

明 細 書

発明の名称：

球状アルミナ粒子、その製造方法、および、それを含有する樹脂複合組成物

技術分野

[0001] 本発明は、球状アルミナ粒子、特に金属 A I 濃度が低減された球状アルミナ粒子、その製造方法、およびそれを含有する樹脂複合組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、携帯電話などの電子機器の高機能化、高速化によって、電子機器内部の電子部品から発せられる熱量が増大している。電子機器の正常な動作のために、発せられる熱を効率よく外部へ放散させることが重要な課題となっている。熱放散のために多用されているのが放熱シートや放熱接着剤と呼ばれるものである。これらは発熱体と放熱フィンの間に貼り付け或いは塗布し圧着することで発熱体と放熱フィンとの隙間をなくし、効率よく熱を発散することができる。また電子部品の内部にある、半導体自体も同様の高機能化、高速化による発熱が著しく、半導体を保護する封止材についても熱放散性を付与することが求められている。

[0003] 一般に放熱シートや放熱接着剤、半導体封止材は熱伝導性無機フィラーと樹脂とで構成されている。熱伝導性無機フィラーは安価な水酸化アルミニウムや酸化アルミニウム(以下、アルミナ)、さらに高熱伝導を期待した炭化ケイ素や窒化ホウ素、窒化アルミニウムといった素材が使われている。特にアルミナは安価であり化学的に安定であることから、熱伝導性無機フィラーとしてよく用いられる。

[0004] アルミナ等の熱伝導性無機フィラーは、小粒径で球状であることも求められている。これは、I C や C P U などの半導体パッケージの小型化、薄型化が進んでおり、これに伴いボンディングワイヤの細径化、狭ピッチ化が進んでいるためである。すなわち、半導体パッケージに用いられるアルミナ等の

熱伝導性無機フィラーも、半導体内部の狭小部への充填性を高めるため、小粒径で球状あることが求められている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特許第6 7 7 1 0 7 8号公報
特許文献2：特許第5 0 3 6 9 8 4号公報
特許文献3：特開2 0 0 8－1 2 0 6 7 3号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] 小粒径、典型的には粒径2. 0 μm 以下の球状アルミナ粒子を製造するためのいくつかの方法が公知である。
- [0007] 球状アルミナの一般的製法として酸化アルミニウムを原料とする火炎溶融法が挙げられる。原料の酸化アルミニウムを火炎中に溶射して、酸化アルミニウムの表面を加熱溶融し、球状化するものであるが、溶融した粒子どうしが固着し、粒径の大きな凝集粒子となることがあり、所望する小粒径の粒子が得られないことがある。
- [0008] 特許文献1は、原料の酸化アルミニウムに、シリカ粒子を加えた上で、溶射することにより、酸化アルミニウムの凝集を抑制する手法を開示している。ただし、この手法では、最終的に得られる、球状アルミナ粒子中にシリカ粒子が混入することが避けられない。
- [0009] 特許文献2は、溶射バーナの先端に衝突板を配置し、当該衝突板に原料の酸化アルミニウムを衝突させた上で、溶射工程を行うことにより、酸化アルミニウムの凝集を抑制する手法を開示している。
- [0010] 特許文献3は、原料の微粒低ソーダ酸化アルミニウムに、原料粉体を解砕・分散機能を有する装置を経由させて、キャリアガス中に分散させた直後に、連続的に火炎中に導入し、金属不純物が極めて少ない平均粒子径1 μm 未満の球状アルミナが得られることを開示している。ここで得られた球状アル

ミナは金属AⅠ濃度が $<0.010\%$ であるとされている。ただしこの手法では、キャリアガス中のわずかな水分によって解砕分散した粒子が再凝集し、小粒径の球状アルミナを得られない、また、アルミナ粒子が硬い α アルミナを多く含むため、解砕・分散機能を有する装置を経由した際に装置を摩耗させるという懸念がある。また、得られた球状アルミナは比表面積、円形度等の基本的な性状が明らかではない。

[0011] 火炎溶融法以外の方法として、爆燃法（VMC法）も知られている。具体的には、金属アルミニウム粉末を酸素の気流中に分散させ、着火することで酸化させ、その反応熱で金属及び酸化物を蒸気または液体にし、冷却することで、微細な、例えば粒径 $2.0\mu\text{m}$ 以下のアルミナ粒子を得ることができるといわれている。ただし、爆発的な反応を利用するため、粉塵爆発の危険があり、また、金属アルミニウムの一部が反応せず、すなわちアルミナに変化せず、金属アルミニウムが残存する可能性もある。特に、残存する金属アルミニウムは、半導体パッケージ等に含まれる場合、半導体の短絡等の重大な事故につながるおそれがある。なお、特許文献1、2のいずれについても、残存する金属アルミニウムについての記載や示唆はない。

[0012] 本発明は、上記の状況に鑑みてなされたものであり、その目的は、金属AⅠ濃度が低く、 α 化率が低く、かつ、小粒径の球状アルミナ粒子、その製造方法、およびそれを含む樹脂複合組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明者らは、火炎溶融法において、所定の粒径を有するアルミナ、ペーミイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含む原料を、溶射することにより、原料粒子どうしの凝集を抑制しつつ、金属アルミニウム濃度が低く、小粒径の球状アルミナ粒子が得られることを見出した。

[0014] 上記の知見に基づく、本発明の要旨は以下のとおりである。

[0015] [1] 金属AⅠ濃度が 1000ppm 以下であり、平均粒径が $0.3\sim 2.0\mu\text{m}$ であり、比表面積が $2.5\sim 5.0\text{m}^2/\text{g}$ であり、円形度が 0.80 以上であり、 α 化率が 5.0% 以下である、球状アルミナ粒子。

〔２〕 α 化率が１．０％以下、である、〔１〕に記載の球状アルミナ粒子。

〔３〕 アルミナ、ペーマイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含み、粒径が０．２～２．０ μm である原料を調製する原料調製工程と、

前記原料を珪素原子含有表面処理剤により表面処理する表面処理工程と、
前記表面処理された原料を火炎中に投入して熔融させた後、急冷すること
で球状化する球状化工程と、

を有する、球状アルミナ粒子の製造方法。

〔４〕 〔１〕または〔２〕に記載の球状アルミナ粒子を含有していること
を特徴とする樹脂複合組成物。

〔５〕 非晶質球状シリカ粒子、結晶質球状シリカ粒子、チタニア粒子、マグネシア粒子、窒化アルミニウム粒子、窒化ホウ素粒子、チタン酸バリウム粒子、チタン酸カルシウム粒子、カーボンファイバーから選ばれる、少なくとも１種類以上の無機フィラーをさらに含有する、〔４〕に記載の樹脂複合組成物。

発明の効果

〔００１６〕 本発明により、金属アルミニウム濃度が低く、 α 化率が非常に低く、比表面積が制御された、小粒径の球状アルミナ粒子、およびそれを含有する樹脂複合組成物が得られる。それらは、小粒径であるために、小型化・薄型化された半導体パッケージ等にも利用でき、また、金属アルミニウム濃度が低いので、短絡等の重大な事故の発生が抑制される。また、 α 化率が非常に低いのでアルミナ粒子表面の形状が非常に平滑なため、流動性が高まる効果や設備摩耗性が低くなるという利点がある。さらに、本発明の一態様である製造方法により、当該球状アルミナ粒子を容易に製造することができる。

発明を実施するための形態

〔００１７〕 〔球状アルミナ粒子〕
(金属Ａの濃度)

本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、金属AⅠ濃度が1000ppm以下である。アルミナは、金属AⅠの酸化物であり、金属AⅠまたはそれを含むアルミニウム化合物（水酸化アルミニウム等）を酸化、脱水することにより製造することができる。アルミナの製造過程で、原料中に含まれる金属AⅠが十分に酸化されずに、製品のアルミナ中に金属AⅠとして残留することがある。特に、爆燃法（VMC法）は、爆発的な反応を利用して金属AⅠを酸化するため、均等に酸化せず、すなわちアルミナに変化せず、金属アルミニウムが残存する可能性が高い。金属AⅠは、アルミナ（酸化アルミニウム）に比べて、電気伝導性が遙かに高い。高い絶縁性が求められる用途、例えば半導体パッケージ等において、金属AⅠが含まれると、予期せぬ短絡等の重大な事故が生じることがある。その観点から、金属AⅠ濃度は低いほど好ましい。本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、金属AⅠ濃度が1000ppm以下であり、短絡等の重大な事故の発生が抑制される。より好ましくは、金属AⅠ濃度は、800ppm以下または700ppm以下であってもよい。金属AⅠ濃度の下限値は特に限定されるものではなく、0ppmであってもよいが、製造管理の負担が大きく困難な場合があるので、数ppm、具体的には1ppm以上としてもよく、5ppm以上としてもよい。実際の用途や目標とする絶縁性の許容範囲に応じて、金属AⅠ濃度の下限を調整してもよく、例えば、10ppm以上、20ppm以上、または30ppm以上としてもよい。

[0018] 金属AⅠ濃度の分析は、以下により行われる。球状アルミナ粒子試料を約1g測りとり、ビーカーに入れる。ビーカーに1mol/Lの塩酸を60ml加え、室温中で5時間攪拌する。攪拌後の試料溶液の上澄みを取り100mlに定容し、溶液をICP-MSにてAⅠ分を分析する。

[0019] （粒径）

本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、平均粒径が0.3～2.0μmである。粒径が0.3μm未満であると、粒子の凝集性が大きくなり、フィラーとして用いたときなどに樹脂組成物の流動性が著しく低下する

ため、好ましくない。粒径が $2.0\mu\text{m}$ を超えると、小型化・薄型化の進んだ半導体パッケージ等において、実装基板とチップとの狭小部に粒子が引っかかってしまい、液状封止材の流動性が悪くなって成型性が低下することがある。

[0020] ここで、平均粒径とは、平均粒子径(D50)を指し、レーザー回折・散乱式粒度分布測定法により測定した、体積基準の粒度分布において、累積体積が50%のメジアン径D50を意味する。なお、レーザー回折・散乱式粒度分布測定法は、球状アルミナ粒子を分散させた分散液にレーザー光を照射し、分散液から発せられる回折・散乱光の強度分布パターンから粒度分布を求める方法である。本発明では、レーザー回折・散乱式粒度分布測定装置「Mastersizer3000」(Malvern社製)を用いる。なお、球状アルミナ粒子の原料についても、同様にその平均粒子径を求めることができる。

[0021] (α 化率)

ここで、 α 化率とは、結晶質相の内の α -アルミナ結晶の割合を指す。本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、 α 化率が5.0%以下である。アルミナは結晶質となることが知られており、典型的な結晶質の形態として α -アルミナ、 θ -アルミナ、 δ -アルミナが知られている。本発明の一実施形態である、球状アルミナ粒子は、詳細は後述するが、原料を火炎中に投入して溶融させた後、急冷する溶射法に基づいて、製造することができる。その場合、得られるアルミナは非晶質の割合を多くすることができ、容易に、 α 化率が5.0%以下の球状アルミナ粒子を得ることができる。この範囲に制御することでアルミナ粒子表面が平滑になり、樹脂と混合した際の流動性を高く保つ効果や硬い α アルミナ粒子量が少ないため、設備摩耗性が低いことに優れる。一方 α 化率が低いとアルミナ粒子に含まれる α アルミナの量が少なくなりすぎるために、粒子の熱伝導率が低下し、樹脂組成物の熱伝導率も低下する恐れがある。 α 化率の下限は、特に制限されるものではなく、0.0%であってもよいが、製造管理の負担の観点及び樹脂組成物の熱

伝導率特性の観点から、0.1%であってもよく、0.2%であってもよい。また、 α 化率の上限は3.0%であってもよく、1.5%であってもよく、1.0%であってもよく、0.9%であってもよく、0.8%であってもよい。

[0022] アルミナ粒子粉末の α 化率は、粉末X線回折装置を用いて測定する。得られた回折ピークの積分面積を求め、その合計に対して α アルミナ由来の回折ピーク面積の割合をリートベルト法によって解析する。具体的にはB r u k e r社製のD 2 P H A S E Rを用いてX線回折パターンを 2θ が 10° から 90° の範囲で取得する。取得したパターンをB r u k e r社製のD I F F R A C . T O P A Sを用いてリートベルト法にて α 化率を算出する。算出の際には α アルミナ、 δ アルミナ、 θ アルミナの3種類の結晶相のみが存在すると仮定して解析し、 α アルミナの含有率を算出する。

[0023] (比表面積)

本発明の球状アルミナ粒子は、B E T法により測定された比表面積が $2.5\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $5.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。

[0024] 球状粒子の比表面積が $2.5\text{ m}^2/\text{g}$ 未満であると、粒子が最密充填構造を形成しにくくなるために、当該粒子を含む液状封止材の流動性が低下することがある。一方、球状粒子の比表面積が $5.0\text{ m}^2/\text{g}$ 超であると、粒子間の凝集傾向が増して同様に液状封止材の流動性が低下することがある。好ましい下限は $3.0\text{ m}^2/\text{g}$ である。好ましい上限は $4.0\text{ m}^2/\text{g}$ である。

[0025] 球状粒子の比表面積は、B E T法により測定することもでき、典型的には、以下の手順で比表面積を測定する。

約5 gの試料を測り採り、 250°C で5分真空乾燥した。ついで、自動比表面積測定装置（マウンテック社製、M a c s o r b）に試料をセットし、純窒素及び窒素－ヘリウム混合ガス（混合比率窒素30%、H e 70%）を用いて77 Kの測定温度で相対圧 P/P_0 が0.291の値の窒素ガス吸着量を測定し、1点法にてB E T比表面積を算出する。

[0026] (円形度)

本発明の一実施態様では、球状アルミナ粒子は、円形度が0.80以上であってよい。

球状粒子の円形度が高いほど、当該アルミナ粒子を含む樹脂複合組成物の粘度を低下させ、成形性も向上させることができる。円形度は、0.85以上であってもよく、0.90以上であってもよく、0.93以上であってもよい。円形度の上限は理論的には1.0であるが、製造管理の観点から0.98以下、または0.95以下としてもよい。

[0027] 円形度の測定は電子顕微鏡や光学顕微鏡と画像解析装置を用いて測定することができる。例えばシスメックス社製FPIA等である。これら装置を用いて粒子の円形度（相当円の周囲長／粒子の投映像の周囲長）を測定する。100個以上の粒子について円形度を測定し、その平均値をその粉末の円形度とする。

[0028] （換算粉体抵抗率）

本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、換算粉体抵抗率が $3.0 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上であってもよい。アルミナ粒子は、高い絶縁性が求められる用途、例えば半導体パッケージ等に用いられることがあり、換算粉体抵抗率が高いほど好ましい。その点で、球状アルミナ粒子の換算粉体抵抗率は、 $3.1 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $3.2 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $4.0 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $5.0 \times 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上であってもよい。上限は特に限定されないが、 $1.0 \times 10^{11} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下、 $1.0 \times 10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下であってもよい。

[0029] アルミナ粒子粉末の換算粉体抵抗率（以下、単に「換算粉体抵抗率」ともいう。）は、粉体抵抗率と粒子の Na_2O の含有量を掛け合わせることで求める。つまり、（換算粉体抵抗率）＝（アルミナ粒子粉末の粉体抵抗率）×（球状アルミナ粒子の Na_2O 含有量）の式によって算出される。アルミナ粒子粉末の粉体抵抗率は、粉体抵抗率測定システムMCP-PD51を用いて測定する。測定の前処理として大気中で200℃の条件下で5時間加熱乾燥する。

乾燥した粉末を粉体抵抗率測定プローブユニットへ導入し、付属の油圧ポンプを用いて試料を徐々に加圧する。荷重が20kNに達したところで、高抵抗率計にて測定を行う。

[0030] (Na₂O含有量)

本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、Na₂O含有量が1000ppm以下であってもよい。球状アルミナ粒子にNa₂Oが含まれる場合、当該アルミナ粒子を含有する樹脂複合組成物においてNa₂Oが不純物として作用し、所望する性状が得られないおそれがある。その点で、Na₂O含有量は低いほど好ましく、Na₂O含有量の上限值は750ppm以下または500ppm以下であってもよい。Na₂O含有量の下限值は特に限定されるものではなく、0ppmであってもよいが、製造管理の負担が大きく困難な場合があるので、数ppm、具体的には1ppm以上としてもよく、5ppm以上としてもよい。実際の用途や目標とする性状に応じて、Na₂O含有量の下限を調整してもよく、例えば、10ppm以上、20ppm以上、または30ppm以上としてもよい。

[0031] 球状アルミナ粒子のNa₂Oの含有量は原子吸光度計を用いて測定する。試料0.5gを加圧容器に入れ、硫酸(1+3)を10ml加え蓋をした後、加熱乾燥炉にて230℃の温度で16時間加熱する。加熱した溶液を放冷後、溶液を100mlにメスアップした後、原子吸光度計にて測定する。なお、硫酸(1+3)とは、濃硫酸1に対して純水を体積比で3加えて希釈した溶液を指す。

[0032] (流動性)

本発明の一実施態様である、球状アルミナ粒子は、以下の測定方法による流動性の評価が良好、すなわち○(Good)であるものであってもよい。球状アルミナ粒子は、樹脂複合組成物のフィラー等として用いることができ、製造管理の観点から流動性が適当な範囲にあることが好ましい。流動性は、マトリックス樹脂等の条件に応じて変化するものであるが、一つの目安として、本明細書における流動性の評価基準を示す。

[0033] 本明細書における流動性の評価手法は以下のとおりである。まず、球状アルミナ粒子試料を30g測りとり、袋に入れる。さらにAZ10-75（日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製アルミナ粉末 平均粒径10 μ m）70gを測りとり、先ほど球状アルミナ粒子を入れた袋に入れる。その後袋を縛り、十分にかくはん混合する。混合後のアルミナ粒子混合粉末を43.5g測りとり、200mlのプラスチック製容器に入れる。そこにダウ東レ製シリコーン樹脂CY52-276A液6.5gを加え、シンキー製真空混練機「泡取り練太郎」にて真空混練する。混練条件は予備混練15秒、真空混練90秒にて実施する。混練後、混練物の入ったプラスチック製容器を25℃に調整したウォーターバスに入れ1時間冷却する。混練し調製したコンパウンド（樹脂複合組成物）10gを表面が平滑な板にのせる。板の材質に特段の制限はないが、本実施例では鉄板を用いた。コンパウンドをのせた板を水平方向に対して60°傾けコンパウンドの流れ度合いを確認する。本試験では傾けて5時間後に15cm以上流れた場合は流動性が○（Good）、15cm以上流れなかった場合は流動性が×（Not Good）と評価する。

[0034] [球状アルミナ粒子の製造方法]

本発明の一実施態様では、球状アルミナ粒子の製造方法が提供される。当該製造方法は、上述したアルミナ粒子を好適に製造できる方法であり、以下の工程を含む。

（1）アルミナ、ベーマイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含み、粒径が0.3～2.00 μ mである原料を調製する原料調製工程、および、

（2）前記原料を珪素原子含有表面処理剤により表面処理する表面処理工程、および、

（3）前記原料を火炎中に投入して熔融させた後、急冷することで球状化する球状化工程。

[0035] 工程の順序が前後するが、先に（3）の球状化工程について説明する。

[0036] （3）の球状化工程は、原料を火炎中に投入して熔融させた後、急冷する

ことで球状化する工程である。原料は、キャリアガス中に浮遊させた状態で火炎中に投入することができる。キャリアガスとしては、空気、酸素、プロパンガスなどが採用できる。火炎の形成方法としては特に限定しないが、原料の投入とは別の経路で火炎を形成する燃料（プロパンなど）をバーナに供給して火炎を形成したり、燃料と助燃ガス（空気や酸素）を予め混合してバーナに供給して火炎を形成したり、原料、燃料、助燃ガスを混合してバーナに供給して火炎を形成したりすることができる。火炎の形成は耐熱炉内に行うことが好ましい。耐熱炉の上部にて火炎を形成し、その火炎中に原料を供給して、形成されるアルミナ粒子材料が重力により沈降していくのを下方から回収することが好ましい。耐熱炉中の下方には火炎を形成しないようにすることで、下方に沈降したアルミナ粒子材料は急冷されて粒子化する。

[0037] (1) の原料調製工程では、(3) 球状化工程で投入する原料を調製する。当該原料は、アルミナ、ベーマイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含み、粒径が $0.2 \sim 2.0 \mu\text{m}$ であるように、調製される。

ベーマイトは、アルミナ・1水和物であり、 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の化学式で表され、水酸化アルミニウムは $\text{Al}(\text{OH})_3$ の化学式で表される。いずれも(3) 球状化工程で、火炎中に投入されると、まず、原料中の水和分(H_2O)または水酸基(OH)が、水蒸気(H_2O)として離脱し、アルミナ(Al_2O_3)粒子が生成する。アルミナ(Al_2O_3)粒子は、少なくとも表面が溶融し、球状化される。

また、当該原料としてアルミナを使用する場合、水酸化アルミニウムを焼結して得られる仮焼アルミナ、または水酸化アルミニウムを電融して得られるアルミナ、水酸化アルミニウムから製造された低ソーダアルミナ、アンモニア明礬熱分解法やアルミニウムアルコキシド加水分解法、アルミニウム水中放電法、または他の方法により製造された高純度アルミナが挙げられる。より好ましくは、生産性、コストの観点から低ソーダ水酸化アルミニウムを焼成して得られるアルミナである。

上記原料のうち、ベーマイトまたは水酸化アルミニウムは水分（水和水や

水酸基)を十分に含む、そのため、後述の通り、球状化工程において原料の粒径の増大が特に有効に抑えられるので、平均粒径 $1\ \mu\text{m}$ 未満の球状アルミナ粒子を効率的に得ることができるので、より好ましい。

[0038] 従来、球状アルミナの製造方法として、アルミナ粒子を火炎中に投入して、球状化するものが知られているが、その球状化工程では、表面が熔融したアルミナ粒子どうしが、融着し、凝集することにより、得られる粒子の粒径の増大や、円形度の低下につながることもある。しかしながら、本実施態様では、それらの不具合が解消される。

[0039] まず、本実施態様の原料は、水分（水和水や水酸基）を含んでいるので、まず火炎の入口から火炎の半ばまでは水蒸気（ H_2O ）の離脱に時間を要する。つまり、火炎の中でアルミナ粒子の表面が熔融して、アルミナ粒子どうしが融着し、凝集する機会が少ない（時間が短い）。その結果、火炎通過後のアルミナ粒子の粒径が、原料の粒径（ $0.2\sim 2.0\ \mu\text{m}$ ）より過度に増大することが抑制される。

[0040] さらに、原料から離脱した水蒸気（ H_2O ）は、火炎中で加熱されることにより膨張し、残った原料どうし、すなわちアルミナ粒子どうし、の間隔を遠ざけるように作用する。つまり、アルミナ粒子どうしの融着の機会はさらに減少する。その結果、火炎通過後のアルミナ粒子の粒径が、原料の粒径（ $0.2\sim 2.0\ \mu\text{m}$ ）より過度に増大することが抑制される。また、粒子どうしの接触が少ないので、各粒子の球状化も促進される。

[0041] 次に（２）の表面処理工程について説明する。

[0042] （２）の表面処理工程では、（３）球状化工程に先立ち、（１）の原料調製工程で得られた原料を表面処理する。原料の表面処理剤としては、シラン化合物（シランカップリング剤など）、シラザン、ＡＩカップリング剤などを採用することができる。表面処理剤の処理量は原料の材質等により適宜調整できるが、好ましくは、これらの表面処理剤を原料に対して１質量％以上配合することによって、原料粉末同士が吸着しにくくすることができるのでバーナや配管への付着による目詰まりや供給量のばらつきを効果的に防止す

ることができる。更に、原料粉末どうしの凝集による粗大化を効果的に防止することができる。一方、表面処理剤が過剰に存在すると処理剤同士が反応し粒子同士が表面処理剤を介して架橋することによって、本来の分散効果を得られない恐れがあり、また経済性の観点からも過剰に処理剤を添加することは好ましくない。表面処理剤の配合量の好ましい上限は、原料に対して10質量%である。

上記表面処理剤のうち、シランカップリング剤、アルコキシシラン化合物、シラザン化合物等の珪素原子含有化合物（「珪素原子表面処理剤」ともいう。）は、経済性、反応性の観点から好ましい。これらの珪素原子表面処理剤は公知の物質を採用することができる。シランカップリング剤としては、ビニルトリメトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシランが挙げられる。アルコキシシラン化合物としてはヘキシルトリメトキシシラン、オクチルトリエトキシシランが挙げられる。シラザン化合物はヘキサメチルジシラザン、トリメチルシランが挙げられる。反応性に優れるという観点ではシラザン化合物がより好ましい。より好ましくはヘキサメチルジシラザン、トリメチルシランである。

[0043] 表面処理の手法は、以下の第一工程（加熱工程）及び第二工程（表面処理工程）を含む。

第一工程（加熱工程）

アルミナ、水酸化アルミニウム、ベーマイトのいずれかを含む原料粉を100℃～500℃の温度で30分以上加熱する。好ましい加熱条件は150℃以上で2時間もしくは5時間加熱するとよい。本工程で原料粉を加熱することによって、粉末粒子表面に存在する余分な水分を除去することによって、後工程の表面処理工程において、処理剤と粒子粉末の反応性を高めることができる。これは原料表面に水分が付着していると、付着している水分と表面処理剤が反応してしまい、表面処理剤が適切に原料と反応することができなくなってしまう。原料の加熱方法は特に問わないが、一般的に用いられる、電気乾燥炉、トンネルキルン、シャトルキルンなどを用いて、原料粉末を

乾燥させる方法が好ましい。乾燥温度は先述した球状化時に原料から発生する水分による粒径の粗大化抑制効果を得るために500℃以下が望ましい。500℃以上で加熱することによって、水酸化アルミニウム、もしくはペーサイトから完全に水分が脱離してしまい、球状化時に水分が発生しなくなってしまう。乾燥温度の下限は水分を蒸発させるために、100℃以上が望ましい。加熱後、冷却して次工程に使用してもよいし、冷却しなくてもよい。好ましくは、冷却せず次の工程の表面処理工程を実施する。

[0044] 第二工程（表面処理工程）

前工程によって加熱処理した原料粉を任意のミキサーに投入し攪拌する。攪拌する際、常温で攪拌しても、加熱して攪拌してもよい。シラン化合物の反応性を高めるために、好ましくは50℃以上より好ましくは80℃以上に加熱して攪拌するとよい。30秒から10分程度攪拌した後、攪拌を行いながら、表面処理剤を噴霧する。表面処理剤の種類は上述のとおりであり、好ましくはヘキサメチルジシラザン、トリメチルシランがある。また噴霧する量は表面処理剤の最小被覆面積と処理している原料粉の比表面積と投入重量から求められる量（下記式参照）の1～5倍量を噴霧するとよい。

$$\text{噴霧する表面処理剤量} = (\text{原料粉の比表面積}) \times (\text{原料粉の投入重量}) / (\text{表面処理剤の最小被覆面積})$$

[0045] 表面処理剤の攪拌方法は問わないが、一般に用いられるボールミル、振動ミル、遊星粉砕機、ジェットミル、機械攪拌ブレード式ミキサー、容器回転式ミキサー等の混合機を用いて原料粉末に前述のシランカップリング剤等の表面処理剤を混合する方法が好ましい。また混合時に原料を加熱してもよい。加熱方法は問わないが混合容器の外部をジャケットで覆い、蒸気や加熱した水、油等で加熱してもよい。加熱することによって、表面処理剤の反応性を高めることができ、効率的に原料を表面処理することが可能になる。

[0046] また、（2）の表面処理工程の前に、補助的に、原料を、解砕・分散機能を有する装置を経由させてもよい。

解砕・分散機能を有する装置は、乾式法の場合には、ジェットミル等の高

速気流内で旋回させ粉体を衝突粉碎する装置、含塵ガス同士を対向流で衝突させることで粉体同士を衝突粉碎する装置等が挙げられる。また、湿式法の場合には、スラリーを衝突させ粉碎する高圧湿式ジェットミル型粉碎装置、スラリー送液管内に強力な超音波を照射できる超音波分散装置等が挙げられる。解砕・分散機能を有する上記装置を経由する場合はアルミナ粒子と装置の金属部分が接触し摩耗させないために、装置の接粉部分をライニング処理することが望ましい。ライニング処理する場合の部材は特に限定しないが、ウレタン、炭化ホウ素、アルミナ、炭化ケイ素、テフロン（登録商標）が挙げられるが、アルミナ粒子は非常に硬い物質なため、ライニング処理する素材としてアルミナライニングがより好ましい。

[0047] 本実施態様による原料は、ベーマイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含んでよく、これらは、アルミナに比べて、表面OH基を多く含むので、表面処理がされやすく、その効果も現れやすい。すなわち、原料どうしの分散効果が高く、結果として、所望する粒径が小さく、円形度の高い、球状アルミナ粒子を、さらに容易に得ることができる。

[0048] なお、本実施態様による原料は、本発明の効果に影響を与えない範囲で、ベーマイト、または水酸化アルミニウム以外の成分を含んでもよく、例えば、アルミナを含んでもよい。

[0049] また、本実施態様による原料は、製造するアルミナ粒子の粒径と同等の粒径、または若干小さい粒径、すなわち、 $0.2 \sim 2.0 \mu\text{m}$ に調節する。好ましくは、 $0.3 \mu\text{m}$ 以上であってもよく、 $1.9 \mu\text{m}$ 以下であってもよい。目的とする粒径になるように粉碎や分級により粒径を調節してもよい。上述のとおり、本実施態様による製造方法では、原料の粒度分布が概ね製造されるアルミナ粒子材料の粒度分布として引き継がれる。

[0050] [樹脂複合組成物]

本発明の一実施態様によって、最終的に得られた球状アルミナ粒子と樹脂との複合組成物を製造することができる。樹脂複合組成物の組成等について、以下により詳細に説明する。

- [0051] 球状アルミナ粒子と樹脂とを含むスラリー組成物を用いて、半導体封止材（特に固形封止材）、層間絶縁フィルム等の樹脂複合組成物を得ることができる。さらには、これらの樹脂複合組成物を硬化させることで、封止材（硬化体）、半導体パッケージ用基板等の樹脂複合体を得ることができる。
- [0052] 前記樹脂複合組成物を製造する場合、例えば、球状アルミナ粒子及び樹脂の他に、硬化剤、硬化促進剤、難燃剤、シランカップリング剤等を必要により配合し、混練等の公知の方法で複合化する。そして、ペレット状、フィルム状等、用途に応じて成型する。
- [0053] また、前記樹脂複合組成物を製造する場合、球状アルミナ粒子及び樹脂の他に、他の無機フィラーを配合してもよい、前記無機フィラーとしては、非晶質球状シリカ粒子、結晶質球状シリカ粒子、チタニア粒子、マグネシア粒子、窒化アルミニウム粒子、窒化ホウ素粒子、チタン酸バリウム粒子、チタン酸カルシウム粒子、カーボンファイバーが挙げられる。前記無機フィラーの配合比は、樹脂複合組成物の用途に応じて適宜調整できるが、本発明の球状アルミナ粒子の効果を発現させるという観点で、（球状アルミナ粒子の配合重量）：（他の無機フィラーの配合重量）＝95：5～60：40であることが好ましい。
- [0054] さらに、前記樹脂複合組成物を硬化して樹脂複合体を製造する場合、例えば、樹脂複合組成物に熱を加えて溶融して、用途に応じた形状に加工し、溶融時よりも高い熱を加えて完全に硬化させる。この場合、トランスファーモールド法等の公知の方法を使用することができる。
- [0055] 例えば、パッケージ用基板や層間絶縁フィルム等の半導体関連材料を製造する場合には、樹脂複合組成物に使用する樹脂として、公知の樹脂が適用できるが、エポキシ樹脂を採用することが好ましい。エポキシ樹脂は、特に限定されないが、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、フェノキシ型エポキシ樹脂等を用いることができる。これらの中の1

種類を単独で用いることもできるし、異なる分子量を有する2種類以上を併用することもできる。これらの中でも、硬化性、耐熱性等の観点から、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。具体的には、ビフェニル型エポキシ樹脂、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等のグリシジルエーテル、フタル酸やダイマー酸等の多塩基酸とエポクロル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等のハロゲンを導入したエポキシ樹脂等が挙げられる。これら1分子中にエポキシ基を2個以上有するエポキシ樹脂中でも特にビスフェノールA型エポキシ樹脂が好ましい。

[0056] また、半導体封止材用複合材料以外の用途、例えば、プリント基板用のプリプレグ、各種エンジニアプラスチック等の樹脂複合組成物に使用する樹脂としては、エポキシ系以外の樹脂も適用できる。具体的には、エポキシ樹脂の他には、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、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）樹脂が挙げられる。

[0057] 樹脂複合組成物に用いられる硬化剤としては、前記樹脂を硬化するために、公知の硬化剤を用いればよいが、例えばフェノール系硬化剤を使用するこ

とができる。フェノール系硬化剤としては、フェノールノボラック樹脂、アルキルフェノールノボラック樹脂、ポリビニルフェノール類等を、単独あるいは2種以上組み合わせて使用することができる。

[0058] 前記フェノール硬化剤の配合量は、エポキシ樹脂との当量比（フェノール性水酸基当量／エポキシ基当量）が0.1以上、1.0未満が好ましい。これにより、未反応のフェノール硬化剤の残留がなくなり、吸湿耐熱性が向上する。

[0059] 本発明の球状アルミナ粒子の、樹脂複合組成物における添加量は、耐熱性、熱膨張率の観点から、多いことが好ましいが、通常、70質量%以上95質量%以下、好ましくは80質量%以上95質量%以下、更に好ましくは85質量%以上95質量%以下であるのが適当である。これは、球状アルミナ粒子の配合量が少なすぎると、封止材料の強度向上や熱膨張抑制などの効果が得られにくいためであり、また逆に多すぎると、球状アルミナ粒子の表面処理に関わらず複合材料において球状アルミナ粒子の凝集による偏析が起きやすく、複合材料の粘度も大きくなりすぎるなどの問題から、封止材料として実用が困難となるためである。なお、前述の「他のフィラー」を併用する場合、前記樹脂複合組成物における好ましい添加量は球状アルミナ粒子及び「他のフィラー」の合計量である。

[0060] また樹脂のほかに、添加材、例えばシランカップリング剤、硬化剤、着色剤、硬化遅延材等の公知の添加剤を使用することができる。

[0061] また、シランカップリング剤については、公知のカップリング剤を用いればよいが、エポキシ系官能基を有するものが好ましい。

[0062] 球状アルミナ粒子と樹脂とを含むスラリー組成物を用いて、放熱シート、放熱グリース等を得ることができる。

[0063] 前記放熱シートを得る際には、球状アルミナ粒子と、樹脂のほかに、添加剤を適宜配合し、混練等の公知の方法で複合化する。得られた複合体を公知の方法で、シート状に成型する。

[0064] 例えば、放熱シートを製造する場合には、樹脂複合組成物に使用する樹脂

として、公知の樹脂が適用できるが、具体的にシリコン樹脂、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、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）樹脂が挙げられる。中でもシリコン樹脂を用いることが好ましい。シリコン樹脂は特に限定されないが、例えば、過酸化物硬化型、付加硬化型、縮合硬化型、紫外線硬化型等を用いることができる。

[0065] また樹脂のほかに、添加材、例えばシランカップリング剤、硬化剤、着色剤、硬化遅延材等の公知の添加剤を使用することができる。

[0066] 前記放熱グリースを得る際には、球状アルミナ粒子と、樹脂のほかに、添加剤を適宜配合し、混練等の公知の方法で複合化する。ここで、放熱グリースに使用する樹脂は基油ともいう。

[0067] 例えば、放熱グリースを製造する場合には、樹脂複合組成物に使用する樹脂として、公知の樹脂ができるが、具体的にはシリコン樹脂、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、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、鉱油、合成炭化水素油、エステル油、ポリグリコール油、シリコン油、フッ素油が挙げられる。

[0068] また樹脂のほかに、添加材、例えばシランカップリング剤、着色剤、増ち

よう剤等の公知の添加剤を使用することができる。増ちょう剤は、カルシウム石けん、リチウム石けん、アルミニウム石けん、カルシウムコンプレックス、アルミニウムコンプレックス、リチウムコンプレックス、バリウムコンプレックス、ベントナイト、ウレア、PTFE、ナトリウムテレフタレート、シリカゲル、有機化ベントナイト等の公知のものを使用できる。

実施例

[0069] 以下の実施例・比較例を通じて、本発明について説明する。ただし、本発明は、以下の実施例に限定して解釈されるものではない。

[0070] (実施例 1)

ベーマイト原料 ($D50 = 0.4 \mu m$) を事前に $150^{\circ}C$ の加熱炉で 5 時間加熱し、加熱した原料をヘンシェルミキサーに投入した。投入後攪拌しながらヘキサメチルジシラザンを投入し表面処理した。ヘキサメチルジシラザンの投入量は原料の重量に対して $1.5 wt\%$ 添加した。その後 L P G と酸素との燃焼により形成される高温火炎中に酸素をキャリアガスとして用いて供給し、熔融・球状化処理を行って、表 1 の実施例 1 に記載の球状アルミナ粒子を製造した。

[0071] (実施例 2)

原料にアルミナ粉末 ($D50 = 0.7 \mu m$) を用いる以外には実施例 1 と同様の操作で表 1 の実施例 2 に記載の球状アルミナ粒子を製造した。

[0072] (実施例 3)

原料にベーマイト原料 ($D50 = 0.2 \mu m$) を用いる以外には実施例 1 と同様の操作で表 1 の実施例 3 に記載の球状アルミナ粒子を製造した。

[0073] (比較例 1 ~ 7)

表 1 に記載の条件で、原料である種々の材料 (金属アルミニウム粉末、ベーマイト、またはアルミナ) を L P G と酸素との燃焼により形成される高温火炎中に空気をキャリアガスとして用いて供給し、酸化・球状化処理を行って、表 1 の比較例に記載の球状アルミナ粒子を製造した。

[0074] (実施例 4)

実施例 1 で得られた球状アルミナ粒子と窒化アルミニウム粒子 ($D_{50} = 30 \mu m$) とを、(球状アルミナ粒子の配合重量) : (窒化アルミニウム粒子の配合重量) = 90 : 10 となるように混合し、球状アルミナ粒子混合物 A を作製した。さらに、樹脂複合組成物における球状アルミナ粒子混合物 A の添加量が 90 質量% となるように、球状アルミナ粒子混合物 A とダウ東レ製シリコーン樹脂 CY52-276A 液とを混合し、シンキー製真空混練機「泡取り練太郎」にて真空混練し、樹脂複合組成物を得た。混練条件は予備混練 15 秒、真空混練 90 秒にて実施した。

[0075] (実施例 5)

実施例 2 で得られた球状アルミナ粒子と窒化ホウ素粒子 ($D_{50} = 20 \mu m$) とを、(球状アルミナ粒子の配合重量) : (窒化ホウ素粒子の配合重量) = 90 : 10 となるように混合し、球状アルミナ粒子混合物 B を作製した。さらに、樹脂複合組成物における球状アルミナ粒子混合物 B の添加量が 90 質量% となるように、球状アルミナ粒子混合物 B とダウ東レ製シリコーン樹脂 CY52-276A 液とを混合し、シンキー製真空混練機「泡取り練太郎」にて真空混練し、樹脂複合組成物を得た。混練条件は予備混練 15 秒、真空混練 90 秒にて実施した。

[0076] 表 1 に、製造された球状アルミナ粒子の物性値を示す。

[0077]

[表1]

表1

	単位	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
原料種類	—	ペーマイト	アルミナ	ペーマイト	金属Al	ペーマイト	アルミナ	ペーマイト	アルミナ	ペーマイト	ペーマイト
表面処理剤	—	HMDS	HMDS	HMDS	なし	HMDS	HMDS	なし	なし	HMDS	HMDS
原料平均粒径	μm	0.4	0.7	0.2	30	2.5	2.1	0.4	0.7	0.1	3
球状粒子の平均粒径	μm	0.8	1.1	1.0	0.1	2.3	3.4	2.3	2.4	0.2	3.8
比表面積	m ² /g	3.4	3.2	4.57	16.9	1.67	0.9	1.55	1.51	6.9	0.76
円形度	—	0.943	0.91	0.95	0.945	0.93	0.93	0.92	0.96	0.97	0.95
α化率	%	0.63	0.56	0.73	4.34	2.5	2.0	3.6	3.5	0.3	4.5
金属Al濃度	ppm	660	540	810	3500	730	480	680	550	600	700
換算粉体抵抗率	Ω・cm	3.1×10 ⁹	5.6×10 ⁹	3.4×10 ⁹	5.4×10 ⁹	6.0×10 ⁹	3.0×10 ⁹	1.7×10 ⁹	2.2×10 ⁹	2.2×10 ⁹	1.3×10 ⁹
流動性	—	O(Good)	O(Good)	O(Good)	× (Not Good)	O(Good)	O(Good)	O(Good)	O(Good)	× (Not Good)	O(Good)
Na ₂ O	ppm	490	749	265	1	230	315	421	760	231	165

[0078] 各物性値の測定方法を以下に記す。

[0079] (レーザー回折散乱法による平均粒径)

レーザー回折・散乱式粒度分布測定法は、球状アルミナ粒子を分散させた分散液にレーザー光を照射し、分散液から発せられる回折・散乱光の強度分布パターンから粒度分布を求める方法である。本発明では、レーザー回折・散乱式粒度分布測定装置「Mastersizer 3000」(Malvern社製)を用いた。

[0080] (比表面積)

比表面積はBET法にて測定する。典型的には、以下の手順で比表面積を測定する。

約5gの試料を測り採り、250℃で5分真空乾燥した。ついで、自動比表面積測定装置(マウンテック社製、Macsorb)に試料をセットし、純窒素及び窒素-ヘリウム混合ガス(混合比率窒素30%、He70%)を用いて77Kの測定温度で相対圧 P/P_0 が0.291の値の窒素ガス吸着量を測定し、1点法にてBET比表面積を算出する。

[0081] (円形度)

円形度の測定は電子顕微鏡や光学顕微鏡と画像解析装置を用いて測定することができる。例えばシスメックス社製FPIA等である。これら装置を用いて粒子の円形度(相当円の周囲長/粒子の投映像の周囲長)を測定する。100個以上の粒子について円形度を測定し、その平均値をその粉末の円形度とする。

[0082] (α 化率)

アルミナ粒子粉末の α 化率は、粉末X線回折装置を用いて測定する。得られた回折ピークの積分面積を求め、その合計に対して α アルミナ由来の回折ピーク面積の割合をリートベルト法によって解析する。具体的にはBruker社製のD2 PHASERを用いてX線回折パターンを 2θ が 10° から 90° の範囲で取得する。取得したパターンをBruker社製のDIFFRAC.TOPASを用いてリートベルト法にて α 化率を算出する。算出の際には α アルミナ、 δ アルミナ、 θ アルミナの3種類の結晶相のみが存在す

ると仮定して解析し、 α アルミナの含有率を算出する。

[0083] (金属 A I 濃度)

アルミナ粒子中に残留する金属 A I を以下の手順で測定する。球状アルミナ粒子試料を約 1 g 測りとり、ビーカーに入れる。ビーカーに 1 m o l / L の塩酸を 6 0 m l 加え、室温中で 5 時間攪拌する。攪拌後の試料溶液の上澄みを取り 1 0 0 m l に定容し、溶液を I C P - M S にて A I 分を分析する。

[0084] (換算粉体抵抗率)

アルミナ粒子粉末の換算粉体抵抗率（以下、単に「換算粉体抵抗率」ともいう。）は、粉体抵抗率と粒子の $N a_2 O$ の含有量を掛け合わせることで求めた。つまり、（換算粉体抵抗率）＝（アルミナ粒子粉末の粉体抵抗率）×（球状アルミナ粒子の $N a_2 O$ 含有量）の式によって算出される。アルミナ粒子粉末の粉体抵抗率は、粉体抵抗率測定システム M C P - P D 5 1 を用いて測定する。測定の前処理として大気中で 2 0 0 ° C の条件下で 5 時間加熱乾燥した。乾燥した粉末を粉体抵抗率測定プローブユニットへ導入し、付属の油圧ポンプを用いて試料を徐々に加圧した。荷重が 2 0 k N に達したところで、高抵抗率計にて測定を行った。

[0085] (粒子の $N a_2 O$ の含有量)

アルミナ粒子の $N a_2 O$ の含有量は原子吸光度計を用いて測定した。試料 0 . 5 g を加圧容器に入れ、硫酸（1 + 3）を 1 0 m l 加え蓋をした後、加熱乾燥炉にて 2 3 0 ° C の温度で 1 6 時間加熱する。加熱した溶液を放冷後、溶液を 1 0 0 m l にメスアップした後、原子吸光光度計にて測定した。

[0086] (流動性)

球状アルミナ粒子試料を 3 0 g 測りとり、袋に入れる。さらに A Z 1 0 - 7 5（日鉄ケミカル&マテリアル株式会社製アルミナ粉末 平均粒径 1 0 μ m）を 7 0 g を測りとり、先ほど球状アルミナ粒子を入れた袋に入れる。その後袋を縛り、十分にかくはん混合する。混合後のアルミナ粒子混合粉末 4 3 . 5 g を測りとり、2 0 0 m l のプラスチック製容器に入れる。そこにダウ東レ製シリコーン樹脂 C Y 5 2 - 2 7 6 A 液 6 . 5 g を加え、シンキー製

真空混錬機「泡取り練太郎」にて真空混錬する。混錬条件は予備混錬15秒、真空混錬90秒にて実施する。混錬後、混錬物の入ったプラスチック製容器を25℃に調整したウォーターバスに入れ1時間冷却する。混錬し調製したコンパウンド（樹脂複合組成物）10gを表面が平滑な板にのせる。板の材質に特段の制限はないが、本実施例では鉄板を用いた。コンパウンドをのせた板を水平方向に対して60°傾けコンパウンドの流れ度合いを確認する。本試験では傾けて5時間後に15cm以上流れた場合は流動性が○（Good）、15cm以上流れなかった場合は流動性が×（Not Good）と評価する。

- [0087] 金属アルミニウム濃度が低く、 α 化率が低く、かつ小粒径の球状アルミナ粒子、を得られることを確認した。また、当該球状アルミナ粒子を含有する樹脂複合組成物、を得られることを確認した

産業上の利用可能性

- [0088] 本発明の球状アルミナ粒子は、小粒径であるために、小型化・薄型化された半導体パッケージ等にも利用でき、また、金属アルミニウム濃度が低いので、短絡等の重大な事故の発生が抑制される。さらに、本発明の一態様である製造方法により、当該球状アルミナ粒子を容易に製造することができる。当該球状アルミナ粒子を含有する樹脂複合組成物は、良好な流動性を示し、半導体封止用材に限定されず、他の用途にも用いることができる。具体的には、プリント基板用のプリプレグや、各種エンジニアリングプラスチック等として使用することも可能である。

請求の範囲

- [請求項1] 金属A I 濃度が1 0 0 0 p p m以下であり、平均粒径が0. 3～2. 0 μ mであり、比表面積が2. 5～5. 0 m²/gであり、円形度が0. 8 0以上であり、α化率が5. 0 %以下であることを特徴とする、球状アルミナ粒子。
- [請求項2] α化率が1. 0 %未満である、請求項1 に記載の球状アルミナ粒子。
- [請求項3] アルミナ、ベーマイト、または水酸化アルミニウムの少なくとも一つを含み、粒径が0. 2～2. 0 μ mである原料を調製する原料調製工程と、
前記原料を珪素原子含有表面処理剤により表面処理する表面処理工程と、
前記表面処理された原料を火炎中に投入して熔融させた後、急冷することで球状化する球状化工程と、
を有する、球状アルミナ粒子の製造方法。
- [請求項4] 請求項1 または2 に記載の球状アルミナ粒子を含有していることを特徴とする樹脂複合組成物。
- [請求項5] 非晶質球状シリカ粒子、結晶質球状シリカ粒子、チタニア粒子、マグネシア粒子、窒化アルミニウム粒子、窒化ホウ素粒子、チタン酸バリウム粒子、チタン酸カルシウム粒子、カーボンファイバーから選ばれる、少なくとも1 種類以上の無機フィラーをさらに含有する、請求項4 に記載の樹脂複合組成物。