

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4040715号
(P4040715)

(45) 発行日 平成20年1月30日(2008.1.30)

(24) 登録日 平成19年11月16日(2007.11.16)

(51) Int.Cl.		F I	
CO8K 3/28	(2006.01)	CO8K 3/28	
CO8K 3/36	(2006.01)	CO8K 3/36	
CO8L 101/00	(2006.01)	CO8L 101/00	
HO1L 23/29	(2006.01)	HO1L 23/30	R
HO1L 23/31	(2006.01)		

請求項の数 2 (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平9-93758
 (22) 出願日 平成9年4月11日(1997.4.11)
 (65) 公開番号 特開平10-287767
 (43) 公開日 平成10年10月27日(1998.10.27)
 審査請求日 平成14年9月26日(2002.9.26)
 審判番号 不服2004-18827(P2004-18827/J1)
 審判請求日 平成16年9月13日(2004.9.13)

(73) 特許権者 000003296
 電気化学工業株式会社
 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号
 日本橋三井タワー
 (72) 発明者 飯塚 慶至
 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
 (72) 発明者 岩佐 光芳
 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
 (72) 発明者 山本 一也
 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

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 充填材及び半導体封止用樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

平均粒径が $10.5 \sim 18.1 \mu\text{m}$ の窒化アルミニウム粉末を 50 ~ 90 重量%と、球状の粒子であって、平均粒径が $0.8 \sim 7.4 \mu\text{m}$ のシリカ粉末を 10 ~ 50 重量%とを含有してなることを特徴とする充填材。

【請求項2】

請求項1記載の充填材を含有してなることを特徴とする半導体封止用樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、樹脂に充填して優れた流動性と高熱伝導性を示す充填材とそれを用いた半導体封止用樹脂組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

半導体の封止は、硬化剤等を含むエポキシ系樹脂に石英ガラス、アルミナ等の酸化物系無機質粉末からなる充填材を混合、混練して得られる樹脂組成物を、加熱等の操作で硬化させることにより行われてきた。樹脂組成物の硬化体である封止材は、半導体素子の機能を生かすために低熱膨張性、高熱伝導性、耐熱性、耐水性、低放射線等の様々な特性をバランス良く満足していることが必要である。そして、前記樹脂組成物を素子の上に充填して封止する際に、信号を伝えるワイヤーが断線、またはワイヤーどうしが接触しないように

、高流動性の樹脂組成物が必要とされ、開発されてきた。

【0003】

前記樹脂組成物に用いられる充填材について、その特性改善例として、例えば特開昭60-51613号公報には、1~100 μ mの球状シリカ粉の表面にシランカップリング材を付着させることで樹脂に対する分散性を向上させる方法が開示されている。また、特開昭62-241541号公報には、石英ガラスの粉末を火炎中にて熔融し、球状の粉末を得て、これにより高充填性高流動性を達成している。更に特開昭63-282146号公報では、充填材の粒度構成を適正化することにより高充填性を達成している。そして、これらの技術を組み合わせることにより、従来樹脂に対する無機質充填材の充填率が75~80重量%であったものが、最近では90重量%近くにも達している。

10

【0004】

一方、半導体素子で発生する熱を効率よく逃がすために、封止材にも高熱伝導性が一層要求されてきている。この対策として石英ガラスでは前述のように充填量を増やすことで、特性を向上してきた。しかし石英ガラスの熱伝導率は1~5W/m \cdot Kと低く、これを用いて得られる樹脂組成物の熱伝導性の向上に限界があった。熱伝導率の向上のために特開平1-115940号公報では、サイアロン、シリコンオキシナイトライドを利用する方法が、また特開平6-24715号公報では、窒化アルミニウム粉末を充填材として利用する方法が提案されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、これらの高熱伝導絶縁性無機質材料は高価であるばかりでなく、充填性が低く、その結果得られる樹脂組成物は期待したほどの高熱伝導性を有していないという問題があるし、窒化物を多量に用いる時には樹脂組成物の耐水性にも問題がある。

20

【0006】

即ち、窒化物無機粉末を充填材として単独で用いる場合には、充填性、熱伝導性、或いは耐水性等で、それぞれの材料の固有の課題が解決されずにあった。本発明は上記状況に鑑みてなされたもので、本発明の目的は、高充填しても高流動性の樹脂組成物が得られ、前記樹脂組成物が硬化した時には高熱伝導性を有していて、半導体封止用に好適な封止材が容易に得られるような充填材を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、種々の無機粉末を組み合わせる樹脂に充填した場合に、得られる樹脂組成物の流動性及びその硬化体の熱伝導性に与える影響を調べた結果、特定粒径の窒化アルミニウム粉末と、粒子が球状で、特定粒径のシリカ粉末とを所定の割合の下で混合した場合に限り、樹脂中に前記混合粉末が高充填され、得られる樹脂組成物の硬化体が高熱伝導性を示すことを見出し、本発明に至ったものである。

30

【0008】

即ち、本発明は、平均粒径が10.5~18.1 μ mの窒化アルミニウム粉末を50~90重量%と、球状の粒子であって、平均粒径が0.8~7.4 μ mのシリカ粉末を10~50重量%とを含有してなることを特徴とする充填材である。

40

【0009】

また、本発明は、前記充填材を含有してなることを特徴とする半導体封止用樹脂組成物である。

【0010】

【発明の実施の形態】

本発明で用いられる窒化アルミニウム粉末は、電気絶縁性に優れ、しかも高熱伝導性を有するものであれば良く、粉末を構成する粒子内部の構造、即ち結晶性の程度、或いは結晶の大きさ、それらの凝集程度等に制限されるものではない。また、粉末を構成する粒子の形状については、板状、多角柱状、鱗片状或いは不定形のものであっても構わないが、樹脂への充填性と得られる樹脂組成物の流動性に一層優れるという理由から球形が好ましく

50

、より具体的には後述する球形度で0.7以上のものが好ましい。

【0011】

窒化アルミニウム粉末の製法としては、金属の直接窒化法、酸化物還元法、気相合成法等が知られているが、本発明においてはいずれの方法で得られたものも用いることができる。又、前記方法で得られた粉末を成形、或いは更に焼結して得られる成形体を粉碎したものであっても構わない。更に、耐水性向上のために、窒化アルミニウム粉末表面を酸化膜や有機膜等で被覆したものであっても良い。

【0012】

本発明で用いられる粒子が球状のシリカ粉末は、熱膨張率が非常に小さなガラス質とすることができ、しかも安価で多量に入手可能であるという理由で、好適である。

10

【0013】

粒子を球状とする方法に関しては、火炎溶融法、金属蒸気酸化法、ゾルゲル法等の従来公知の方法によれば良く、その製法を限定するものではない。本発明において、球状とは真球だけを指すのではなく、SEM観察下で粒子全体の形状が丸くなっていることを云う。更に詳しく述べれば、後で詳述するとおり、画像解析法に於いて測定される球形度が少なくとも0.80以上、好ましくは0.84以上のものを云う。球形度が0.80未満の場合、樹脂組成物の流動性が悪くなる場合がある。

【0014】

本発明において、窒化アルミニウム粉末の充填材に占める割合は、50～90重量%である。50重量%未満では得られる樹脂組成物の硬化体の熱伝導性が十分には向上しない。90重量%を越える割合となると、樹脂への充填性が悪くなり、更に樹脂組成物の流動性をも悪くする。また、粒子が球状のシリカ粉末の充填材に占める割合は10～50重量%であり、10重量%未満では樹脂組成物の流動性が十分でなくなる。

20

【0015】

本発明の充填材は、窒化アルミニウム粉末及び粒子が球状のシリカ粉末以外の第三成分の添加を制限するものではない。例えば、着色を目的としてカーボンブラックや顔料を、樹脂の耐久性向上を目的にいろいろな安定剤を、或いはコスト低減を目的として安価な無機充填材を、物性を損なわない程度に適宜添加することが許容される。本発明の目的を達成するために、窒化アルミニウム粉末と粒子が球状のシリカ粉末の合計量が充填材全体の70重量%以上含有されることが好ましく、80重量%以上含有されていれば更に良い。

30

【0016】

本発明の効果をより高めるために、窒化アルミニウム粉末は、粒子が球状のシリカ粉末よりも粒度が大きく、熱伝導率が高いものを選択することが好ましい。このことにより、樹脂組成物中の充填材の充填率が同じ場合に、樹脂組成物硬化体の熱伝導率をより一層向上させることができる。加えて、窒化アルミニウム粉末は表面で空気中の湿分(水分)と反応しやすく、微粉にすると表面積が増加し一層不安定となるが、上述のとおり、充填性を高め樹脂組成物硬化体の熱伝導率を高める目的で高熱伝導性の窒化アルミニウム粉末の粒度を大きくすることは、微粉側に粒子が球状のシリカ粉末を用いることとなり、得られる樹脂組成物硬化体の耐湿性を高めるという効果をももたらす。

【0017】

窒化アルミニウム粉末の粒度については、最大粒子径が100 μ m以下であり、且つ、平均粒子径が10.5～18.1 μ mの範囲であることが重要である。100 μ m以上の粒子が存在すると、得られる樹脂組成物を成形するに際し、金型の摩耗が大きくなるからである。そして、平均粒子径が2 μ mより小さくなると粉末表面積が増えるので、前述の耐湿性、耐水性に問題が生じると共に、得られる樹脂組成物の粘度の上昇が著しく、樹脂中への均一分散ができないばかりでなく、充填が困難となる傾向があるし、余りにも小さな粒度の場合には熱伝達が悪い粒子界面の数が多くなるためか高充填しても樹脂組成物の熱伝導が向上しない傾向がある。一方、平均粒子径が30 μ mを越えて大きくなると、得られる樹脂組成物の流動性が悪くなるので、結果的に高充填ができない現象を生じる。

40

【0018】

50

粒子が球状のシリカ粉末については、最大粒子径が100 μm以下であり、平均粒径が0.8 ~ 7.4 μmである。平均粒径が0.1 μm程度であると、ハンドリング上、製造上の制限が生じる恐れがある。粒子が球状のシリカ粉末より大きい平均粒径を有する窒化アルミニウム粉末と混合したときに、平均粒子径が10 μm以下の粒度でないと樹脂組成物の流動性が悪くなり、結果的に高充填ができないことがある。

【0019】

本発明に於いて、窒化アルミニウム粉末、粒子が球状のシリカ粉末及び第三成分の粉末の粒子径は、試料0.3 gを水に分散し、レーザー回折式粒度分布測定装置（シーラスグラニュロメーター「モデル715」）によって測定される値である。

【0020】

窒化アルミニウム粉末及び粒子が球状のシリカ粉末の熱伝導率は、予め硬化体の熱伝導率が判っているシリコン樹脂或いはエポキシ樹脂に40 ~ 60体積%で分散させ、板状の試片を作製し該試片の熱伝導を測定し、その値と配合割合から算出することができる。

【0021】

窒化アルミニウム粉末を構成する粒子或いはシリカ粉末を構成する粒子の球形度は、SEM（走査型電子顕微鏡）及び画像解析装置を用いて測定する。本発明に於いては、SEMとして日本電子（株）製JSM-T200型を用い、画像解析装置として日本アビオニクス（株）製を用いたが、他社製品を用いても同様の数値が得られる。球形度の測定法は、先ず粉末のSEM写真から対象とする粒子の投影面積（A）と周囲長（PM）を測定する。また周囲長（PM）に対応する真円の面積を（B）とすると球形度（真円度）はA/Bとして表す。

【0022】

ここで、対象とする粒子の周囲長（PM）と同一の周囲長を持つ真円を想定すると、

$$PM = 2r \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$B = r^2 \quad \dots \dots \dots (2)$$

であるから、

$$(1) \text{式より、} r = PM / 2 \quad \dots \dots \dots (3)$$

(2)式に(3)式を代入して、

$$B = \frac{1}{4} (PM)^2 \quad \dots \dots \dots (4)$$

となり、

$$\text{球形度} = A / B = A \times 4 / (PM)^2 \quad \dots \dots \dots (5)$$

となる。(5)式に実測値A及びPMを代入して個々の粒子の球形度を算出できる。本発明においては、粉末全体の粒度分布を代表するように粒子のサンプリングを行い、それぞれの球形度を100ヶ程度の粒子について球形度を測定し、更にその平均値を以て粉末の球形度とした。

【0023】

【実施例】

粒子が球状のシリカ粉末として、珪石の粒状品を火炎溶融して、ガラス化、球状化を行い、その後に分級することで、種々の球状石英ガラス粉末（球状シリカ粉末）を用意した。また、比較の例として、石英ガラスのインゴットを破碎、粉碎後に分級して得られた、粒子の球形度が乏しい破碎シリカ粉末を用いた。

【0024】

窒化アルミニウム粉末は金属アルミニウム粉の窒化法によるインゴットを粉碎・分級により得たものである。球形度は、0.7 ~ 0.8であった。

【0025】

上述の粉末を表1に示す配合割合で秤量後、V型混合器で混合し、種々の充填材を得た。前記充填材を下記処方のパインダー80重量部に対して、320重量部を計量し、更にドライブレンドしてブレンド品を得た。

【0026】

<パインダーの組成>

10

20

30

40

50

4 - 4' - ビス (2 , 3 - エポキシプロポキシ	4 4 重量部
3 , 3' , 5 , 5 - テトラメチルピフェニル	2 3 重量部
フェノールノボラック樹脂 (軟化点 8 5)	2 重量部
トリフェニルフォスフィン (硬化促進剤)	6 重量部
エステルワックス (離形剤)	1 重量部
カーボンブラック (着色剤)	4 重量部
- グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	
(シランカップリング剤)	

【 0 0 2 7 】

前記ブレンド品をロール表面温度 1 0 0 のミキシングロールを用いて 5 分間加熱混練した後、冷却、粉碎していろいろな種類の樹脂組成物を得た。次に、樹脂組成物を用いて、スパイラルフロー及び熱伝導率を測定した。スパイラルフローは、スパイラルフロー金型を用いて EMMI - 6 6 (Epoxy Molding Material ; Society of Plastic Industry) に準拠して測定した。成形温度は 1 7 5 、成形圧力は 7 5 k g / c m ² で成形した。また、樹脂組成物硬化体の熱伝導率は、スパイラルフローと同様の成形条件で成形、硬化して得られる曲げ試片の一部を 1 0 × 1 t の円板状に切り出し、レーザーフラッシュ熱伝導率測定装置を用いて室温で測定した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 2 8 】

【表 1】

実験No.	窒化アルミニウム粉末		シリカ粉末				組成物特性	
	平均粒径 μ m	配合割合 w t %	種類	平均粒径 μ m	球形度 -	配合割合 w t %	熱伝導率 W/mK	流動性 c m
実施例 1	1 0 . 5	5 0	球状シリカ	4 . 5	0 . 9 0	5 0	3 . 2	1 0 6
〃 2	1 0 . 5	7 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	3 0	3 . 8	1 1 1
〃 3	1 0 . 5	9 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	1 0	4 . 3	1 0 7
〃 4	1 8 . 1	7 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	3 0	4 . 1	1 0 5
〃 5	1 0 . 5	7 0	〃	0 . 8	0 . 9 5	3 0	3 . 7	1 1 0
〃 6	1 0 . 5	7 0	〃	2 . 5	0 . 9 1	3 0	3 . 7	1 1 2
〃 7	1 0 . 5	7 0	〃	3 . 7	0 . 9 0	3 0	3 . 7	1 1 3
〃 8	1 0 . 5	7 0	〃	5 . 6	0 . 8 8	3 0	3 . 8	1 0 8
〃 9	1 0 . 5	7 0	〃	7 . 4	0 . 8 6	3 0	3 . 8	1 0 3
比較例 1	1 0 . 5	2 5	球状シリカ	3 . 7	0 . 9 0	7 5	1 . 9	9 8
〃 2	1 0 . 5	1 0 0	-	-	-	-	4 . 5	5 8
〃 3	1 . 5	7 0	球状シリカ	1 . 1	0 . 9 0	3 0	3 . 8	5 2
〃 4	1 . 5	1 0 0	二	-	-	-	成形不可	
〃 5	3 2 . 1	7 0	球状シリカ	1 . 1	0 . 9 0	3 0	4 . 8	8 2
〃 6	1 0 . 5	7 0	〃	1 0 . 7	0 . 8 2	3 0	3 . 8	7 4
〃 7	-	-	〃	8 . 9	0 . 8 6	1 0 0	0 . 9	1 1 8
〃 8	1 0 . 5	7 0	破碎シリカ	3 . 5	0 . 6 7	3 0	3 . 9	5 9
〃 9	1 0 . 5	3 5	球状シリカ	4 . 5	0 . 9 0	6 5	2 . 5	9 5
〃 1 0	3 . 2	7 0	〃	2 . 2	0 . 9 1	3 0	3 . 4	8 6
〃 1 1	5 . 7	7 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	3 0	3 . 6	9 9
〃 1 2	2 4 . 3	7 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	3 0	4 . 5	9 7
〃 1 3	2 8 . 2	7 0	〃	4 . 5	0 . 9 0	3 0	4 . 7	9 0
〃 1 4	1 0 . 5	7 0	〃	8 . 9	0 . 8 2	3 0	3 . 8	9 8
〃 1 5	1 0 . 5	7 0	〃	7 . 6	0 . 7 2	3 0	3 . 8	9 5

【 0 0 2 9 】

【発明の効果】

実施例から、本発明の充填材を用いた樹脂組成物は、流動性に富み、しかも得られる硬化体の熱伝導率も高いという、優れた効果を有していることが明かである。即ち、本発明に

10

20

30

40

50

よれば、成形時の流動性が阻害されることなく、充填材が高度に充填された樹脂組成物が容易に得ることができ、しかも充填材が高充填されているので硬化体の熱伝導率が高い樹脂組成物を容易に提供でき、例えば半導体封止用に用いて好適である。更に、充填材の微粉に粒子が球状のシリカ粉末を用いているので、得られた樹脂硬化体の耐湿性、耐水性に優れるという効果をも有している。

フロントページの続き

合議体

審判長 井出 隆一

審判官 渡辺 陽子

審判官 宮坂 初男

- (56)参考文献 特開昭60-84362(JP,A)
特開平1-115940(JP,A)
特開平4-8740(JP,A)
特開平2-227451(JP,A)
特開平4-96964(JP,A)
特開平8-208882(JP,A)
特開平3-47827(JP,A)
特開平1-261435(JP,A)
特開昭61-91243(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L101/00-101/16, C08K3/00-3/40