半導体封止用エポキシ樹脂の発熱挙動の解析

第2報 金型内での流動・硬化挙動の解析

佐伯 準一^{*1}・吉田 勇^{*2}

Analysis of Heat Generation of Epoxy Compounds for Encapsulation of Semiconductor Devices

Part II : Analysis of Mold-filling and Curing Dynamics

Saeki, Junichi*/Yoshida, Isamu*

A method for predicting the mold-filling and curing dynamics associated with heat generation caused by the chemical reaction of epoxy compounds has been developed. To verify this method, transient temperature profiles were measured during the mold-filling and curing process for two kinds of compounds used for encapsulation of semiconductor devices. After the completion of fill, temperature exceeded the mold temperature. The calculated temperature profiles for both compounds fit well with the experimental data. Calculated cure profiles showed that the cure was faster near the wall than at the center due to a quick temperature rise produced by heat conduction from the mold. On the other hand, within the usual filling time, the degree of cure remained very small. Calculated viscosity profiles were compared between this new model and the conventional model, which neglects heat generation, for two kinds of circular flow channels. Differences in the viscosity profiles were not found under several molding conditions due to the small curing advancement up until gelation.

Key words : Epoxy compound/Heat generation/Encapsulation/Semiconductor

1. 緒 言

半導体は素子単体で使用されることはまれであり、外部環境からの保護やプリント基板などへの接続、実装を容易にする目的でパッケージに収納される。信頼性の高いパッケージを低価格で大量に市場に供給するために、熱硬化性樹脂を用いて加熱金型内で複数の素子を封止する方式が主流となっている^{1)~3)}。この樹脂はエポキシを主剤とし、硬化剤、石英フィラーおよび各種添加剤を含む複合材料⁴⁾であり、低圧トランスファー成形法との組み合わせによりプラスチックパッケージの生産が行われている。

金型内の樹脂の流動・硬化挙動は製品品質と密接に関連する重要な因子であり、これらの関係をコンピューターシミュレーションにより事前に予測し、合理的なパッケージ

構造、プロセス装置設計を迅速に行うことが強く望まれている。筆者らはこれまで主に樹脂の注入過程を対象とした解析を行ってきたが、硬化反応による発熱の挙動を考慮しなくても実用レベルの流動予測が可能となっている^{5)~9)}。しかし、金型内を樹脂が充填後の保圧、離型まで含めたプロセスの最適化のためには、発熱モデルの構築が重要になる。

硬化反応による発熱を記述するためにこれまでにいろいろなモデルが提唱されている^{10)~15)}。もっとも基本的なモデルは n 次の反応次数を持つ化学反応の理論に基づくもので、等温状態において発熱速度は時間の経過とともに指数的に減少する^{10)~12)}。その他には時間の経過の途中で発熱速度の最大値が存在する各種実験式のモデルがある^{13)~15)}。ただし、これらの実験式モデルの中には数値解析を用いないと解が求められない形のものや、反応率が粘度式の一部として組み込まれており、反応の影響を無視したい場合でも計算の簡略化が困難なものもある。

筆者らは、先に、取り扱いが容易で精度のよい発熱モデルを導いた¹⁶⁾。本報では、このモデルを筆者らの流動シミュレーション手法^{5)~8)}に組み込み、金型内での検証ならびに発熱を考慮しない従来解析手法との比較検討を行った。

^{*1} ㈱日立製作所 生産技術研究所 生産システム第二部
横浜市戸塚区吉田町 292 (〒244-0817)
Production Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.
292 Yoshida-cho, Totsuka-ku, Yokohama 244-0817, Japan

^{*2} ㈱日立製作所 生産技術研究所 実装センター
横浜市戸塚区吉田町 292 (〒244-0817)
Production Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.
292 Yoshida-cho, Totsuka-ku, Yokohama 244-0817, Japan
2000. 6. 30 受理

2. 実験方法

用いた材料は半導体のメモリ一封印用途の低応力材¹⁾と一般用途の2種類とした。本報では前者を材料A、後者を材料Bと呼称する。

図1に実験に用いた装置と金型の概略を示す。金型流路はポットに直結した長さ48 mm、幅30 mm、深さ10 mmの諸元のものを用いた。この流路のポットからの距離32 mmで高さおよび幅方向の中央部にシース管付きの熱電対の先端をセットして金型に固定した。この金型をトランスファー成形機（藤和精機㈱製 TEP 75-30）に取り付け、熱電対の温度とプランジャー変位をモニタした。

成形実験では1回の成形で用いる材料は $75 \times 10^{-3} \text{ kg}$ とした。材料は室温下で135 MPaの加圧力を用いてあらかじめタブレット化しておき、成形時には高周波予熱機で $75 \pm 3^\circ \text{C}$ に予備加熱してポット内に投入した。プランジャー駆動用設定油圧はプランジャー底部の圧力換算値で6.86 MPaとした。金型温度は 145°C 、 180°C の2水準とし、それぞれ $\pm 3^\circ \text{C}$ の精度に保持した。設定移送速度は材料Aは速硬化性のため10 mm/sとし、材料Bでは3.5 mm/sとした。

3. 解析方法

3.1 等温粘度式

筆者らがこれまで流動解析に用いてきた等温粘度式^{5)~8)}を以下に示す。

$$\eta = \eta_0 \left((1+t/t_0) / (1-t/t_0) \right)^c \quad (1)$$

$$\eta_0 = a \exp(b/T) \quad (2)$$

$$t_0 = d \exp(e/T) \quad (3)$$

$$C = f/T - g \quad (4)$$

ここで、 η ：粘度、 T ：温度、 t ：時間、 η_0 初期粘度、

t_0 ：ゲル化時間、 C ：粘度上昇係数、 a, b, d, e, f, g ：材料固有の係数である。(1)式は次の特性を有する。

$$t = 0 \text{ で } \eta = \eta_0 \quad (5)$$

$$t = t_0 \text{ で } \eta = \infty \quad (6)$$

なお、これらの式から非等温時の粘度変化を予測する手法も導いており^{5), 6)}、実際の金型内での粘度変化が計算できるようになっている。

3.2 等温発熱速度式

先に導いた等温発熱速度式¹⁶⁾を次に示す。

$$\frac{dQ}{dt} = K_T (1-\delta)^N \delta^M \quad (7)$$

$$K_T = K_a \exp(-E_a/T) \quad (8)$$

$$\delta = t/t_{end} \quad (9)$$

$$t_{end} = t_f \exp(E_b/T) \quad (10)$$

ここで、 Q ：単位質量当たりの発熱量、 dQ/dt ：単位質量当たりの発熱速度、 K_T ：温度の関数となる係数、 δ ：無次元経過時間、 t_{end} ：温度の関数となる反応完了時間、 N, M, K_a, E_a, t_f, E_b ：材料固有の係数である。(7)~(10)式は次の特性を有する。

$$t = 0 \text{ で } \delta = 0, dQ/dt = 0 \quad (11)$$

$$t = t_{end} \text{ で } \delta = 1, dQ/dt = 0 \quad (12)$$

$$\delta_{max} = M/(N+M) \quad (13)$$

$$\left(\frac{dQ}{dt} \right)_{max} = K_T (1-M/(N+M))^N (M/(N+M))^M \quad (14)$$

ここで、 δ_{max} ：発熱速度の最大値を与える δ 、

Fig. 1 Schematic of the apparatus used for temperature measurement during mold-filling and curing

$(dQ/dt)_{\max}$: 最大発熱速度である。なお、これらの式から非等温時の発熱を予測する手法も導いており¹⁶⁾、実際の金型内での発熱速度が計算できるようになっている。

3.3 円管内流動解析

円管内の流動解析では次の仮定を設けた。(1)溶融樹脂は非圧縮性であり、管軸方向にクリープ流動をする。(2)管壁でのすべりはない。(3)流動先端の噴水効果の現象は無視する。(4)管壁は樹脂と完全接触をする。(5)熱物性値は温度によらず一定とする。(6)流路に流入する樹脂は常に初期状態が保たれている。以上の仮定のもとに質量、運動量、エネルギーの保存方程式はそれぞれ次のようになる。

Q_v = 2\pi \int v_z r dr (15)

\frac{\partial P}{\partial z} = \frac{-1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \eta \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) (16)

\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \eta \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} \right)^2 + \rho \left(\frac{dQ}{dt} \right) (17)

ここで、Q_v : 体積流量、v_z : 管軸方向速度、r : 半径方向座標、P : 圧力、z : 管軸方向座標、ρ 密度、C_p : 定圧比熱、λ : 熱伝導率である。(17)式の右辺第3項が硬化反応による発熱速度の項である。これらの保存方程式と粘度式、発熱速度の式を組み合わせることで差分法により数値解析した。離散化や流量一定流動、圧力一定流動などの取り扱いについては報告済み^{5),6)}なのでここでは省略する。

3.4 解析内容

用いた材料の粘度式中の係数、熱物性値、反応速度式中の係数の値を表1に示す。粘度式および反応速度式中の係数の求め方については報告済み^{5),16)}なのでここでは省略する。熱硬化性樹脂の場合、溶融状態での熱物性値の求め方

Table 1 Viscosity parameters, thermal constants, and kinetic parameters of the materials

Item	Material	A	B
Viscosity Parameters	a (Pa · s)	6.0 × 10 ⁻⁹	3.0 × 10 ⁻⁹
	b (K)	9783	9660
	d (s)	6.47 × 10 ⁻⁸	8.2 × 10 ⁻⁷
	e (K)	8614	7610
	f (K)	2004	1900
	g (-)	3.0	2.48
Density	ρ (kg/m ³)	1960	1820
Specific heat at constant pressure	C _p (J/(kg·K))	992	1067
Thermal conductivity	λ (W/m·K)	1.01	0.68
Kinetic parameters	K _a (J/(kg·s))	6.04 × 10 ¹³	2.1 × 10 ¹³
	E _a (K)	8.6 × 10 ³	8.8 × 10 ³
	t _f (s)	3.1 × 10 ⁻⁵	8.6 × 10 ⁻⁵
	E _b (K)	7.15 × 10 ³	6.63 × 10 ³
	N (-)	10.15	5.43
	M (-)	2.58	1.83
	T _L (°C)	150	155

*Temperature where total heat generation saturates

は難しいので、これらについては硬化物の値を用いた。なお、表1の最下欄のT_Lは反応の総発熱量が飽和する温度である。T_Lを用いた過剰発熱の修正方法については報告済み¹⁶⁾であり、ここでは省略する。

図1の流路の流動解析では次の取り扱いを行った。図1の流路断面は矩形であるが、計算の簡素化を図るために、断面積を周囲長で除したm値¹⁷⁾を用い、4mを伝熱等価な直径とする円管に置き換えて計算を行った。このときの直径はφ15mmである。また、用いた成形条件を入力し、流動先端が流路端に達した後は速度を0とし、ゲル化までは温度と粘度計算を行い、ゲル化以降は温度計算を行った。温度は流動先端の断面中央部の値を出力し、発熱速度の項を含んだ場合と含まない場合の計算値と熱電対による実測値との値を比較した。

図1の流路は温度測定用に断面積の非常に大きい形状であり、実際の半導体封止用金型はこれよりも断面積がかなり小さい流路を用いる場合が多い。したがって、ここでは、φ2mmとφ6mmの円管に材料を注入した場合のゲル化による流動停止までの見かけ粘度の変化を、発熱速度の項を考慮した場合と含まない場合について計算し、硬化反応による発熱の粘度に及ぼす影響について調べた。

4. 結果と考察

4.1 金型内温度変化の比較

図2に材料Aで金型温度T_Mが145°Cの場合の温度変化の比較を示す。横軸は流路に充填開始からの時間、縦軸は温度である。図中の太い実線が熱電対による温度の実測値、白丸が硬化反応による発熱速度の項を設けない場合の計算値、黒丸が硬化反応による発熱速度の項を設けた場合の計算値である。この条件では約1sで充填が完了する。熱電対は最初は金型温度に保たれているが、温度の低い材料が流入するため温度が下がり続け、約20s程度で平衡状態となる。それ以降は温度が上昇し、100s程度で金型温度に達するとともにさらに温度上昇を続け、250sでは151°Cになる。一方、計算値は硬化反応による発熱速度を考慮した場合も考慮しない場合も100s程度までは同じように温度が上昇する。熱電対の温度が平衡状態に達した後は実測値よりもわずかに上の温度で上昇している。時間が120s以降になると発熱速度を考慮した場合の計算値は実測値とほとんど同じプロファイルとなっている。一方、発

Fig. 2 Comparison of temperature profiles for material A at T_M=145°C : T_M, mold temperature ; T_i preheat temperature

熱速度を考慮しない場合の計算値は型温が最高値であり、発熱速度の考慮により実測値と非常に近い温度変化の予測ができた。

図3に材料Aで T_M が 180°C の場合の温度変化の比較を示す。熱電対は最初は金型温度に保たれているが、温度の低い材料が流入するため温度が下がり続け、約10s程度で平衡状態となる。それ以降は温度が上昇し、70s程度で金型温度に達するとともにさらに温度上昇を続け、100sで 192°C の最高温度に達し、それ以降は温度は低下する。図2に比べ短い時間に温度上昇が大きくなり、また低下も早いのは、設定温度が高いほど硬化反応による発熱量が大きく、短時間に反応を終了するためである。一方、図3の計算値は硬化反応による発熱速度を考慮した場合も考慮しない場合も70s程度までは同じように温度が上昇する。熱電対の温度が平衡状態に達した後は実測値よりもわずかに上の温度で上昇している。それ以降になると発熱速度を考慮した場合の計算値は実測値とほとんど同じプロファイルとなっている。一方、発熱速度を考慮しない場合の計算値は型温が最高値であり、発熱速度の考慮により実測値と非常に近い温度変化の予測ができた。

図4に材料Bで T_M が 145°C の場合の温度変化の比較を示す。この材料では設定移送速度が遅いため熱電対の温度の下がり始める時刻は図2よりも遅くなっている。全体のプロファイルは図2と類似しており、硬化反応による発熱項を考慮した計算値は実測値と非常に近くなっている。一方、最高温度は 157°C であり、図2よりも 6°C 上昇している。これは表1に示したように材料BがAよりも熱伝導率 λ がかなり小さく、発生した熱が管壁から外へ逃げにくいためと考えられる。

図5に材料Bで T_M が 180°C の場合の温度変化の比較を示す。この材料では設定移送時間が遅いため熱電対の温度の下がり始める時刻は図3よりも遅くなっている。全体のプロファイルは図3と類似している。硬化反応による発熱項を考慮した計算値は実測値よりもわずかに大きい。実際の温度変化をよく表している。一方、最高温度は 192°C であり、図3よりも 12°C 上昇している。これは表1に示したように材料BがAよりも熱伝導率 λ がかなり小さく、発生した熱が管壁から外へ逃げにくいためと考えられる。

以上により、硬化反応による発熱速度を考慮した解析では金型内の温度変化を精度よく予測できることがわかった。

Fig. 3 Comparison of temperature profiles for material A at $T_M=180^{\circ}\text{C}$

4.2 反応率の計算

ここでは、これまでに述べた硬化反応による発熱速度を考慮した解析結果をもとに反応率の変化を計算した。反応率は次式で定義した。

$$\alpha(t) = Q(t)/Q_0 \quad (18)$$

ここで、 α ：反応率、 $Q(t)$ ：時刻 t までの発熱量、 Q_0 ：総発熱量である。各条件において発熱速度と時間の関係を近似積分して $Q(t)$ と Q_0 を求めた。

図6に材料Aで T_M が 145°C の場合の α と時間の関係を示す。図中黒丸が図1の流路の等価円管における流動先端中央部の α であり、図2の黒丸で示した温度変化に対

Fig. 4 Comparison of temperature profiles for material B at $T_M=145^{\circ}\text{C}$

Fig. 5 Comparison of temperature profiles for material B at $T_M=180^{\circ}\text{C}$

Fig. 6 Calculated degree of cure for material A at $T_M=145^{\circ}\text{C}$: α , degree of cure

応している。図6の白丸は流動先端の管壁近傍（等価円管で管壁から半径方向に0.75 mm 入った位置）での α である。50 s 程度までは管中央も管壁もほとんど反応が進まず、それ以降は管壁側の α が管中央よりも大きくなる。これは管壁に近い方が金型からの伝熱により早く温度が上昇し^{5), 6)}、反応が速く進むためである。中央部では硬化反応による発熱の蓄積があるが、結果的に管壁近傍の方が反応の進行は速い。金型温度が低い場合 300 s 程度では α は0.8程度となっている。

図7に材料Aで T_M が180℃の場合の α と時間の関係を示す。20 s 程度までは管中央も管壁近傍もほとんど反応が進まず、それ以降は管壁側の α が管中央よりも大きくなる。これは金型からの伝熱により管壁側の反応が速く進むためである。中央部では硬化反応による発熱の蓄積があるが、管壁近傍の方が反応の進行は速い。金型温度が高いため140 s 程度では α はほぼ1となっている。

図8に材料Bで T_M 180℃の場合の α と時間の関係を示す。全体の傾向は図7と同じであるが、同じ位置、同じ時刻における α の絶対値は図7よりも小さくなる。これは材料Aが速硬化性であるのに対し、材料Bは標準の硬化性のため反応の進行がゆるやかになっていることを示している。

以上により、硬化反応による発熱速度を考慮した解析では金型内の温度変化を精度よく予測でき、反応の進行の状態も見積もれることがわかった。実際の量産型での成形条件では T_M が170~180℃程度、移送時間は15 s 程度、金型を開くまでの時間は150~200 s 程度である。これまでの結果から判断すると、材料を移送中は硬化反応による発熱の影響はあまり受けず、充填を完了してから温度上昇や反応率が増加が顕著になる。したがって、硬化反応による発

Fig. 7 Calculated degree of cure for material A at $T_M = 180^\circ\text{C}$

Fig. 8 Calculated degree of cure for material B at $T_M = 180^\circ\text{C}$

熱速度を考慮した解析は主に最適離型時刻や2次キュアの必要性などを予測するのに有効と考える。

4.3 粘度変化の比較

ここでは、図1の金型よりも細い断面積を有する円管流路で、硬化反応による発熱を伴う場合と伴わない場合での、流動開始からゲル化による流動停止までの粘度変化の計算値の比較を行った。材料はBに固定した。

図9に直径Dが2.0 mm の場合の粘度変化の比較を示す。横軸は時間、縦軸は流路全体の見かけ粘度 η_a ^{5), 6)}である。 T_M は145℃, 165℃, 185℃の3水準とした。 T_i は75℃とした。図中黒丸が硬化反応による発熱速度を考慮した場合、白丸が発熱速度を考慮しない従来手法での計算結果である。 T_M が高いほど η_a は早く下がり、立ち上がりも早くなる。しかし、いずれの T_M においても反応による発熱を伴う場合と伴わない場合で η_a の差は見られなかった。これは各 T_M において、ゲル化時間程度までは粘度に対して反応の発熱の影響は非常に少ないことを示している。

Fig. 9 Comparison of calculated viscosity changes for Material B at $D=\phi 2 \text{ mm}$; η_a , apparent viscosity

Fig. 10 Comparison of calculated viscosity changes for Material B at $D=\phi 6 \text{ mm}$

図 10 に D が 6.0 mm の場合の粘度変化の比較を示す。図 9 に比べ各 T_M の η_a の最低値は高く、ゲル化時間が長くなるが、これは管径が大きくなることにより、金型から内部への伝熱が遅くなったためである。いずれの T_M においても反応による発熱を伴う場合と伴わない場合でと η_a の差は見られなかった。これはやはり、 T_M において、ゲル化時間程度までは粘度に対して反応の発熱の影響は非常に少ないことを示している。

この結果から、ゲル化までの流動予測に関しては、硬化反応による発熱速度の項を無視しても差し支えなく、解析式の簡素化を図れるものと考ええる。

5. 結 言

半導体封止用熱硬化性樹脂の金型内流動解析手法の検討を行い、以下のことを明らかにした。

- (1) エネルギー方程式中に硬化反応による発熱速度の項を取り込み、粘度式、各種保存方程式と組合せ、金型内の流動、硬化挙動を予測する手法を導いた。
- (2) 2 種類の樹脂について成形中の金型内の樹脂温度を実測し、上記手法の検証を行った。樹脂注入後に金型内の樹脂の温度は型温よりも上昇し、上記手法で予測した温度プロファイルは実測値とよく一致することを確認した。
- (3) 反応の進行は金型からの伝熱の影響が大きく、流路の中央よりも金型壁の部分の方が早い。一方、通常の成形での流動時間の範囲では反応率の増加はほとんど認められない。
- (4) 上記解析手法と硬化反応による発熱速度の項を含まない従来手法での見かけ粘度の変化の比較を行った。2 種類の円管流路で 3 種類の金型温度での計算を行い、いずれの条件でもゲル化までの粘度変化には差が認められなかった。
- (5) 樹脂の注入過程での流動解析に対しては硬化反応による発熱項を無視した簡便な解析手法が適用でき、離型時刻の見積もりや 2 次キュアなどの注入完了後のプロセスの適正化のためには発熱を考慮した解析が有効である。

謝 辞

本研究にご協力いただいた Dr. Raimund Schwarz 氏、大泉新一氏、その他ご指導をいただいた多くの方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 日立製作所半導体事業部編：表面実装形 LSI パッケージの実装技術とその信頼性向上，3 (1988) 応用技術出版
- 2) Manzione, L. T.: *Plastic Packaging of Micro-electric Devices*, 1 (1990), Van Nostrand Reinhold
- 3) 佐伯準一：成形加工，**11**，290 (1999)
- 4) 垣内 宏編：新エポキシ樹脂，406 (1985)，昭晃堂
- 5) 佐伯準一，金田愛三：日本機械学会論文集 (B 編) **55**，2626 (1989)
- 6) Saeki, J. and Kaneda, A.: *JSME Int. J., series II*, **33**，486 (1990)
- 7) 佐伯準一，金田愛三：日本機械学会論文集 (B 編)，**56**，2343 (1990)
- 8) 佐伯準一，杉野和宏，安原敏浩，西 邦彦，金田愛三：成形加工，**6**，450 (1994)
- 9) 佐伯準一，吉田 勇，宝蔵寺裕之：成形加工，**12**，67 (2000)
- 10) Hoffmann, K.W. and Kretzschmar, K.: *Thermo-chemica. Acta*, **25**，185 (1989)
- 11) Jozavi, H. and Sancaktar, E.: *J. Adhesion*, **25**，185 (1988)
- 12) Williams, R.J.J., Rojas, A.J. Marciano, J.H. and Ruzzo, M.M.: *Polym. Plast. Tech. Eng.*, **24**，243 (1985)
- 13) KamaI, M.R. and Sourour, S.: *Polym. Eng. Sci.*, **13**，59 (1973)
- 14) McGee, S.H.: *Polym. Eng. Sci.*, **22**，484 (1982)
- 15) 椋田宗明，三谷敏男：成形加工 '96，421 (1996)
- 16) Saeki, J. and Schwarz, R.: PPS Reg. Meeting of Asia /Australia, 6 (Tokyo, 1993-10)
- 17) 例えば 原田：流体工学，88 (1968) 槇書店