半導体封止用エポキシ樹脂の流動特性

佐伯 準 一*

Flow Characteristics of Epoxy Compounds for Encapsulation of Semiconductor Devices

Junichi SAEKI*

The flow characteristics of silica-filled epoxy compounds used for encapsulation of semiconductor devices were examined. For measuring shear viscosity in the absence of rapid chemical reactions that can cause drastic viscosity rises, trial compounds without hardening accelerators were used. A plunger extrusion type of rheometer was designed for this study. By changing the combination of plunger velocity and the dimensions of the circular channel, shear rates ranging from 1 to 10^4 s^{-1} were obtained. The channel length correction of Bagley's method was found to be negligibly small. The molten compounds showed shear thinning behavior over the tested ranges of temperatures and shear rates. Notably, strong shear thinning behavior was observed at very low shear rates. Within the shear rate range from approximately 1 to 20 s^{-1} , values for the power law index ranged from around 0.3 to 0.4. The relationship between temperature and pseudoplastic viscosity κ was found to be expressed by an Andrade's equation.

Key Words : Epoxy compounds/Viscosity/Shear rate/Power law fluid

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^{1),2)}。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。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³⁾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バック

ージの生産が行われている⁴⁾。

金型内での樹脂の流動挙動は製品品質を左右する重要な因子^{4)~10)}であり、プロセスを合理的に設計するには、樹脂の基本的な流動特性を把握することがまず重要である。Fig. 1 に量産金型内での流路壁における見掛けのせん断速度 $\dot{\gamma}_w'$ の領域を示す。ポット内に投入された樹脂は成形機に取り付けられたプランジャーで押され、ランナー、ゲートを通してキャビティへ流入する。キャビティ内にはチップ、リードフレーム、金線などのインサート部品がセットされ、これを樹脂で封止する。 $\dot{\gamma}_w'$ はキャビティ部でもっとも小さく、ランナー、ゲートの順に大きくなる。本報では実機金型内で生じる $\dot{\gamma}_w'$ の領域での粘度のせん断速度依存性を調べることを目的とした。

本報で対象とする樹脂は、パッケージの信頼性と生産性の確保のために 10 種類程度の素材が配合されて

* (株)日立製作所 生産技術研究所 民生実装センタ
横浜市戸塚区吉田町 292 (〒 244)
Production Engineering Research Laboratory,
Hitachi, Ltd.
292 Yoshida-cho, Totsuka-ku, Yokohama 244 Japan
1993. 2. 26 受理

Fig. 1 Ranges of apparent shear rate at the channel wall ($\dot{\gamma}_w'$) in molds used for mass production

いる^{3),4)}。もっとも含有量の多いのはフィラーであり、角状または球状の微細石英粉を用いる場合が多い。素材の中で粘度のせん断速度依存性を調べるときに障害となるのは硬化剤と硬化促進剤である。筆者らは先にこれらの素材を含まない系の試作材料を用い、硬化反応による粘度上昇のない状態で基本動特性を調べた⁵⁾。この結果、粘度のせん断速度依存性は小さいことを明らかにした。しかし、キャビティ部のような低いせん断速度領域の検討は行っていないこと、当時と比べて素材の種類、配合比などがかなり変わってきていることから、本報では最近の樹脂について詳細な検討を加

(b) Plane view of the lower mold

Fig. 2 Schematic of the mold and pressure transducer (unit: mm)

えることにした。なお、短時間での急激な粘度上昇は硬化促進剤の作用が支配的であり、しかも含有量が非常に少ない⁴⁾ため、これのみを除くことにより、組成を大幅に変えることなしに目的の検討が可能となる。したがって、本報ではこのような試作材料を用いることにした。

2. 実験方法

2.1 材料

用いた試料は市販の半導体封止用樹脂である MP-150 SGC (日東電工製) と CEL-7700 (日立化成工業製) とからそれぞれ硬化促進剤のみを除いた 2 種類の試作材料とした。本報では前者を材料 A、後者を材料 B と呼称する。

2.2 測定装置

自作した金型ならびに圧力変換器 (ダイニスコ製 PT-435 A) の概略を Fig. 2 に示す。ポットに投入された材料は広い断面積を有するランナーを充てんした後、円管内を流動し金型の外に排出される。ランナー壁に取り付けた圧力検出器により、材料が円管内を流動中の圧力損失を測定した。円管流路を構成する金型の部分は着脱容易な構造とし、 L/R の組み合わせを変えた。この仕様を Fig. 2 に併せて示す。

Fig. 3 に装置の概略を示す。トランスファー成形機 (藤和精機製 TEP 75-30) のプランジャーを降下させ、材料を金型内に移送する。プランジャー位置は変位検出器 (オリエンテック製 DB-100) で検出し、金型内に取り付けられた圧力検出器の信号とともに増幅器を経てレコーダーに記録した。

2.3 実験条件

実験では 0.1 kg の材料を室温下で 135 MPa の圧力を用いてタブレット化しておき、測定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。そしてこれをポット内に約 300 s 放置し、材料の内部温度が金型温度に等しくなったことを熱電対で確認してからプランジャーを降下させた。プランジャー

Dimensions of capillary

No.	L (mm)	R (mm)	L/R (—)
①	10	1	10
②	30	3	10
③	100	4	25
④	100	2	50
⑤	150	3	50

L : Length, R : Radius

の設定速度は 0.02~10 mm/s の範囲とし、広範囲のせん断速度が得られようにした。金型温度は 145, 165, 175, 185°C の 4 水準とし、それぞれ $\pm 5^\circ\text{C}$ の範囲に保持した。

3. 解析方法

ここでは広い流路から細い円管を通して溶融材料を押し出すときの理論^{5),11),12)}を述べる。いま、材料が非圧縮性で、粘度が圧力に依存しないとして、等温定常層流を仮定すれば、管壁における見掛けのせん断応力 τ_w' は次式で与えられる。

$$\tau_w' = \frac{PR}{2L} \quad (1)$$

ここで、 P は円管押出により生じる総圧力損失、 R 、 L はそれぞれ円管の半径と長さである。実際には、材料が円管に流入する際に速度分布に急激な変動が起き、 P の一部は材料の粘弾性的抵抗に逆らって円管内で実現する速度分布をとるための加速段階の仕事に消費される。これは、円管の実長が長くなったために起きたのと同じ効果とみなすことができ、Newton 流体の場合、補正後の管長 L_e は次式で与えられる。

$$L_e = L + n_c R \quad (2)$$

ここで、 n_c は Couette の補正係数であり、0.77 という値が得られている¹³⁾。したがって Newton 流体では管壁における有効せん断応力 τ_w は次式のようにになる。

$$\tau_w = \frac{PR}{2(L + 0.77R)} \quad (3)$$

いっぽう、高分子溶融体では弾性的性質をもち、Newton 流体に比べ、円管流入部での付加的な仕事は非常に大きくなる。この場合 τ_w は次式で示される。

$$\tau_w = \frac{PR}{2(L + \nu R)} \quad (4)$$

ここで、 ν は管長補正係数であり、 n_c とは異なり、せん断速度の増加とともに大きくなる性質をもつ。

円管内の流速は管軸方向では変化せず、管壁でのすべりが無いとすれば、Newton 流体と仮定したときの管壁における見掛けのせん断速度 $\dot{\gamma}_w'$ は Q を流量として次式で与えられる。

$$\dot{\gamma}_w' = \frac{4Q}{\pi R^3} \quad (5)$$

また、管壁における正しいせん断速度 $\dot{\gamma}_w$ は次式で与えられる。

$$\dot{\gamma}_w = \left(\frac{3n+1}{4n} \right) \left(\frac{4Q}{\pi R^3} \right) \quad (6)$$

ここで、 n は構造粘度指数ともいわれ、Newton 流体からのずれを示し、次式で与えられる。

Fig. 3 Schematic of the apparatus

$$n = \frac{d \log(\tau_w)}{d \log(\dot{\gamma}_w')} \quad (7)$$

したがって、 $\log(\tau_w)$ 対 $\log(\dot{\gamma}_w')$ のグラフの勾配から n が求まる。

本報では見掛け粘度 η_a を次式で求めた。

$$\eta_a = \frac{\tau_w}{\dot{\gamma}_w'} \quad (8)$$

また、擬塑性粘度 κ を次式で求めた。

$$\kappa = \frac{\eta_a}{(\dot{\gamma}_w')^{n-1}} \quad (9)$$

4. 結果と考察

4.1 材料の流動状態

Fig. 4 に測定データ例を示す。プランジャー変位の時間に対する勾配は一定であり、定常流動が得られている。この勾配とプランジャー断面積から Q を算出した。いっぽう、圧力は流動先端位置が円管内にあるときは時間と共に増加し、円管の出口に達した時刻以降、すなわち一定の流動区間では一定値を示している。これは、測定時間内では硬化反応による粘度上昇はほとんど起きておらず、材料は熱的にもほぼ定常状態にあることを示している。ここでは図中の③の状態の圧力検出器の指示値を P とし、このときの Q ならびに円管諸元から各条件ごとの τ_w' 、 $\dot{\gamma}_w'$ を求めた。

なお、押出実験において、慣性力が粘性力に比べて支配的になると、円管入口で速度ベクトルが管軸方向に揃わない縮流という現象が起き、3 で述べた解析上の仮定が成立しなくなるといわれている^{5),11)}。予備検討により本実験での Reynolds 数は縮流を考慮しなくてよい臨界 Reynolds 数^{5),11)}に比べて約 2 桁小さいことを確認しており、ここでは 3 の解析手順をそのまま適用した。

Fig. 4 Typical flow profiles

4.2 管長補正の検討

まず、測定で得られた見掛けの特性値を用い Bagley の方法^{5),11)}により管見補正の検討を行った。Fig. 5 の (a) と (b) にそれぞれ材料 A と B の $P-L/R$ 特性を示す。いずれの $\dot{\gamma}_w'$ でも P 軸切片の値は非常に小さく、管内で生じる一様な粘性抵抗以外の付加的な圧力損失はほとんど生じていない。このことは材料の弾性的性質は非常に小さいことを示している。この結果から管長補正を行う必要がないと判断し、 τ_w' をそのまま τ_w とみなして解析を進めた。

4.3 流動特性値

a. 構造粘度指数

Fig. 6 に材料 A での $\tau_w-\dot{\gamma}_w'$ 特性を示す。各温度

において、両対数座標上で $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} 程度までは勾配の小さい直線関係が、それより大きい $\dot{\gamma}_w'$ では勾配の大きい直線関係が得られた。これは、用いた材料は各温度毎に $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} 付近を境にして異なる構造粘度指数をもつ、べき乗法則流体とみなせることを示している。

Fig. 7 に材料 B での $\tau_w-\dot{\gamma}_w'$ 特性を示す。傾向は材料 A の場合と同じであるが、勾配の変わる $\dot{\gamma}_w'$ の値は温度毎に異なり、 $6\sim 20\text{ s}^{-1}$ 程度となっている。 $\dot{\gamma}_w'$ の大きい領域で 165°C のデータの勾配が他の温度のものよりも小さくなっているが、今後、別ロット品での検討や、測定温度を増やすことなどにより、原因を明確にしていける予定である。

Fig. 5 Bagley's plots for material A at 145°C and for material B at 165°C

Fig. 6 Effective shear stress (τ_w) vs. apparent Newtonian shear rate at the capillary wall ($\dot{\gamma}_w'$) for material A at 145°C, 165°C and 175°C

Fig. 7 τ_w vs. $\dot{\gamma}_w'$ for material B at 145°C, 165°C and 185°C

Figs. 6, 7 の実線の勾配から得られた n の値を Table 1 にまとめた。いずれの材料も各温度、 $\dot{\gamma}_w'$ の領域で擬塑性 ($n < 1$) のべき乗法則流体となっている。Fig. 6 (材料 A) での勾配の小さい領域の n は 0.31 ~ 0.4, 勾配の大きい領域の n は 0.72 ~ 0.76 程度である。いっぽう、Fig. 7 (材料 B) での勾配の小さい領域の n は 0.31 ~ 0.36, 勾配の大きい領域の n は 0.84 ~ 0.91 程度である。硬化剤、硬化促進剤を含まない試作材料を用いた既報⁵⁾では $\dot{\gamma}_w'$ が $30 \sim 10^4 \text{ s}^{-1}$ の範囲で Newton 流体 ($n=1$) に近い擬塑性流体の挙動を示すことを明らかにしており、本報でもその範囲の $\dot{\gamma}_w'$ では同様の結果が得られている。いっぽう、 $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} 程度より小さくなると非 Newton 性が非常に強くなる傾向は本実験で初めて確認できたものである。したがって Fig. 1 に示したように $\dot{\gamma}_w'$ が $2 \sim 10 \text{ s}^{-1}$ 程度で樹脂が流動するキャピティ内の解析では、このような現象を考慮した構成方程式を導入すること

Table 1 Values of power law index (n)

Material	Temp. (°C)	n (—)	$\dot{\gamma}_w'$ (s^{-1})
A	145	0.40	2- 20
A	145	0.76	20-9000
A	165	0.39	2- 20
A	165	0.72	20-2000
A	175	0.31	2- 20
A	175	0.73	20-9500
B	145	0.33	1.5- 6
B	145	0.90	6- 400
B	165	0.36	2- 10
B	165	0.84	10-1300
B	185	0.31	2.5- 20
B	185	0.91	20- 400

Fig. 8 Apparent viscosity (η_a) vs. $\dot{\gamma}_w'$ for material A at 145°C, 165°C and 175°C

が重要と考える。

b. 粘度のせん断速度と温度依存性

Fig. 8 に材料 A での $\eta_a - \dot{\gamma}_w'$ 特性を示す。これは Fig. 6 のデータと (8) 式を用いて求めたものである。 $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} までは非 Newton 性が強いいため、急激に η_a が低下し、それより $\dot{\gamma}_w'$ が大きくなると η_a の低下はゆるやかになる。熱可塑性樹脂の熔融体ではせん断速度が小さくなるにしたがって粘度のせん断速度依存性が小さくなる場合が多い¹⁴⁾。Fig. 8 はそれとは逆の傾向を示しており、用いた材料特有の現象である。Fig. 9 に材料 B での $\eta_a - \dot{\gamma}_w'$ 特性を示す。傾向は材料 A の場合と同様であるが、勾配が変わる $\dot{\gamma}_w'$ の値は温度により異なっている。

Figs. 8, 9 から明らかなように、どちらの材料も各温度毎に η_a と $\dot{\gamma}_w'$ の関係は特定の $\dot{\gamma}_w'$ の位置で折れ曲がった 2 本の直線で示される。したがって、(9) 式で定義した擬塑性粘度 κ は各温度において各直線に対応した 2 つの値をもつ。Fig. 8, Table 1 なら

Fig. 9 η_a vs. $\dot{\gamma}_w'$ for material B at 145°C, 165°C and 185°C

Fig. 10 Pseudoplastic viscosity (k) vs. temperature for Material A

Fig. 11 k vs. temperature for material B

びに (9) 式を用いて得られた材料Aの κ と温度の関係を図 10 に示す。 $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} より小さい領域と大きい領域でのそれぞれの $\log \kappa$ と $1/T$ の関係はほぼ直線であり、次の Andrade の式¹⁵⁾の形が当てはまる。

$$\kappa = a \exp(E_a/RT) \quad (10)$$

Table 2 Parameters* in Andrade's equation for materials A and B

Material	a (Pa·s/s ¹⁻ⁿ)	E_a (J/mol)	$\dot{\gamma}_w'$ (s ⁻¹)
A	8.78×10^{-3}	41600	≤ 20
A	5.66×10^{-4}	47250	≥ 20
B	5.2	16260	≤ 6
B	3.18×10^{-4}	47130	≥ 20

* Constants in eq. (10)

ここで、 a は任意の基準とする温度での κ であり、 E_a は κ に関する活性化エネルギー、 R はガス定数、 T は絶対温度である。同様に求めた材料Bの κ と温度の関係を Fig. 11 に示す。傾向は材料Aと同様である。各材料の a と E_a の値を Table 2 にまとめた。なお、Figs. 10~11 に示した実線は (10) 式に Table 2 のパラメーターの値を代入して求めた計算値である。

c. 流動特性の考察

Figs. 8, 9 のような傾向を示したのは次のような現象が起きているためと推定される。半導体封止用樹脂は複合材料であり、常に固体の状態である石英フィラー粉とそれを取りまくマトリックスの部分に大別される。フィラーの表面にはマトリックスがある強度で接合しており、せん断速度の増加とともにこの層が剥がれていく。このため粘度が急激に低下する。さらにせん断速度が大きくなるとフィラー表面に接合したマトリックス層はなくなる、あるいは実験範囲のせん断応力では剥がれない強固な層のみが残り、この時点で擬塑性の性質は小さくなる。

今後、フィラーなし、あるいはフィラー含有量を大幅に変えた実験などを行えば、このようなメカニズムを明確にできるものと考えられる。

6. 結 言

市販の半導体封止用樹脂から硬化促進剤のみを除いた2種類の試作材料の流動特性を調べ、以下のことを明らかにした。

- ① 熔融材料は広いせん断速度領域において、擬塑性流動をする。
- ② せん断速度が非常に小さい領域で擬塑性の挙動が強くなり、 $\dot{\gamma}_w'$ が 20 s^{-1} 程度の値を境にして構造粘度指数 n の値が大きく異なる、べき乗法則流体の特性を示す。
- ③ 擬塑性粘度と温度の関係は Andrade の式の形で表すことができ、②で述べた特性のため各せん断速度領域に対応したパラメーターの値をもつ。

参 考 文 献

- 1) 日立製作所導体事業部編：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, T. L.: *Plastic Packaging of Micro-electronic Devices*, 1 (1990), Van Nostrand Reinhold
- 3) 垣内 宏編：新エポキシ樹脂，406 (1985)，昭晃堂
- 4) 佐伯準一：成形加工，2，392 (1990)
- 5) 佐伯準一，金田愛三，篠田忠夫：高分子論文集，43，873 (1986)
- 6) 佐伯準一，金田愛三，篠田忠夫：高分子論文集，45，97 (1988)
- 7) 佐伯準一，金田愛三：高分子論文集，45，691 (1988)
- 8) 佐伯準一，金田愛三：日本機械学会論文集(B編)，55，2626 (1989)
- 9) 佐伯準一，金田愛三：日本機械学会論文集(B編)，56，2343 (1990)
- 10) Saeki, J. and Kaneda, A.: *JSME Int. J.*, Series II, 33, 486 (1990)
- 11) Bagley, B. E.: *J. Appl. Phys.*, 28, 624 (1957)
- 12) McKelvey, M. J.: *Polymer Processing*, 65 (1960), John Wiley & Sons, Inc.
- 13) 岩波繁蔵：日本機械学会論文集，18，52 (1952)
- 14) 大柳 康，久保田和久：成形加工，2，155(1990)
- 15) 化学大辞典 編集委員会編：化学大辞典 1，514 (1963)，共立出版

■ 文 献 抄 録 ④

Polymer Composites

・ Vol.14, No.1

Lassas, A.-C., Fagerholm, L. E., Stenlund, B. G. and Nasman, J. H.: Modification of E-glass Fiber Surfaces with Polyacrylic Acid Polymers from an Aqueous Solution (p.1)

「ポリアクリル酸水溶液による E ガラス表面処理」

Storey, R. F., Wiggins, J. S., Kauritz, K. A. and Puckett, A. D.: Bioabsorbable Composites. I: Fundamental Design Considerations Using Free Radically Crosslinkable Matrices (p.7)

「生分解複合材料 I : フリーラジカル架橋型マトリックスによる基礎設計の考察」

Storey, R. F., Wiggins, J. S., Mauritz, K. A. and Puckett, A. D.: Bioabsorbable Composites. II: Nontoxic, L-lysine-based Poly (ester-urethane) Matrix Composites (p.17)

「生分解複合材料 II : 無毒性リシン型 L ポリエステルウレタンマトリックス複合材料」

Bigg, D. M., Hiscock, D. F., Preston, J. R. and Bradbury, E. J.: The Properties of Wet-formed Thermoplastic Sheet Composites (p.26)

「湿式成形熱可塑性シート複合材料の特性」

Ericson, M. L. and Berglund, L. A.: The Effect of Microstructure on the Elastic Modulus and Strength of Preformed and Commercial GMTs (p.35)

「予備成形および市販 GMT(熱可塑性ガラスマット複合材料)の弾性率と強度に及ぼす微細構造の影響」

Brauman, S. K. and Chow, A. W.: Processing of Poly (ether sulfone)/Graphite Fiber Composites: Thermooxidation, Rheology and Consolidation (p.42)

「ポリエーテルサルホン/炭素繊維複合材料の成形加工：熱酸化，レオロジー，固化」

Xu, J., Kim, J., Ho, T. and Lee, L. J.: Compression Molding of Sheet Molding Compounds in Plate-rib-type Geometry (p.51)

「平板リブ付き SMC の圧縮成形」

Sidhu, A. S., Varin, R. A. and Wronski, Z.: Development of Thin Film Technique for an Amorphous Metallic Ribbon/Thermoplastic Matrix Composite System (p.59)

「熱可塑性樹脂をマトリックスとするアモルファス金属リボン系複合材料に対する薄膜技術の適用」

Sidhu, A. S. and Varin, R. A.: Effects of PVA Concentration and Ribbon Immersion Time on the Interfacial Shear Strength of Amorphous Metallic Ribbon/Polypropylene Composites. (p.64)

「アモルファス金属リボン/ポリプロピレン複合材料の界面せん断強度に及ぼす PVA 濃度とリボン浸漬時間の影響」

Lin, R. J., Lee, L. J. and Liou, M. J.: Mold Filling and Curing Analysis in Liquid Composite Molding (p.71)

「複合材料の液体成形における充填および硬化の解析」