0045] ［半導体封止材タブレットの製造］

各粉末８７．８部（質量部、以下同じ）に対し、ビフェニル型エポキシ樹脂（ジャパンエポキシレジン社製ＹＸ－４０００Ｈ）５．９部、フェノールアラルキル樹脂（三井化学社製ＸＬＣ－ＬＬ）５．１部、トリフェニルホスフィン０．２部、メルカプトシランカップリング剤０．６部、カーボンブラック０．１部、カルナバワックス０．３部を加え、ヘンシェルミキサーにてドライブレンドした後、同方向噛み合い二軸押出混練機（スクリュー径Ｄ＝２５ｍｍ、ニーディングディスク長１０Ｄｍｍ、パドル回転数５０～１２０ｒｐｍ、吐出量２．５ｋｇ／Ｈｒ、混練物温度９９～１００℃）で加熱し混練した。混練物をプレス機にてプレスして冷却した後、粉砕、打錠して半導体封止材のタブレット（１７ｍｍφ、３２ｍｍＨ）を作製し、半導体の短絡不良個数を以下に従って評価した。なお、半導体封止材を作製するための設備及び器具からの着磁性粒子の混入を避けるため、各材料が接する部位は、すべてアルミナ、タングステンカーバイド、ウレタンのいずれかの材質で形成した。

[0046] ［半導体の短絡不良個数の測定］

ＢＧＡ用基板に、ダイアタッチフィルムを介して、サイズ８ｍｍ×８ｍｍ×０．３ｍｍの半導体素子を載せ、金ワイヤーで基板と接続した後、トランスファー成形機を用いて、半導体封止材タブレットをパッケージサイズ３８ｍｍ×３８ｍｍ×１．０ｍｍに成形した後、１７５℃で８時間アフターキュアし、ＢＧＡ型半導体を作製した。なお、金ワイヤーの径はφ２０μｍ、ピッチは８０μｍ、間隔は６０μｍである。同じ半導体封止材タブレットを用いて３０個の半導体を作製し、短絡不良が起きた半導体の個数をカウントし

た。

[0047] ［半導体のワイヤー変形量］

上記で作製したＢＧＡ型半導体の金ワイヤーの部分を軟Ｘ線透過装置で観察し、パッケージングにより金ワイヤーが流された最大距離を３０個の半導体について測定し、３０本の金ワイヤーの最大流れ距離の平均値を求め、ワイヤー変形量とした。

[0048] [表1]

原料粉末の種類	結晶シリカS1	結晶シリカS2	結晶シリカS3	アルミナA1	アルミナA2	アルミナA3
原料粉末の平均粒子径(μm)	26	5	45	31	3	51
45μm以上の着磁性呈色粒子の個数(個／50g)	34	45	39	41	54	38
45μm以上の着磁性非呈色粒子の個数(個／50g)	0	0	0	0	0	0
45μm以上の着磁性呈色粒子と着磁性非呈色粒子の総個数(個／50g)	34	45	39	41	54	38
45μm以上の着磁性呈色粒子の個数割合(%)	100	100	100	100	100	100
中心部まで酸化されている粒子の個数割合(%)	0	0	0	0	0	0

[0049] [表2]

		実施例						
		1	2	3	4	5	6	7
原料粉末の種類		結晶シリカS1	アルミナA1	結晶シリカS2	アルミナA2	結晶シリカS3	アルミナA3	結晶シリカS1
原料粉末の平均粒子径(μm)		26	31	5	3	45	51	26
原料粉末の火炎への噴射量(kg／Hr)		140	140	100	100	150	150	140
キャリア搬送ガス流量(m^3／Hr)		12	12	12	12	12	12	12
火炎形成ガス流量(m^3／Hr)	プロパンガス	24	24	24	24	24	24	24
	酸素ガス	135	135	135	135	135	135	135
供給ガスの諸条件	種類	酸素	酸素	酸素	酸素	酸素	酸素と水蒸気	水蒸気
	4箇所の合計流量(m^3／Hr)	70	70	40	40	45	45	85
	原料粉末比(m^3／kg)	0.5	0.5	0.4	0.4	0.3	0.3	0.5
	炉内の雰囲気温度(℃)	1800	1800	1600	1600	1700	1700	1700
	供給角度(°)	90	90	90	90	60	60	90
回転バンブの周速(m／s)		3	3	3	3	3	3	3
45μm以上の着磁性呈色粒子の個数(個／50g)		0	0	1	2	1	1	0
45μm以上の着磁性非呈色粒子の個数(個／50g)		33	41	44	52	38	37	32
45μm以上の着磁性呈色粒子と着磁性非呈色粒子の総個数(個／50g)		33	41	45	54	39	38	32
45μm以上の着磁性呈色粒子の個数割合(%)		0	0	2	4	3	3	0
中心部まで酸化されている粒子の個数割合(%)		80	80	60	50	70	70	70
球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の平均粒子径(μm)		27	31	8	6	45	51	27
球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の平均球形度(－)		0.92	0.91	0.96	0.95	0.92	0.90	0.95
半導体の短絡不良個数(個／30個)		0／30	0／30	0／30	0／30	0／30	0／30	0／30
ワイヤー最大変形量の平均値(μm)		15	17	26	24	21	25	17

[0050]

[表3]

		比較例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
原料粉末の種類		結晶シリカS1	アルミナA1	結晶シリカS2	アルミナA2	結晶シリカS3	アルミナA3	結晶シリカS1	結晶シリカS1	結晶シリカS1
原料粉末の平均粒子径(μm)		26	31	5	3	45	51	26	26	26
原料粉末の火炎への噴射量(kg/Hr)		140	140	100	100	170	170	140	140	140
キャリア酸素ガス流量(m^3/Hr)		12	12	12	12	12	12	12	12	12
火炎形成ガス流量(m^3/Hr)	プロパンガス	24	24	24	24	24	24	24	24	24
	酸素ガス	135	135	135	135	135	135	135	135	135
供給ガスの諸条件	種類	無し	酸素	空気	空気	酸素	酸素	酸素	酸素	無し
	4箇所の合計流量(m^3/Hr)	0	110	40	40	45	45	85	70	0
	原料粉末比(m^3/kg)	0	0.8	0.4	0.4	0.3	0.3	0.6	0.5	0
	炉内の雰囲気温度(℃)	−	1800	1900	1800	1700	1700	1500	1800	−
	供給角度(°)	−	90	90	90	30	120	90	90	−
回転バルブの周速(m/s)		3	3	3	3	3	3	3	18	18
45μm以上の着帯や呈色粒子の個数(個/50g)		16	14	11	27	17	24	7	68	160
45μm以上の着帯や非呈色粒子の個数(個/50g)		18	26	35	27	25	13	32	37	55
45μm以上の着帯や呈色粒子と着帯性非呈色粒子の総個数(個/50g)		34	40	46	54	42	37	39	105	215
45μm以上の着帯や呈色粒子の個数割合(%)		47	35	24	50	40	65	22	65	74
中心部まで変化されている粒子の個数割合(%)		10	60	40	20	60	60	50	70	50
球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の平均粒子径(μm)		27	31	8	6	51	55	27	27	27
球状シリカ質粉末、球状アルミナ質粉末の平均球形度(−)		0.91	0.84	0.81	0.85	0.71	0.73	0.95	0.95	0.91
半導体の短絡不良個数(個/30個)		19/30	16/30	6/30	21/30	24/30	23/30	6/30	27/30	29/30
ワイヤー最大変形量の平均値(μm)		16	14	25	21	55	48	18	17	17

[0051] 実施例と比較例の対比から明らかなように、本発明の球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末を含む半導体封止材は、半導体を封止した際の半導体の短絡不良個数を顕著に低減することができた。本発明の球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末によれば、小型化、高密度化した半導体に好適に用いられる半導体封止材を提供することができる。

産業上の利用可能性

[0052] 本発明の球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末は、自動車、携帯電子機器、パソコン、家庭電化製品等に使用される半導体封止材、半導体が搭載される積層板などの充填材として使用される。また、本発明の樹脂組成物は、半導体封止材の他に、ガラス織布、ガラス不織布、その他有機基材に含浸硬化させてなる例えばプリント基板用のプリプレグや、各種エンジニアリングプラスチックス等として使用できる。

請求の範囲

[請求項1] 以下の（１）～（３）からなる呈色反応試験を行ったときに、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合が、粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数に対して２０％以下である、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末。

（１）５０ｇの粉末試料を精秤し、それをイオン交換水８００ｇに分散させてスラリーを調製する。

（２）厚み２０μｍのゴム製カバーを被せた１００００ガウスの棒磁石を、上記スラリーに浸漬して着磁性粒子を捕獲し、それを目開き４５μｍのポリエステル製フィルターで篩う。フイルター上に残った粒子の個数を数え、その個数を「粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数」とみなす。

（３）上記フイルター上の粒子に、２０℃の室温下、塩酸１０質量％水溶液、プロピレングリコール５０質量％水溶液およびフェリシアン化カリウム０．５質量％水溶液の等質量混合溶液を約０．５ｍｌ滴下して粒子を湿潤させ、２０分間放置する。その結果、呈色した粒子を「粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子」とみなし、その個数を数える。式、（粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数）×１００／（粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数）、により、粒子径が４５μｍ以上の着磁性粒子に存在する粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数割合を算出する。

[請求項2] 粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子の個数が、粉末５０ｇあたり５個以下である請求項１記載の粉末。

[請求項3] 粒子径が４５μｍ以上の着磁性呈色粒子と粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子との総個数が、粉末５０ｇあたり５０個以下である

請求項１又は２記載の粉末。

[請求項4] 前記呈色反応試験の後に以下の（４）を行って算出される、中心部まで酸化されている粒子の個数割合が、６０%以上である請求項１～３のいずれかに記載の粉末。

（４）呈色反応試験を終えた粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子を選び、エポキシ樹脂で包埋し硬化させた後、切断・研磨して粒子断面を露出させ、断面の中心に存在する酸素の有無をエネルギー分散型Ｘ線分光器（ＥＤＳ）で分析する。その結果、断面の中心から酸素が検出された粒子を「中心部まで酸化されている粒子」とみなし、その個数を数える。式、（中心部まで酸化されている粒子の個数）×１００／（粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子の個数）、により、粒子径が４５μｍ以上の着磁性非呈色粒子に存在する中心部まで酸化されている粒子の個数割合を算出する。なお、ＥＤＳの分析条件は、加速電圧１５ｋＶ、照射電流１０ｎＡ、倍率２０００倍、画素あたりの積算時間１００ｍｓｅｃ、画素サイズ０．２μｍ□、画素数２５６×２５６ｐｉｘｅｌｓである。

[請求項5] （４）を行って算出される、中心部まで酸化されている粒子の個数割合が、７０%以上である請求項４記載の粉末。

[請求項6] 粉末の平均球形度が０．７５以上で、平均粒子径が３～５０μｍである請求項１～５のいずれか記載の粉末。

[請求項7] シリカ質粉末原料及び／又はアルミナ質粉末原料を炉内に形成された火炎で溶融し、球状化処理した後、炉外に搬送して球状粉末を捕集する工程を有し、この工程が、炉内のうち雰囲気温度が１６００～１８００℃となっている任意の少なくとも１個所に、原料粉末１ｋｇあたり０．３～０．６m^3の酸素ガス及び／又は水蒸気を、粉末原料の噴射方向に対し６０°～９０°の角度にて供給する工程、及び、粉末原料の溶融、球状化処理から球状粉末の捕集までの間において、粉末原料及び／又は球状粉末とステンレス鋼及び／又は鉄とが接触する部

分におけるこれらの相対速度を５ｍ／ｓ以下にする工程を有する、球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末の製造方法。

[請求項8] 球状シリカ質粉末及び／又は球状アルミナ質粉末からなる粉末が、請求項１～６のいずれか記載の粉末である請求項７記載の製造方法。

[請求項9] 請求項１～６のいずれか記載の粉末を含有してなる樹脂組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/005730

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C01B33/18(2006.01)i, *C01B33/12*(2006.01)i, *C01F7/02*(2006.01)i, *H01L23/29*(2006.01)i, *H01L23/31*(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)
C01B33/18, C01B33/12, C01F7/02, H01L23/29, H01L23/31

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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	JP 11-71107 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 16 March 1999 (16.03.1999), entire text & US 6054073 A & SG 70108 A	1-9
A	JP 2008-145246 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 26 June 2008 (26.06.2008), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2000-178413 A (Tokuyama Corp.), 27 June 2000 (27.06.2000), entire text (Family: none)	1-9

☒ 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	Date of mailing of the international search report
26 January, 2010 (26.01.10)	02 February, 2010 (02.02.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/005730

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 11-57451 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 02 March 1999 (02.03.1999), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2005-306923 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 04 November 2005 (04.11.2005), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2005-281063 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 13 October 2005 (13.10.2005), entire text (Family: none)	1-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／００５７３０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C01B33/18(2006.01)i, C01B33/12(2006.01)i, C01F7/02(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(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.　C01B33/18, C01B33/12, C01F7/02, H01L23/29, H01L23/31

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１０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	JP 11-71107 A (電気化学工業株式会社) 1999.03.16, 全文 & US 6054073 A & SG 70108 A	１－９
A	JP 2008-145246 A (電気化学工業株式会社) 2008.06.26, 全文（ファミリーなし）	１－９
A	JP 2000-178413 A (株式会社トクヤマ) 2000.06.27, 全文（ファミリーなし）	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。

＊　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
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 ２６．０１．２０１０	国際調査報告の発送日 ０２．０２．２０１０
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｇ　９２６６ 廣野　知子 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４１６

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 11-57451 A（電気化学工業株式会社）1999.03.02，全文（ファミリーなし）	１－９
Ａ	JP 2005-306923 A（電気化学工業株式会社）2005.11.04，全文（ファミリーなし）	１－９
Ａ	JP 2005-281063 A（電気化学工業株式会社）2005.10.13，全文（ファミリーなし）	１－９