<研究論文>

(受理：平成20年7月29日)

微小導電性接着接合部の力学的・電気的特性の実験的研究

吉澤 幸真*・池上 皓三**

要 旨

エポキシ樹脂に球状銀粉を混練した導電性接着剤で接着した微小接合部に、室温と高温で引張、ねじり、引張とねじりの複合負荷試験、高温での引張クリープ、ねじりクリープ、引張とねじりの複合負荷クリープ試験を行い、微小接合部の変形特性と導電性の関係を調べた。変形特性にはひずみ量を、導電性には電気抵抗を用いて、これらの関係を調べた。引張とねじり試験では、応力とひずみ関係で比例限ひずみまでは、電気抵抗に大きな変化はないが、比例限ひずみを越えると電気抵抗は急激に増加した。複合負荷では、それぞれの応力負荷の応力とひずみの関係で、比例限ひずみまでは電気抵抗に大きな変化はないが、比例限ひずみを越えると、電気抵抗は急激に増加し導電性は失われた。クリープ試験では、引張、ねじりのいずれの試験においても、遷移クリープから定常クリープに移る時点で、電気抵抗値が急激に増加し導電性が失われた。また、引張とねじりの複合クリープ試験では遷移クリープの初期の段階で電気抵抗が急激に増加し導電性が失われた。

1. 緒 言

近年の電子機器の多機能化に伴い、電子デバイスの縮小化が求められ、そのパッケージ方法は表面実装型へ移行している。従来デバイス端子部の接合には、はんだボールが用いられてきたが、近年、環境汚染の問題から鉛を主成分とするはんだの使用が規制されたので、導電性接着剤を表面実装に用いる研究が進められている^{1,2,3)}。これまでの導電性接着剤に関する研究には、導電性接着剤の硬化収縮が導電性に及ぼす影響⁴⁾、接着剤の組成と物性の関係^{5,6,7)}、導電性接着剤の環境耐久性^{8,9)}、異方性導電性フィルムの特性^{10,11,12)}、などの研究があるが、導電性接着剤の接着性と導電性の関係の研究は少なく¹³⁾、とくに微小接合部の導電性と変形特性の関係を調べた研究はほとんどみあたらない。電子デバイスは作動時に熱変形を受けることが多いので、導電性接着剤による微小接合部が変形を受けたとき導電特性を調べておくことは、導電性接着剤の実用上重要なことである。そこで本研究では導電性接着剤による微小接合部に引張やせん断の変形を加え、変形量が微小接合部の導電性におよぼす影響を実験的に調べた。

2. 試験片および試験装置

2.1 導電性接着剤

接着剤は1液性熱硬化型エポキシ樹脂を主剤とし、球状銀粉を導電性フィラーとして用いた。Fig. 1がフィラーの写真である。導電性フィラーの形状が不揃いであると、混練後、接着剤としての流動性をいちじるしく損ね、接着性も悪くなるため、形状が均整のとれたフィラーが必要となる。そのため、始めにフィラーを100℃以上の温度で4時間加熱し、フィラー表面に付いた水分を蒸発させ、アルミナ乳鉢を用いて粉碎後、ふるいを用いて平均粒子径が10 μm以下となるように選別した。その後、接着剤用エ

Fig. 1 Conductive silver filler (Ag)

* 東京電機大学大学院工学研究科

東京都千代田区神田錦町 2-2 〒101-0054

** 東京電機大学工学部機械工学科

東京都千代田区神田錦町 2-2 〒101-0054

(原稿受付日：平成20年4月15日)

ポキシ樹脂 3g, フィラーを 45wt% 加え, 遠心脱泡機により混練した。

2.2 試験片

試験片は Fig. 2 に示すような 2 枚の基板を微小接合部で重ね合わせ接着したものである。試験片に用いた基板の材質は FR-4 で, これに導電性を測定するための銅パターンを付けたものを試験片基板とした。ディスペンサーで導電性接着剤を基板中央部の直径 0.8mm のレジスト抜き部に塗布し, もう 1 枚の基板の銅パターン部をかぶせ, 重りをのせ, 5MPa 負荷した状態で, 130°C, 1 時間の条件で熱硬化させることにより試験片を作製した。接着接合部の厚さを一定に保つために, 接着剤硬化時に直径 0.28mm

のスペーサを 2 枚の基板の間に置いた。この厚さは接着剤のディスペンサーからの吐出量と接着面積から決めた。試験片横断面の模式図を Fig. 3 に示す。

2.3 試験装置

本研究に使用した試験装置の外観を Fig. 4 に示す。試験装置では, 移動ステージの平行移動による引張試験, 回転ステージの回転移動によるねじり試験, これらを同時に行うことで, 引張, ねじりの複合負荷試験が, 更に, これらの一定荷重を負荷するクリープ試験も可能である。また, 加熱装置を用いて試験片を加熱し, 高温での試験ができるようになっている。試験中の電気抵抗値の変化はデジタルマルチメータで計測した。

3. 試験方法

試験は, 室温と高温 (150°C) で引張試験, ねじり試験, 引張とねじりの複合負荷試験, 高温 (150°C) で引張クリープ試験, ねじりクリープ試験, 引張とねじりの複合負荷クリープ試験を行った。これらの試験で変形が導電性におよぼす影響を調べた。

引張試験では, 移動ステージの移動速度を $2\mu\text{m}/\text{sec}$ に, ねじり試験では回転ステージの移動速度を $0.1\text{degree}/\text{sec}$ にした。引張とねじりの複合負荷試験では, 引張応力とねじり応力を同時に加え, 引張応力をあたえる移動ステージの移動速度を $2\mu\text{m}/\text{sec}$ に, 回転ステージのねじり速度を $0.04\text{degree}/\text{sec}$ から $0.5\text{degree}/\text{sec}$ の間で変えた。クリープ試験では加える荷重を制御により一定に保持した。

試験片への負荷応力の算出は, 基板の微小接合部の面積を試験片が破断したのち, 光学顕微鏡で計測し, 試験片の引張荷重を計測した接着面積で割って引張応力を計算し, せん断応力は接着面積を円形で近似し, ねじりモーメントから円形断面の最外周に作用するせん断応力を計算した。また, 試験片の引張ひずみは, 接着した 2 枚の基板の間の距離を試験中測定し, 試験前の基板の距離を基準にして計算した。また, せん断ひずみは円形接着面積とねじり回転角から計算した。

Fig. 2 Specimen of printed-wiring board FR-4

Fig. 3 Structure of specimen bonded FR-4

Fig. 4 Testing equipment

4. 試験結果および考察

4.1 引張, ねじり試験

Fig. 5 と Fig. 6 に, それぞれ, 室温, 150°Cでの引張試験の試験結果を示してある。これらの図には引張応力 (σ) と引張ひずみ (ε) の関係と, 引張ひずみ (ε) と電気抵抗 (R) の関係を示してある。室温と 150°Cの応力-ひずみ関係を比較すると, 比例限度, 最大応力, また, それらの応力に対応する比例ひずみのどれを比較しても 150°Cでは低下した。なお, 比例限度は応力ひずみ関係でほぼ直線とみなせる部分の最大応力で定めた。また, 150°Cでは, 室温の場合に比べ塑性ひずみが小さい。試験中のひずみと電気抵抗の関係をみると, 室温と 150°Cのいずれの場合にも, ひずみが小さい間には電気抵抗はほとんど変化しない。しかし, ひずみが比例限度に対応するひずみの値に近づくにつれて, 電気抵抗は増加し, 塑性ひずみが増加するにつれて, 電気抵抗が急激に増加する。

Fig. 7 と Fig. 8 に, それぞれ, 室温, 150°Cでのねじり試験でのせん断応力 (τ) とせん断ひずみ (γ) の関係と, せん断ひずみ (γ) と電気抵抗 (R) の関係を示してある。ねじり試験では, 室温の場合に比べ 150°Cでは, 比例限度

力, 最大応力が低下し, これらの応力に対応するひずみは増加した。また, 室温の場合とことなり, 塑性変形後, 徐々に応力が減少して試験片が破断している。これは接着剤が加熱により軟化し, 剛性が低下したためであると考えられる。電気抵抗とひずみの関係をみると, 室温の場合には比例限度の近傍で電気抵抗が急激に増加しているが, 150°Cの場合には大きな塑性変形が生ずるまで電気抵抗は小さい。

4.2 複合負荷試験

Fig. 9 と Fig. 10 に, それぞれ, 室温, 150°Cでの引張, ねじりの複合負荷試験の試験結果を示す。これらの図は引張とせん断の応力 (σ, τ) と引張とせん断のひずみ (ε, γ) の関係と, 引張とせん断のひずみ (ε, γ) と電気抵抗 (R) の関係を示してある。Fig. 9 の室温の場合, 引張応力 (σ) と引張ひずみ (ε) の関係が塑性変形領域に入っても, せん断応力 (τ) とせん断ひずみ (γ) の関係はほぼ線形に近い関係を示している。また, 電気抵抗は引張応力とひずみの関係のほぼ比例限度に近いところで急激に増加している。このとき, せん断応力とせん断ひずみはほぼ線形に近い関係を示している。Fig. 10 の 150°Cの場合, 電気抵抗のひずみに対する変化は, Fig. 9 と同様の関係を示

Fig. 5 Variations of electric resistance during tensile strain at room temperature

Fig. 7 Variations of electric resistance during torsional strain at room temperature

Fig. 6 Variations of electric resistance during tensile strain at 150°C

Fig. 8 Variations of electric resistance during torsional strain at 150°C

Fig. 9 Variations of electric resistance during combined tensile and torsional stress testing at room temperature

Fig. 10 Variations of electric resistance during combined tensile and torsional stress testing at 150°C

している。すなわち、引張応力と引張ひずみの関係で、比例関係のなくなるひずみの近傍で電気抵抗は急激に増加している。しかし、せん断応力とひずみの関係は比例関係を保っている。これらの結果から、引張とせん断の複合応力が加わる場合、複合応力を構成するどちらかの応力とひずみの関係が、比例関係がなくなる時点で電気抵抗が大きくなるものと推察される。複合応力を加えたとき、複合応力を構成する単一の応力成分とひずみの関係とは異なる場合が多いので、複合応力のもとでの応力とひずみの関係と電気抵抗とひずみの関係は複雑である。

Fig. 11 に室温、150°Cでの引張、ねじりの複合負荷での引張とせん断試験での比例限応力 (σ , τ) の実験値を示してある。また図には、それぞれの温度での、引張試験での比例限応力を基準とした Mises の相当応力曲線と、実験値から最小二乗法によって定めた応力曲線が示されている。それぞれの Mises の相当応力曲線の右半分（引張応力が高い領域）を見ると、実験値は相当応力曲線付近に分布しており、曲線と実験値の傾向を表していると言えるが、左半分（せん断応力が高い領域）を見ると、実験値は Mises の相当応力曲線より大きくなっている。この

Fig. 11 Proportional limit stress curves of combined tensile and torsional stress tests at room temperature and 150°C

領域では、実験値のばらつきが大きくなっている。これは、ねじり試験でのわずかな中心軸のずれが、試験結果に大きく影響しているためと考えられる。

4.3 クリープ試験

Fig. 12 は 150°C で、一定保持応力 4.45MPa での引張クリープ試験での引張クリープひずみ (ϵ) と電気抵抗 (R) の時間 (t) に対する変化を示したものである。試験開始後 500 秒経過するまではほぼ遷移クリープで、これ以降定常クリープとなり、3800 秒経過して、短期間の加速クリープが現れる。この条件での引張クリープ試験では、接着剤そのものがクリープ変形し、試験片の接合部界面で剥離せず、接着剤中で凝集破壊するものが多かった。

電気抵抗は、小さいクリープひずみから増加し、遷移クリープが終わる頃に一度減少する。これはクリープ変形の進行とともに、フィラー間隔が変化し接触面積が増加したためと考えられる。さらにクリープひずみが増加すると、電気抵抗は急激に増加し導電性が失われる。

Fig. 13 は 150°C で、一定保持応力 24.6MPa でのねじりクリープ試験でのせん断クリープひずみ (γ) と電気抵抗 (R) の時間 (t) に対する変化を示したものである。この図では横軸のスケールを Fig. 12 とは変えている。この結果でも Fig. 12 の場合と同様に遷移クリープの初期段階から電気抵抗は増加し、遷移クリープ終了時には電気抵抗が大きくなっている。

Fig. 14 に 150°C、引張の一定保持応力 5.92MPa、ねじりの一定保持応力 21.3MPa での複合負荷クリープ試験での引張ひずみ (ϵ) とせん断ひずみ (γ) と電気抵抗 (R) の時間 (t) に対する変化を示している。電気抵抗の変化は、それぞれ引張ひずみとせん断ひずみに対する変化を示している。この図でも横軸のスケールを Fig. 12 とは変え

Fig. 12 Variations of electric resistance during tensile creep test at 150°C

Fig. 13 Variations of electric resistance during torsional creep test at 150°C

Fig. 14 Variations of electric resistance during combined tensile and torsional stress creep test at 150°C

いある。この複合応力クリープ試験では、引張クリープ曲線では定常クリープに近い変形が認められるが、ねじりクリープ曲線では遷移クリープ、定常クリープのように区別するのが困難である。いずれの応力の場合にも同様の傾向のクリープ曲線を示し、短時間に大きなクリープひずみが生じ試験片が破断した。また、電気抵抗は、引張クリープ

ひずみの比較的小さい時に、急激に増加し導電性が失われる。

5. 結 言

エポキシ樹脂に球状銀粉を混練した導電性接着剤を用い、基板を微小接着接合部で重ね合わせ接着したものを試験片として、試験片の接着接合部に変形を与えたとき、接合部の変形と導電性の関係を実験的に調べた。室温での引張試験、ねじり試験、引張とねじりの複合負荷試験、高温 (150°C) での引張試験、ねじり試験、引張とねじりの複合負荷試験、引張クリープ試験、ねじりクリープ試験、引張とねじりの複合負荷クリープ試験を行い、接着接合部の変形量と電気抵抗の関係調べた。

- (1) 室温と高温での引張試験とねじり試験では、いずれの場合にも応力ひずみ関係で、比例限ひずみまでは、電気抵抗に大きな変化は見られないが、比例限ひずみを越えると急激に増加し導電性が失われる。
- (2) 室温と高温での引張とねじりの複合負荷の実験では、負荷された応力のうち、どちらかの応力ひずみ関係でひずみが比例限ひずみより大きくなると、電気抵抗は急激に大きくなり、導電性が失われる。
- (3) 引張とねじりのクリープ試験では、遷移クリープの初期の段階から電気抵抗が増加し、導電性が変形初期の段階で失われる。
- (4) 引張とねじりの複合クリープ試験では、それぞれの負荷応力に対する遷移クリープの初期の段階で電気抵抗が増加し導電性が失われる。

参 考 文 献

- 1) 塚越功, エレクトロニクス実装学会誌, 8, 410 (2005)
- 2) 小日向茂, 日本接着学会誌, 43, 166 (2007)
- 3) 菅沼克昭, 日本接着学会誌, 43, 220 (2007)
- 4) D. Lu and C. P. Wong, International Journal of Adhesion & Adhesives, 20, 189 (2000)
- 5) 松村智行, 高橋龍史, 永田員也, 越智光一, 日本接着学会誌, 38, 78 (2002)
- 6) 杉村貴弘, 井上雅博, 山下宋哲, 山口俊郎, 菅沼克昭, エレクトロニクス実装学会誌, 7, 147 (2004)
- 7) S. Xu, D. A. Dillard and J. G. Dillard, International Journal of Adhesion & Adhesives, 20, 189 (2000)
- 8) T. Tan, X. Qiao, J. Chen, H. Wang, International Journal of Adhesion & Adhesives, 26, 406 (2006)
- 9) O. Ikeda and F. Itoh, 日本接着学会誌, 42, 64 (2006)
- 10) M. Masuko and S. Takeda, 日本接着学会誌, 40, 4 (2004)
- 11) M. J. Yim and K. W. Paik, International Journal of Adhesion & Adhesives, 26, 306 (2006)
- 12) W. K. Kim, 池田徹, 宮崎則幸, エレクトロニクス実装学会誌, 6, 153 (2003)
- 13) 鄭遇珠, 西川宏, 奥見慎祐, 水野雄大, 伊藤大輔, 竹本正, 日本接着学会誌, 41, 490 (2005)

<Original Paper>

Experimental Investigations of Mechanical and Electric Characteristics of
Micro Bonded Joints using Conductive Adhesives

Yukimasa YOSHIKAWA* and Kozo IKEGAMI**

*Tokyo Denki University, Graduate School of Engineering
2-2 Nisikicho, Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8457**Tokyo Denki University, Department of Mechanical Engineering
2-2 Nisikicho, Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8457

(Accepted for publication : July 29, 2008)

Abstract

The electric conductivity of micro bonded part is experimentally investigated under tensile, torsional and creep loadings. The specimens are prepared by bonding two printed boards with a conductive adhesive resin. The conductive adhesive is composed of an epoxy resin and spherical silver fillers. The effects of elastic, plastic and creep strains on the electric conductivity are examined at room temperature and 150°C by measuring the electronic resistance of the micro bonded part during deformation. The electric resistance increases rapidly beyond the proportional limit strain under tensile and torsional loadings. Under combined tensile and torsional loading, the electric resistance increases rapidly when either stress of the combined loads exceeds the proportional limit at room temperature as well as at 150°C. The creep strain affects significantly on the electronic conductivity. The small creep strain at the initial creep stage induces the increase of electric resistance.

Key words : Conductive adhesives, Micro-joint, Tensile test, Torsional test, Electric resistance

(Received : April 15, 2008)