

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007 年 9 月 27 日 (27.09.2007)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2007/108437 A1

- (51) 国際特許分類:
C01B 33/18 (2006.01) C09C 1/28 (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2007/055503
- (22) 国際出願日: 2007 年 3 月 19 日 (19.03.2007)
- (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2006-073626 2006 年 3 月 17 日 (17.03.2006) 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二丁目 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): 佐々木 修治 (SASAKI, Shuji) [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). 中島 徳久 (NAKASHIMA, Norihisa) [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: 熊倉 禎男, 外 (KUMAKURA, Yoshio et al.); 〒1008355 東京都千代田区丸の内 3 丁目 3 番 1 号 新東京ビル 中村合同特許法律事務所 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, 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, 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, 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, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SILICA POWDER AND USE THEREOF

(54) 発明の名称: シリカ粉末及びその用途

(57) Abstract: A silica powder with which a sealing material can be highly loaded and a highly moldable sealing material can be provided. The silica powder, upon analysis by the laser diffraction/scattering method, gives a particle size distribution concerning volume-based frequency which has at least a peak (1) in the size range of 1-4 μm and a peak (2) in the size range of 15-55 μm , the peak (2) having a larger maximum frequency value than the peak (1). The peak (2) has a shoulder. The content of particles having a size of 15-55 μm is higher than that of particles having a size of 1-4 μm .

(57) 要約: 封止材に高充填でき、高成形性の封止材を提供できるシリカ粉末を提供する。シリカ粉末は、レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布において、少なくとも 1~4 μm の粒度域に極大ピーク 1 と、15~55 μm の粒度域に極大ピーク 2 とを有し、極大ピーク 2 の最大頻度値が極大ピーク 1 の最大頻度値よりも大きく、極大ピーク 2 にショルダーを有し、15~55 μm の粒子の含有率が、1~4 μm の粒子の含有率よりも多い。

WO 2007/108437 A1

明 細 書

シリカ粉末及びその用途

技術分野

[0001] 本発明は、シリカ粉末及びその用途に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器の小型軽量化、高性能化の要求に対応し、半導体パッケージの小型化、薄型化、狭ピッチ化が加速している。また、その実装方法も配線基板などへの高密度実装に好適な表面実装が主流になりつつある。このような状況下、半導体封止材料(以下、「封止材」という。)にも高性能化、特に半田耐熱性、耐湿性、低熱膨張性、電気絶縁性の向上が要求されている。これを満たすには、シリカ粉末をエポキシ樹脂に可及的多く含有させた封止材を用いることが望ましいが、シリカ粉末の高充填(高含有)によって封止材の熔融粘度が上昇するので、未充填、ワイヤー流れ、チップシフトなどの成形不良を増大させる恐れがある。

[0003] そこで、このようなシリカ粉末の高充填された封止材において、流動性、成形性を損なわせないようにした技術が種々提案されている。たとえば、粒度分布の変動係数を10%以下とし、粒度分布をシャープにする方法(特許文献1)、粒径 $45\mu\text{m}$ 以上における球形度を0.75~1.0とし、粗粉域の球形度をより高くする方法(特許文献2)、比表面積を $5\text{m}^2/\text{g}$ 以下とし、樹脂成分との接触面積を大きくしない方法(特許文献3)、平均粒径 $0.1\sim 1\mu\text{m}$ 程度の球状微小粉末を少量添加する方法(特許文献4)などである。これらによってかなり改善はなされたが、今日の更なる要求を満たしていない。たとえば、成型時に金型のエアーベント部から封止材が溢れ出る現象(バリが発生)が十分に解決されていない。

[0004] 特許文献1:特開平11-124504号公報

特許文献2:特開2004-123849号公報

特許文献3:特開2001-151866号公報

特許文献4:特開平5-239321号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0005] 本発明の目的は、シリカ粉末が高充填された成形性の良好な封止材において、バリを少なくできるシリカ粉末と、それをゴム及び樹脂の少なくとも一方に含有させた組成物と、封止材とを提供することである。

課題を解決するための手段

- [0006] 本発明は、レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布において、少なくとも1～4 μm の粒度域と15～55 μm の粒度域とに極大ピークの最大頻度値を有すること(それぞれ「極大ピーク1」、「極大ピーク2」とする。)、極大ピーク2の最大頻度値が極大ピーク1の最大頻度値よりも大きいこと、極大ピーク2にショルダーがあること、15～55 μm の粒子の含有率が1～4 μm の粒子の含有率よりも多いことからなることを特徴とするシリカ粉末である。
- [0007] 本発明においては、15～55 μm の粒子の含有率が35～55体積%、1～4 μm の粒子の含有率が10～30体積%、55 μm 超の粒子の含有率が5体積%以下(0を含む)、1 μm 未満の含有率が10体積%以下(0を含む)、残部が4 μm を超え15 μm 未満の粒子から構成されており、極大ピーク1の最大頻度値が1.5～3.5 μm の間に、極大ピーク2の最大頻度値が25～40 μm の間に存在し、しかも極大ピーク2の4～20 μm の粒径範囲にショルダーが存在していることが好ましく、また30 μm 以上の粒子の平均球形度が0.85以上であることが更に好ましい。
- [0008] また、本発明は、本発明のシリカ粉末をゴム及び樹脂の少なくとも一方に含有させてなる組成物である。さらに、本発明は、本発明の組成物からなる封止材である。

発明の効果

- [0009] 本発明によれば、シリカ粉末が高充填された成形性の良好な封止材において、バリが少なくなるシリカ粉末と、それをゴム及び樹脂の少なくとも一方に含有させた組成物と、封止材とが提供される。

発明を実施するための最良の形態

- [0010] 極大ピーク1とは、レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布において、1～4 μm の間に頻度が最大の値を示す粒子径であると定義される。また、極大ピー

ク2とは、15～55 μm の間において頻度が最大の値を示す粒子径であると定義される。さらに、頻度が最大の値を示す粒子径とは、0.04～500 μm の粒径範囲を100分割して得られたレーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布において、最も高い頻度を示すチャンネルにおける中央値の粒子径のことである。なお、1～4 μm の間、又は15～55 μm の間に2つ以上の極大ピークが存在する場合には、各極大ピークの頻度を比較し、その最大値を示す粒子径をもって頻度が最大の値を示す粒子径であるとする。レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布の測定機器としては、例えばシーラス粒度分布測定装置「シーラス1064」(シーラス社製)がある。この機器を用いれば、極大ピーク1、極大ピーク2は自動測定される。

[0011] 平均球形度は、実体顕微鏡(例えばニコン社製「モデルSMZ-10型」)、走査型電子顕微鏡などで撮影した粒子像を画像解析装置(例えば日本アビオニクス社製)に取り込んで測定される。すなわち、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、その粒子の真円度は A/B となる。そこで、試料粒子の周囲長(PM)と同一の周囲長を持つ真円を想定すると、 $PM=2\pi r$ 、 $B=\pi r^2$ であるから、 $B=\pi \times (PM/2\pi)^2$ となり、個々の粒子の球形度は、球形度 $=A/B=A \times 4\pi / (PM)^2$ として算出することができる。このようにして得られた30 μm 以上の任意の粒子200個の球形度を求めその平均値を平均球形度とした。

[0012] 本発明のシリカ粉末は4要件から構成されている。第1の要件は、極大ピーク1と極大ピーク2を少なくとも有していることである。これ以外にも極大ピークがあってもよい。極大ピーク2は15～55 μm の間に存在する。15～55 μm のシリカ粒子の含有率は好ましくは、35～55体積%、更に好ましくは、40～50体積%であることが好適である。一方、極大ピーク1は1～4 μm の間に存在する。1～4 μm のシリカ粒子の含有率は、好ましくは、10～30体積%、更に好ましくは、20～25体積%であることが好適である。

[0013] 極大ピーク2の存在する15～55 μm の粒子(以下、「主粒」ともいう。)は、組成物、特に封止材の核となる粒子成分であり、主粒が15 μm 未満であると封止材の溶融粘度が上昇し、成形性が低下する。逆に、55 μm を超えると成形時に半導体チップを

損傷し、またワイヤー切断、ワイヤースweepなどの問題を起こす恐れがある。特に好ましい主粒は $25\sim 40\ \mu\text{m}$ であり、その含有率が40～50体積%である。一方、 $1\sim 4\ \mu\text{m}$ の粒子は主粒の間隙に入り込み、粒子の充填構造を密にする。 $1\sim 4\ \mu\text{m}$ の粒子の間にも極大ピーク1が必要である。粒子の密な充填構造は、シリカ粉末を組成物に高充填させ、しかもバリを少なくする。

[0014] 第2の要件は、極大ピーク2の最大頻度値が極大ピーク1のそれよりも大きいこと、即ち、ピークの高さが高いことである。この要件を満たさないと組成物、特に封止材の粘度が上昇し流動性が低下する。極大ピーク1の最大頻度値を示す粒子径は、極大ピーク2の最大頻度値を示す粒子径に対し、0.05～0.15倍の関係にあることが好ましい。中でも、極大ピーク2の最大頻度値が現れる粒度範囲が $25\sim 40\ \mu\text{m}$ で、極大ピーク1の最大頻度値が現れる粒度範囲は $1.5\sim 3.5\ \mu\text{m}$ であることが更に好ましい。

[0015] 第3の要件は、極大ピーク2にはショルダーがあることである。ショルダーとは、極大ピーク2の中に変曲点を有すること、すなわち特定粒径の粒子成分がより多く存在することを意味する。ショルダーの存在によって、ゴムや樹脂など充填したときに、ショルダーを構成する粒子成分が極大ピーク2の主粒同士の間を通過することができ、しかも極大ピーク1に存在する粒子が、ショルダーを構成する粒子成分の間隙に効率よく入り込むことができるので、更なる高充填が可能となる。極大ピーク2のショルダーは $4\sim 20\ \mu\text{m}$ の粒径範囲にあることが好ましく、ショルダーを構成する粒子は10～20体積%、特に13～18体積%であることが好ましい。また、ショルダーの大きさは最大頻度値として1.3～1.8体積%であることが好ましい。ショルダーの確認は、上記レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布測定によって行うことができる。

[0016] 第4の要件は、 $15\sim 55\ \mu\text{m}$ の粒子の含有率が $1\sim 4\ \mu\text{m}$ の粒子の含有率よりも多いことである。この逆であると、 $15\sim 55\ \mu\text{m}$ の粒子に入り込めない $1\sim 4\ \mu\text{m}$ の粒子が多くなり密充填とすることができず、組成物の熔融粘度が上昇する恐れが高くなる。

本発明のシリカ粉末においては、 $55\ \mu\text{m}$ 超の粒子の含有率が5体積%以下(0を含む)、 $1\ \mu\text{m}$ 未満の含有率が10体積%以下(0を含む)である。残部は $4\ \mu\text{m}$ を超え

15 μ m未満のシリカ粒子である。30 μ m以上の粒子の平均球形度を0.85以上、特に0.93以上とすることによって、バリ抑制作用が助長される。

[0017] シリカ粉末は、封止材の熱膨張率を半導体チップのそれにできるだけ近づけるため、非晶質シリカ粉末であることが好ましい。非晶質シリカ粉末は、結晶質シリカ粉末を溶融処理することによって製造することができる。

[0018] 非晶質シリカの非晶質率は、粉末X線回折装置(例えばRIGAKU社製「モデルMini Flex」)を用い、CuK α 線の2 θ が26°～27.5°の範囲において試料の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ことができる。すなわち、結晶質シリカは、26.7°に主ピークが存在するが、非晶質シリカではピークは存在しない。非晶質シリカと結晶質シリカが混在していると、結晶質シリカの割合に応じた26.7°のピーク高さが得られるので、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、式、非晶質率(%)=(1-結晶質シリカ混在比)×100、によって求めることができる。

[0019] 本発明のシリカ粉末は、シリカ粉末を粉碎、造粒、分級、混合などの単位操作を適宜組合せ、それらの条件を選ぶことによって製造することができる。簡単には、極大ピーク2を有する主粒と、極大ピーク2に有させるショルダー部分の粒子と、極大ピーク1を有する1～4 μ mの粒子とを、所定量混合することによって製造することができる。

[0020] 本発明の組成物について説明する。本発明の組成物は本発明のシリカ粉末をゴム及び樹脂の少なくとも一方に含有させたものである。組成物中のシリカ粉末の含有率は全く自由であり、例えば10～99質量%、好ましくは、50～95質量%であることが好適である。

[0021] ゴムとしては、例えばシリコーンゴム、ウレタンゴム、アクリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、エチレン酢酸ビニル共重合体等が使用される。また、樹脂としては、例えばエポキシ樹脂、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、全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、ポリカーボネート、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）樹脂等が使用される。

[0022] 封止材としては、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い。具体例を挙げれば、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ロ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ポキシ樹脂、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である。中でも、耐湿性や耐ハンダリフロー性の観点から、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最適である。

[0023] エポキシ樹脂の硬化剤については、エポキシ樹脂と反応して硬化させるものであれば特に限定されない。例示すれば、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である。硬化反応を促進させるため、硬化促進剤を配合することができる。硬化促進剤を例示すれば、1, 8-ジアザビスクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7、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である。

[0024] 本発明の組成物は、上記各材料の所定量を加熱ロールや、ニーダー、一軸又は二軸押し出し機等によって混練した後、冷却、粉砕することによって製造することができる。本発明の封止材は、本発明の組成物からなるものである。半導体の封止には、ト

ランスファーモールド、マルチプランジャー等の公知の成形法が採用される。

実施例

[0025] 実施例1～5 比較例1～8

天然珪石の粉碎物をLPGと酸素との燃焼により形成される火炎中に供給し、溶融・球状化処理を行って、球状非晶質シリカ粉末を得た。火炎形成条件、原料粒度、原料供給量、分級条件、混合条件などを適宜調整して、表1、表2に示される13種の粉末を製造した。粒度分布の調整は主として原料粒度の調整と球状化処理後の粉体の多段篩分け操作によって行った。また、球形度の制御は主として火炎形成条件、原料供給量を調整することにより行った。粉体名A～Eが実施例に係るシリカ粉末であり、粉体名F～Mが比較例に係るシリカ粉末である。粉体名A～Mの非晶質率はいずれも99%以上、粉体全体の平均球形度は0.90以上であった。これらのシリカ粉末の粒度特性を上記方法に従い測定した。それらの結果を表1、表2に示す。

[0026] 封止材の充填材としての特性を評価するため、球状非晶質シリカ粉末A～M90%（質量%、以下同じ）に対し、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3', 5, 5'-テトラメチルビフェニル型エポキシ樹脂4.3%、フェノールノボラック型樹脂4.4%、トリフェニルホスフィン0.2%、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン0.5%、カーボンブラック0.2%、エステルワックス0.4%を加え、ヘンシェルミキサーにてドライブレンドした後、得られた配合物を同方向噛み合い二軸押出混練機（スクリー径D=25mm、ニーディングディスク長10Dmm、パドル回転数100rpm、吐出量4kg/h、ヒーター温度100～105℃）で加熱混練した。吐出物を冷却プレス機にて冷却した後、粉碎して半導体封止材料を得た。得られた材料の成形性とバリ長さを次に示す方法に従って評価した。それらの結果を表1、表2に示す。

[0027] (1)成形性（スパイラルフロー）

EMMI-I-66 (Epoxy Molding Material Institute; Society of Plastic Industry) に準拠したスパイラルフロー測定用金型を取り付けたランスファー成形機を用いて、上記エポキシ樹脂組成物のスパイラルフロー値を測定した。ランスファー成形条件は、金型温度175℃、成形圧力7.4MPa、保圧時間90秒とした。

この値が大きいほど、高流動性であり、成形性が良いことを示す。

[0028] (2)バリ

32ピンLOC(Lead on Chip)構造TSOP(Thin Small Outline Package;10mm×21mm、厚さ1.0mm、模擬ICチップサイズ9mm×18mm、リードフレーム42アロイ製)の半導体パッケージをトランスファー成形機により48個作製し、平均バリ長さを測定した。トランスファー成形条件は、金型温度175℃、成形圧力7.4MPa、保圧時間90秒とした。

この値が大きいほど、バリ発生が少ないことを示す。

[0029] 表1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
粉体名	A	B	C	D	E
極大径 P 1 (μ m)	1.6	2.4	2.4	2.0	2.2
P 2 (μ m)	30	45	28	38	30
P 1 の最大頻度値 (体積%)	1.4	1.4	1.4	2.2	2.1
P 2 の最大頻度値 (体積%)	3.1	2.9	3.2	2.8	2.9
1 ~ 4 μ m 粒子の含有率 (体積%)	24.8	22.1	28.9	22.6	26.8
1.5 ~ 5.5 μ m 粒子の 含有率 (体積%)	43.9	46.3	42.1	50.2	42.2
4 μ m 未満 ~ 1.5 μ m 超粒子 の含有率 (体積%)	25.5	25.7	23.1	18.1	24.3
ショルダーの位置 (μ m)	4.0 ~ 10	4.3 ~ 11	4.6 ~ 11	4.3 ~ 10	4.3 ~ 11
ショルダーの最大頻度値 (体積%)	1.5	1.4	1.5	1.4	1.5
5.5 μ m 超粒子の 含有率 (体積%)	2.3	2.4	2.1	1.9	1.1
1 μ m 未満粒子の 含有率 (体積%)	3.5	3.5	3.8	7.2	5.6
3.0 μ m 以上粒子の 平均球形度 (—)	0.88	0.89	0.94	0.91	0.92
スパイラルフロー (c m)	111	113	120	115	114
バリ長さ (mm)	2.4	2.4	2.1	1.7	2.4

[0030] 表2

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
粉体名	F	G	H	I
極大径 P 1 (μ m)	1. 8	2. 4	6. 0	2. 2
P 2 (μ m)	30	45	32	14
P 1 の最大頻度値 (体積%)	1. 4	1. 5	1. 5	1. 6
P 2 の最大頻度値 (体積%)	3. 1	2. 9	3. 2	2. 7
1 ~ 4 μ m 粒子の 含有率 (体積%)	25. 0	22. 6	19. 6	27. 8
1. 5 ~ 5. 5 μ m 粒子 の含有率 (体積%)	44. 1	45. 9	43. 9	35. 6
4 μ m 未満 ~ 1. 5 μ m 超粒 子の含有率 (体積%)	25. 1	25. 6	32. 0	31. 0
ショルダーの位置 (μ m)	なし	なし	7. 5 ~ 17	4. 0 ~ 9. 0
ショルダーの最大頻度値 (体積%)	なし	なし	1. 5	1. 5
5. 5 μ m 超粒子の 含有率 (体積%)	2. 3	2. 4	2. 3	1. 1
1 μ m 未満粒子の 含有率 (体積%)	3. 5	3. 5	2. 2	4. 5
3. 0 μ m 以上粒子の 平均球形度 (-)	0. 86	0. 88	0. 90	0. 91
スパイラルフロー (c m)	97	99	98	88
バリ長さ (m m)	2. 7	2. 8	3. 6	2. 1

[0031] 表2(続き)

	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8
粉体名	J	K	L	M
極大径 P 1 (μ m)	2.4	0.8	2.2	2.0
P 2 (μ m)	30	30	60	28
P 1 の最大頻度値 (体積%)	2.3	1.4	1.6	2.3
P 2 の最大頻度値 (体積%)	2.2	3.2	2.5	2.3
1 ~ 4 μ m 粒子の 含有率 (体積%)	29.7	22.6	29.6	35.1
1.5 ~ 5.5 μ m 粒子の 含有率 (体積%)	35.8	46.8	36.3	33.4
4 μ m 未満 ~ 1.5 μ m 超粒子 の含有率 (体積%)	29.4	19.8	19.6	25.7
ショルダーの位置 (μ m)	4.3 ~ 11	3.8 ~ 10	4.6 ~ 12	4.3 ~ 10
ショルダーの最大頻度値 (体積%)	1.4	1.6	1.5	1.4
5.5 μ m 超粒子の 含有率 (体積%)	2.0	2.2	13.6	1.9
1 μ m 未満粒子の 含有率 (体積%)	3.1	8.6	0.9	3.9
30 μ m 以上粒子の 平均球形度 (-)	0.90	0.92	0.92	0.91
スパイラルフロー (c m)	81	95	116	74
バリ長さ (m m)	2.6	2.6	5.1	2.9

[0032] 実施例と比較例との対比から明白なように、実施例のシリカ粉末を配合した組成物は、シリカ粉末の充填率が90質量%であっても成形性が良好であり、バリ長さが低い優れたレベルであった。

産業上の利用可能性

[0033] 本発明のシリカ粉末は、自動車、携帯電子機器、家庭電化製品等のモールドイングコンパウンドなどの樹脂成形部品、更にはパテ、シーリング材、船舶用浮力材、合成木材、強化セメント外壁材、軽量外壁材、封止材などの充填材として使用される。また、本発明の組成物は、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、プリプレグの1枚又は複数枚を銅箔等と共に加熱成形された電子部品、更には電線被覆材、封止材、ワニスなどの製造に

使用される。また、本発明の封止材は、流動性、充填性に優れ、小型、薄型、狭ピッチの半導体パッケージへの成形が容易な封止材として使用される。

請求の範囲

- [1] レーザー回折・散乱法による体積基準頻度粒度分布において、少なくとも、 $1\sim 4\mu\text{m}$ の粒度域に極大ピーク1の最大頻度値と、 $15\sim 55\mu\text{m}$ の粒度域に極大ピーク2の最大頻度値とを有するシリカ粉末であって、
- 前記極大ピーク2の最大頻度値が、前記極大ピーク1の最大頻度値よりも大きく、
- 前記極大ピーク2にショルダーがあり、
- $15\sim 55\mu\text{m}$ の粒度域の粒子の含有率が、 $1\sim 4\mu\text{m}$ の粒度域の粒子の含有率よりも多い、
- ことを特徴とするシリカ粉末。
- [2] $15\sim 55\mu\text{m}$ の粒度域の粒子の含有率が35～55体積%、 $1\sim 4\mu\text{m}$ の粒度域の粒子の含有率が10～30体積%、 $55\mu\text{m}$ 超の粒子の含有率が5体積%以下(0を含む)、 $1\mu\text{m}$ 未満の含有率が10体積%以下(0を含む)、残部が $4\mu\text{m}$ を超え、 $15\mu\text{m}$ 未満の粒子から構成されており、前記極大ピーク1の最大頻度値が、 $1.5\sim 3.5\mu\text{m}$ の間に、前記極大ピーク2の最大頻度値が、 $25\sim 40\mu\text{m}$ の間に存在し、しかも前記極大ピーク2の $4\sim 20\mu\text{m}$ の粒径範囲にショルダーが存在している請求項1に記載のシリカ粉末。
- [3] $30\mu\text{m}$ 以上の粒子の平均球形度が、0.85以上である請求項1又は2に記載のシリカ粉末。
- [4] 請求項1～3のいずれかに記載のシリカ粉末をゴム及び樹脂の少なくとも一方に含有させてなることを特徴とする組成物。
- [5] 請求項4に記載の組成物からなることを特徴とする半導体封止材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/055503

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/18(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C09C1/28(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, C08K3/36, C08L101/00, C09C1/28, 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	1996-2007
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2007	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2007

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 2005-306923 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 04 November, 2005 (04.11.05), Claims; examples; table 1 to 3 (Family: none)	1-5
A	JP 2005-119929 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 12 May, 2005 (12.05.05), Claims; examples; tables 1, 2 (Family: none)	1-5

☒ 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
14 June, 2007 (14.06.07)

Date of mailing of the international search report
03 July, 2007 (03.07.07)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/055503

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 2004-59343 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 26 February, 2004 (26.02.04), Claims; examples; comparative examples; tables 1, 2 (Family: none)	1-5
A	JP 2003-146648 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 21 May, 2003 (21.05.03), Claims; examples; comparative examples; tables 1, 2 (Family: none)	1-5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01B33/18(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C09C1/28(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 (I P C))

Int.Cl. C01B33/18, C08K3/36, C08L101/00, C09C1/28, 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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 7 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 7 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 7 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 請求の範囲の番号
A	JP 2005-306923 A (電気化学工業株式会社) 2005. 11. 04, 特許請求の範囲、実施例、表 1-3 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2005-119929 A (電気化学工業株式会社) 2005. 05. 12, 特許請求の範囲、実施例、表 1, 2 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2004-59343 A (電気化学工業株式会社) 2004. 02. 26, 特許請求の範囲、実施例、比較例、表 1, 2 (ファミリーなし)	1-5

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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

1 4 . 0 6 . 2 0 0 7

国際調査報告の発送日

0 3 . 0 7 . 2 0 0 7

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

大工原 大二

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 1 6

4 G

9 3 4 3

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 請求の範囲の番号
A	JP 2003-146648 A (電気化学工業株式会社) 2003.05.21, 特許請求の範囲、実施例、比較例、表 1, 2 (ファミリーなし)	1-5