シリカ粒子高充てんエポキシ樹脂の強度特性[†]

西村 朝雄* 矢口 昭弘** 河合 末男*

Fracture Properties of Highly Silica Particulate Filled Epoxide Resins

by

Asao NISHIMURA*, Akihiro YAGUCHI** and Suelo KAWAI*

In plastic packaged integrated circuit (IC) devices, silicon chips are molded with epoxide resins containing about 60% by volume of silica particles. Recently, the size of chips mounted in a package has increased rapidly with advances in large-scale integration technology. This trend creates a problem of increased mechanical stress in the package, which sometimes causes cracking in the encapsulation resin under temperature cycling and other conditions. Hence thorough understanding of the fracture properties of these materials has become an important issue in package design.

In this study, static fracture, fatigue and creep properties of silica particulate filled epoxide resins for IC encapsulation were studied at various temperatures between -55°C and 150°C by using smooth plate specimens. The fatigue tests were carried out with different mean stresses and frequencies. Comparison was made between the properties, and their failure mechanism was discussed.

The gradients of both $S-N$ and creep rupture curves were very small. The test results suggest that the fracture of these materials is mainly controlled by stress rather than strain. Scanning electron microscopy of the fracture surfaces indicates that a crack propagates by debonding of filler particle/matrix interfaces at high temperatures around the glass transition temperature, whereas it propagates through filler particles at lower temperatures. Most features of the test results can be attributed to the brittle fracture of the particles.

Key words : Particulate filled epoxide resin, Silica particle, IC plastic package, Flexural strength, Fatigue strength, Creep strength

1 緒 言

樹脂封止形の半導体集積回路 (IC) パッケージは、シリコン素子やリード線をトランスファモールド用エポキシ樹脂で封止した構造となっている。この樹脂中には、線膨張係数の低減と熱伝導率の向上を目的として、重量で約 70%、体積で約 60% 程度のシリカ粒子が充てんされている。近年、半導体製品の高集積化に伴って素子が大型化し、樹脂に発生する応力は増大する傾向にある。このため、パッケージの信頼性保証を目的として広く行われている温度サイクル試験などでは、樹脂に割れが発生することがあり¹⁾、パッケージ設計上、樹脂の強度特性の把握が重要になっている。

粒子充てんエポキシ樹脂の強度については、これまでも種々の報告がなされている^{2)~10)}。しかし、これらの多くは、充てん率の比較的低い注型樹脂を対象としたものであり、充てん剤を体積分率で 50% 以上含む材料についての報告は極めて少ない。特にエポキシ樹脂は温度によって強度が大きく変化し、実使用温度条件下でも顕著な粘弾性挙動を示す。したがって、このよ

うな特性をも考慮した強度特性の把握が重要となるが、これまでに得られている知見は極めて少ない。

そこで本研究では、シリカ粒子高充てんエポキシ樹脂の強度特性を明らかにするため、板状平滑試験片を用いて種々の温度での静的強度試験、疲労試験およびクリープ試験を行い、各強度特性間の関係や破壊メカニズムについて検討を行った。

2 材料および実験方法

2.1 材料

実験に使用した材料は、互いにメーカーの異なる 3 種類の IC 封止用トランスファモールド樹脂である。主要な特性の比較を Table I に示す。各材料はいずれも

Table I. Test materials.

Material	Filler volume fraction (%)	Glass transition temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Young's modulus at 20°C (GPa)
Resin A	60	150	14.8
Resin B	54	165	14.7
Resin C	55	147	12.1

[†] 原稿受理 昭和63年12月7日 Received Dec. 7, 1988

* 正会員 (株)日立製作所機械研究所 土浦市神立町, Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi Ltd., Kandatsu-machi, Tsuchiura

** (株)日立製作所機械研究所 土浦市神立町, Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi Ltd., Kandatsu-machi, Tsuchiura

Fig. 1. Filler dispersion on polished section of specimen (Resin A).

主剤にクレゾールノボラックエポキシ樹脂、硬化剤にフェノールノボラック樹脂、充てん剤に熔融シリカを使用しており、このほかに可塑剤、硬化促進剤、カップリング剤、離型剤、難燃化剤、着色剤などが若干量添加されている。成形材断面における充てん剤の分布状況を Fig. 1 に示す。充てん剤の粒子は粉砕によって製造されるために不規則な形状をしており、粒径は最小 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下、最大約 $100\text{ }\mu\text{m}$ の範囲に分布している。

2・2 実験方法

Fig. 2 に示す試験片を用いて、静的曲げ試験、曲げ疲労試験および曲げクリープ試験を行った。試験片の作製にあたっては、試験片と同一形状の金型に長手方向、幅方向 2 種類の方向から樹脂をトランスファモールドした後、 175°C で 5 hr のポストキュアを行った。

使用した試験機は容量 $\pm 2\text{ kN}$ の電気油圧式疲労試験機であり、温度精度 $\pm 2^{\circ}\text{C}$ の恒温槽内で -55°C ~ $+150^{\circ}\text{C}$ の範囲で試験を行った。荷重の負荷は主として Fig. 2 に示した 4 点曲げで行い、疲労試験の場合のみ、支点間隔 52 mm の 3 点曲げ試験を一部併用した。静的曲げ試験は、変位速度 0.02 mm/sec の変位制御で行った。疲労試験は片振りの荷重制御（応力比 $R=0$ 、一部試験のみ平均応力 $\sigma_m=76\text{ MPa}$ ）で行い、 $0.1\sim 10\text{ Hz}$ の正弦波のほか、最大荷重時と除荷時の

Fig. 2. Specimen geometry and loading configuration.

保持時間各 5 min 、周期 12 min の台形波でも試験を行った。クリープ試験は荷重一定条件で行った。4 点曲げ試験片の圧縮側表面には、ゲージ長 1 mm のひずみゲージをはり付け、試験中のひずみを測定した。

3 実験結果および考察

3・1 静的強度

静的曲げ試験における破断までの荷重—変位曲線の例を Fig. 3 に示す。本研究の材料はいずれも、ガラス転移温度付近の高温領域以外で、ほとんど塑性変形を伴わないぜい性的な破壊を生じた。

樹脂のモールド方向と室温での破断応力の関係を Table II に示す。静的強度に樹脂の配向の影響は認められない。網状高分子であるエポキシ自体が配向を生じにくいという、充てん剤粒子も不規則な方向に一樣に分散しているためと考えられる。静的強度以外の強度特性についても配向の影響は認められなかったため、以下ではモールド方向を特に区別しないで表示する。

静的曲げ試験の破断応力と破断ひずみに及ぼす試験温度の影響を Fig. 4 の (a) と (b) に示す。両図の横軸には試験温度 T と各材料のガラス転移温度 T_g との差をとった。また Fig. 4 (a) の縦軸には、破断応力 σ_b を、Table II に示した各材料の 20°C での平均破断応力

Fig. 3. Load-displacement curves for static flexural tests.

Table II. Effect of molding direction on average flexural strength.

Molding direction	Average flexural strength at 20°C (MPa)		
	Resin A	Resin B	Resin C
Longitudinal	126.5 (n=6)	117.4 (n=5)	136.5 (n=4)
Transverse	126.5 (n=4)	116.5 (n=4)	—
Total	126.5 (n=10)	117.0 (n=9)	136.5 (n=4)

n: Number of specimens

(a) Fracture stress.

(b) Fracture strain.

Fig. 4. Effect of temperature on static flexural strength.

$\sigma_{b,20}$ で正規化して示した。Fig. 4(a)において、破断応力は温度の上昇とともに低下し、ガラス転移温度 T_g 近傍で急激に低下する。図示のように $\sigma_{b,20}$ と T_g を基準として整理すると、破断応力 σ_b と試験温度 T の関係は、材料によらずほぼ1本の曲線で表せることがわかる。このことは、ガラス転移温度以下の任意の温度での強度が、室温での強度とガラス転移温度から推定できることを示している。一方、Fig. 4(b)の破断ひずみの場合には、温度の上昇とともに増加しており、その傾向も材料ごとに異なっている。特にC材では、A、B材に比べて T_g よりかなり低い温度から破断ひずみの増加が顕著になり、絶対値も大きくなっている。

3・2 疲労強度

3・2・1 温度の影響 A材とC材について、 -55°C 、 20°C および 150°C で実施した完全片振り（応力比 $R=0$ ）3点曲げ疲労試験の結果をFig. 5に示す。荷重波形は1Hzの正弦波である。縦軸には、繰返し応力 $\Delta\sigma$ を各材料、温度の3点曲げ静的強度 σ_b で正規化して示した^{*1}。図において -55°C と 20°C のS-N曲線は、一般の金属材料に比べて極めて水平に近い点の特徴である。またこれらの温度では、静的強度に対する疲労強度の低下割合が材料によらず同一の曲線で表されている。上記S-N曲線の傾きは、充てん剤の体積分率がそれぞれ45%以下および37%以下のエポキシ樹脂を用いた土橋、児玉および山崎、千

Fig. 5. Effect of temperature on fatigue strength.

葉⁷⁾のデータより小さくなっており、藤井¹¹⁾によるレジコンクリートの結果に近い。この特性には、体積で約60%を占める充てん剤の存在が関与していると考えられる。150℃ではS-N曲線の傾きが大きくなり、静的強度に対する強度低下の割合も大きくなる。また強度低下の割合は、A材とC材で異なっている。

3・2・2 平均応力の影響 A材とB材について20℃の3点曲げ疲労試験を、完全片振りと平均応力 $\sigma_m = 76 \text{ MPa}$ 一定の2条件で行った。結果をFig. 6に示す。平均応力76 MPaの結果は、同一データを繰返し応力範囲 $\Delta\sigma$ と最大応力 $\sigma_{\max}$ の両方で整理し、それぞれ $\triangle$ と $\blacktriangle$ の記号で示した。完全片振り ($\sigma_m = \sigma_{\max}/2$) の場合には、 $\Delta\sigma = \sigma_{\max}$ であるから、1種類の記号 $\circ$ のみで示した。データのばらつきは大きい

Fig. 6. Effect of mean stress on fatigue strength.

*1 本研究では、Fig. 5についてのみ、A、C材とも他のデータと材料の製造ロットが異なっている。また本研究の材料の3点曲げ静的強度は、4点曲げに比べて室温で約15%高くなる。したがってFig. 5中に示した σ_b の値は、Table IIの結果と絶対値、大小関係とも異なっている。

ものの、A、B 両材とも平均応力の影響は大きく、特に A 材の寿命は大部分、最大応力 $\sigma_{\max}$ によって支配されている。材料間で平均応力の効果に差のある原因としては、充てん率の差異が考えられる。

3・2・3 繰返し速度の影響 20°C の完全片振り 4 点曲げ疲労試験について、繰返し速度の影響を検討した。正規化した S-N 曲線を Fig. 7 に示す。0.1 ~ 10 Hz の結果は、材料、繰返し速度に関係なく同一の曲線で表され、この範囲で繰返し速度の影響は見られない。しかし保持時間 5 分の台形波では明らかな強度低下が認められる。

正弦波による上記試験結果を、試験中に測定した繰返しひずみ範囲で整理した結果を Fig. 8 に示す。A 材、C 材とも、繰返し速度が小さいほどひずみ範囲は大きくなる。正弦波の場合、このように繰返し速度によってひずみ範囲が変化するにもかかわらず、応力で整理した疲労強度はほぼ一定になっている。このことは、これらの材料の破壊がひずみではなく、応力によって支配されていることを示唆している。なお、Fig. 7 の台形波の場合の強度が正弦波に比べて低くなっているのは、次節で述べるクリープ損傷の重畳に起因すると考えられる。

3・3 クリープ強度

-55°C ~ 150°C で 4 点曲げによって求めたクリープ破断曲線を Fig. 9 に示す。縦軸は各材料および温度の

Fig. 7. Effect of frequency on fatigue strength.

Fig. 8. Strain range in fatigue test.

Fig. 9. Creep strength.

Fig. 10. Variation of strain during creep tests.

静的強度 σ_b で正規化した応力である。クリープ破断曲線の傾きも、S-N 曲線同様極めて小さい。20°C では、各材料のデータともほぼ同一の直線上に載っており、静的強度に対する強度低下割合も小さい。これに比べて 100°C と 150°C では強度低下が大きく、150°C での強度低下は、C 材の方が A 材よりも著しい。-55°C では、荷重負荷操作中に破断を生じる場合が多く、定荷重保持による破断寿命を求めることが難しかった。

クリープ試験時の圧縮側表面におけるひずみの時間変化例を Fig. 10 に示す。温度の上昇とともにひずみ速度が大きくなり、ひずみ速度が定常に達するまでの時間も長くなる。またいずれの条件でも第 3 期クリープは認められない。別途実施した引張側表面のひずみ測定の結果でも第 3 期クリープは認められなかった。このことから、クリープはき裂の発生と初期のわずかな進展にのみ寄与し、破壊の大部分はぜい性的な不安定破壊によって生じると考えられる。なお、20°C では最初の 5 分程度でひずみの増加がほぼ定常状態となり、この間に破断までのひずみ増加の 50% 以上が発生している。Fig. 7 で台形波による疲労強度が 0.1 Hz 以上の正弦波の場合より低いのは、5 分間の応力保持によってクリープ損傷が重畳するためと考えられる。

3・4 疲労強度とクリープ強度の関係

(a) Resin A.

(b) Resin C.

Fig. 11. Comparison of fatigue strength with creep strength.

既に述べたように、本研究の材料の疲労寿命は最大応力の影響を強く受け、また応力保持の重畳によって低下する。したがって材料の強度特性を理解する上で、応力の繰返し効果と保持効果の関係を明らかにしておくことが重要である。そこで、Fig. 7 の $S-N$ 曲線の寿命を時間に換算して、クリープ破断曲線と比較した。結果を Fig. 11 に示す。時間への換算にあたっては、台形波の場合には最大応力での保持時間の累計を、ま

た正弦波の場合には便宜上、最大応力の 90% 以上の応力が作用する時間の累計を使用した。疲労強度はクリープ強度よりも低くなっており、疲労データは繰返し速度の大きいもの、すなわち同一時間内での繰返し数の多いものほど強度が低くなっている。寿命曲線の傾きは、疲労の方がクリープよりも大きくなっており、低応力側ほど両者の寿命差が大きくなっている。これらは、本研究の材料が応力保持と応力繰返しの両方によって損傷を受け、応力が低くなるにしたがって、応力繰返しの影響を強く受けることを示している。上記の傾向は、正弦波の時間換算を、例えば最大応力の 50% 以上などとしても、ほとんど変わらない。

Fig. 11 (b) 中には、10 Hz の疲労試験結果とクリープ試験の結果から線形損傷則によって推定した、台形波の寿命曲線も示してある。台形波の実験結果は、推定値よりも 2 オーダ近く寿命が短くなっており、疲労とクリープが重畳した場合の寿命推定に、線形損傷則が適用できないことがわかる。

3・5 破面観察および破壊メカニズムの検討

各温度における疲労破面の破壊起点部近傍を、走査型電子顕微鏡 (SEM) によって観察した結果を、Fig. 12 に示す。SEM 観察では、明確な破壊の起点、あるいは疲労き裂進展部と最終破壊部の差異を特定することはできなかった。しかし巨視的には、破面の粗さの差異からおおよその起点を推定することができた。各試験片とも破壊の起点は試験片断面のコナ付近にあることが観察された。Fig. 12 のうち -55°C と 20°C の破面には、粗大な充てん剤粒子の平たんなへき開面が多数観察され、き裂がこれらの粒子を貫通して進展したことを示している。また粗大粒子以外の部分では、個々の粒子がほとんど識別できず、き裂が充

(a) -55°C . (b) 20°C . (c) 150°C .

Fig. 12. Scanning electron micrographs near fracture origins of fatigue fracture surfaces (Resin A).

Fig. 13. Scanning electron micrograph at fracture origin of creep specimen tested at 20°C (Resin A).

てん剤粒子をう回してマトリックス中を進展したことを示している。これに対して 150°C の破面では、微細な充てん剤粒子にいたるまで、個々の粒子が破面上に突き出る形で明瞭に現れており、き裂が充てん剤粒子／マトリックス界面のはく離によって進展したことを示している。この温度とき裂進展経路の関係は、静的曲げ試験片やクリープ試験片についても観察されており、特に静的曲げ破面の場合には、SEM 観察上、疲労破面との差異を識別することができなかった。

室温におけるクリープ破面の破壊起点部を SEM によって観察した結果を Fig. 13 に示す。破壊起点部には、粗大な充てん剤粒子のへき開面に隣接して、微細な粒子の界面のはく離の跡が観察される。Fig. 13 以外の領域では、疲労破面と同様き裂が粒子とマトリックスを貫通した破面が観察された。後述するように、破壊じん性から算出した室温でのき裂安定成長域の寸法は、80 ～ 150 μm 程度であり、Fig. 13 の粒子／マトリックス界面のはく離領域も、ほぼこの寸法となっている。しかし粒子／マトリックス界面のはく離は、一定のき裂進展速度以下の安定成長で生じるという Young⁴⁾ らの報告もあり、上記界面はく離領域が安定成長域全体に対応するか否か、特に粗大粒子のへき開がどの時点で発生したかについては不明である。

前節までに述べた強度上の種々の特徴は、上記のき裂進展経路と充てん剤粒子の関係から理解できる。す

なわち、室温付近やそれ以下の低温では、充てん剤粒子／マトリックス界面の接着強度が高いうえ、本研究のような高充てん材では粗大な粒子が互いに近接しているため、き裂がこれらの粒子をすべてう回して進展することは困難である。このためき裂は、粗大粒子を多数貫通することが不可避となり、その進展には、繰返し応力や一定保持応力下でもぜい性破壊が混在する。応力の繰返しや保持によって強度が低下するのは、主としてマトリックス部あるいは粒子／マトリックス界面が損傷を受けるためであり、これによって発生、進展したき裂が充てん剤粒子を貫通するためには、一定以上の応力が必要になる。充てん剤粒子のぜい性破壊を支配するものは、繰返し応力の振幅や、マトリックス部のひずみではなく、作用する最大の応力である。Fig. 6 における最大応力の効果や Fig. 7, 8 における応力の優位性は、このことから理解できる。また、疲労試験、クリープ試験時の応力繰返し数や応力保持時間の増加によって強度があまり低下しないのも、充てん剤粒子のぜい性破壊に要する応力が原因になっていると考えられる。き裂の粒子貫通の少ない高温では、低応力でもき裂が進展できるため、寿命曲線の傾きが大きくなると考えられる。

なお、本研究の板状試験片を用いて 3 点曲げで測定した破壊じん性は、室温で A 材が $2.0 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 、B、C 材がともに $2.1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ であった。一様引張りを

受ける板材コーナにアスペクト比 0.6 の $1/4$ だ円き裂が存在する場合の応力拡大係数から、疲労およびクリープ試験時の不安定破壊開始時の臨界き裂寸法を求めると、室温で深さ $80 \sim 150 \mu\text{m}$ 程度となる。これは、ほぼ充てん剤粒子の最大径のオーダーであり、室温における平滑材の寿命の大部分は、き裂の発生と粗大粒子 1, 2 個程度の貫通に費されていると推定される。

4 結 言

IC 封止用シリカ粒子高充てんエポキシ樹脂を用いて、種々の温度での静的強度試験、疲労試験およびクリープ試験を行い、強度特性間の関係や破壊メカニズムについて検討した。主な結論は以下の通りである。

- (1) 静的強度は温度の上昇とともに低下する。この温度依存性は、ガラス転移温度との温度差に対して、材質によらずほぼ同一の関係となる。
- (2) -55°C および 20°C における $S-N$ 曲線は極めて水平に近く、 150°C では傾きが大きくなる。
- (3) 疲労強度は平均応力の影響を強く受ける。
- (4) 疲労強度には、 $0.1 \sim 10\text{Hz}$ の範囲で繰返し速度の影響は認められない。しかし保持時間 5 分の台形波では、強度が低下する。
- (5) クリープによる強度低下は疲労に比べて小さく、寿命曲線の傾きも疲労より小さい。
- (6) き裂は、高温では充てん剤粒子/マトリックス界面のはく離によって進展し、室温近傍以下の低温では、粗大な粒子は貫通し、微細な粒子はう回して進展する。上記 (2), (3), (5) などの各特徴は、き裂の充て

ん剤粒子貫通によるぜい性破壊の混在から説明できる。

最後に、本研究を進めるにあたり有益な御討論をいただいた(株)日立製作所武蔵工場の沖川進、西邦彦の両氏に心から謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) A. Nishimura, A. Tatemichi, H. Miura and T. Sakamoto, IEEE Trans. Components, Hybrids, Manuf. Technol., CHMT-10, 637 (1987).
- 2) 土橋 勝, 児玉峯一, 三菱電機技報, **47**, 1063 (1973).
- 3) H. Hojo, W. Toyoshima, M. Tamura and N. Kawamura, Polym. Eng. Sci., **14**, 604 (1974).
- 4) R. J. Young and P. W. R. Beaumont, J. Mater. Sci., **10**, 1343 (1975).
- 5) A. C. Moloney, H. H. Kaush and H. R. Stieger, J. Mater. Sci., **18**, 208 (1983).
- 6) 山崎利春, 千葉和夫, 材料, **33**, 1304 (1984).
- 7) 山崎利春, 千葉和夫, 材料, **35**, 629 (1986).
- 8) 清水敏夫, 小山充彦, 神津寛人, 後藤一敏, 岡部永年, 日本材料学会第35期学術講演会前刷, 65 (1986).
- 9) H. R. Beer, T. Kaiser, A. C. Moloney and H. H. Kausch, J. Mater. Sci., **21**, 3661 (1986).
- 10) W. J. Cantwell, A. C. Roulin-Moloney and T. Kaiser, J. Mater. Sci., **23**, 1615 (1988).
- 11) T. Fujii, K. Mizukawa and Z. Maekawa, Memoirs of the Faculty of Eng. Osaka City Univ., **16**, 1 (1975).
- 12) Y. Murakami, "Stress Intensity Factors Handbook", p. 714 (1987) Pergamon Press.