【論文】

導電性接着剤の熱伝導率測定法の研究

Thermal Conductivity Measurement Method for Isotropic Conductive Adhesives

大串 哲朗* 柳浦 聡** 渡邊 聡*** 平田 拓哉****
Tetsuro Ogushi, Satoshi Yanaura, Satoshi Watanabe and Takuya Hirata

IC や LED の接合に使用される導電性接着剤を選択する際には、界面熱抵抗の影響を包含した有効熱伝導率を測定しておく必要がある。本研究では導電性接着剤の実装状態を模擬した状態で接着剤の有効熱伝導率を測定できるカートリッジ方式一方向熱流定常比較法を考え、測定対象となる導電性接着剤の有効熱伝導率を $0.2\sim 50\text{W/m}\cdot\text{K}$ としたときの測定可能な試験材料厚さの範囲と有効熱伝導率の測定精度について検討した。その結果有効熱伝導率測定の相対不確かさが 10%以下となるのは試験材料厚さが $0.2\sim 70\text{mm}$ の範囲であり、有効熱伝導率が大きいほど測定できる試験材料厚さの範囲は大きいこと、また銀-エポキシ系導電性接着剤の有効熱伝導率は温度依存性をもち、界面熱抵抗により影響されることを明らかにした。

Thermal characterization of isotropic electrically conductive adhesives (ICAs) is required for thermal management, because the ICAs are applied to die bonding for IC or LED chips. We have been developed steady state comparative-longitudinal heat flow method using cartridge type specimens for thermal conductivity measurement. In present paper, applicable thickness of the specimen and uncertainty of the measurement under effective thermal conductivity of $0.2\sim 50\text{W/m}\cdot\text{K}$ of the ICAs were investigated. The results demonstrated that this measurement method could measure the thermal conductivity of specimen within 10% uncertainty under $0.2\sim 70\text{mm}$ thickness range. The effective thermal conductivity of the silver-epoxy conductive adhesive was affected by temperature and an interfacial thermal contact resistance between the adhesive and its adherend.

[**Keywords:** isotropic conductive adhesives, cartridge type specimens, steady state, comparative-longitudinal heat flow method]

1. はじめに

導電性接着剤は耐熱性が高く接着強度も大きいことから耐熱温度が低い“はんだ”に代わる材料として注目され、その実用化が進められている。その主要な用途に半

導体チップや LED のダイアタッチ（素子と基板との接合）などがあり、導電性接着剤と対向する接合金属面との間に存在する界面熱抵抗を含む接着剤の熱伝導特性（有効熱伝導率）は重要な評価項目となっている。各種材料の熱伝導率測定法としてはこれまで米国標準の一方熱流定常比較法[1,2]が多く用いられており、この方法をもとにポーラス金属の熱伝導率測定法として標準化した日本工業規格[3]も発行されている。その一方で、導電性接着剤の熱伝導率測定に関しては統一された方法がなく、サプライヤーやユーザー間の測定結果の比較が困難な状況を抱えている。そこで、著者らは新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の「導電性接着剤実装技術に関する標準化調査事業」において、導電性接着剤の標準的な熱伝導率測定方法を検討し、実装状態を模擬した試験片を用いたカートリッジ方式一方向熱流定常比較法による熱伝導率測定装置を開発してきた[4-7]。本報では測定対象となる導電性接着剤の有効熱伝導率を $0.2\sim 50\text{W/m}\cdot\text{K}$ としたときの測定可能な試験材料厚さの範囲と有効熱伝

* 広島国際大学情報通信学科、〒737-0112 呉市広古新開 5-1-1. Dept. of Information and Communication Technology, Fac. of Engineering, Hiroshima International University, 5-1-1 Hirokoshingai, Kure, Hiroshima 737-0112. FAX: 0823-823-8992, E-mail: t-ogushi@it.hirokoku-u.ac.jp

** 三菱電機 (株) 先端技術総合研究所、〒661-8661 尼崎市塚口 本町 8-1-1, Advanced Tech.R&D Cent., MITSUBISHI ELECTRIC CORP., 8-1-1, Tsukaguchi-Honmachi, Amagasaki, 661-8661, FAX: 06-6497-7285, E-mail: Yanaura.Satoshi@db.MitsubishiElectric.co.jp

*** 藤倉化成 (株) R&D センター、〒340-0203 久喜市桜田 5-13-1, R&DCent., FUJIKURAKASEI Co., LTD, 13-1, Sakurada 5-chome, Kikushi, Saitama, 340-0203, E-mail: s-watanabe@fkkasei.co.jp

**** エスベック (株) 開発本部、〒651-1514 神戸市北区鹿子台南町 5-2-5, Development Headquarters, ESPEC CORP., 5-2-5, Minamimachi, Kanokodai, Kitaku, Kobe 651-1514, FAX: 078-951-0977, E-mail: ta-hirata@espec.co.jp

導率の測定精度についての検討結果および実際の導電性接着剤を用いた測定結果について報告する。

2. 測定装置および測定方法

2.1 測定装置と特徴

測定装置の構成を図 1 に示す。測定装置は上部から順にロードセル、断熱材、ヒーター、上ロッド、カートリッジ試験片、下ロッド、冷却ブロックが重ねられ、上部のネジにより荷重をかけた状態で固定されている。ヒーターと上ロッド間、カートリッジ試験片と上下ロッド間、下ロッドと冷却ブロック間は接触熱抵抗を低減するために熱伝導性グリースが塗布されている。

ここでは上下ロッドとして 1 辺が 10mm または 20mm、厚さ 30mm のアルミニウム合金 (A5052、熱伝導率 $140\text{W/m}\cdot\text{K}$) の四角柱を用い、温度測定のための熱電対挿入穴を厚さ方向に 5mm 間隔で 4 点設けた。ロッドとカートリッジブロックの平面粗さは $5\mu\text{m}$ 以下、平行度は $5\mu\text{m}$ 以下とした。温度センサには直径 0.5mm の K 型熱電対を使用した。装置本体は上部に設けたネジとスプリングにより一定荷重を試験片に与え、その荷重をロードセルにより測定できるようになっている。冷却ブロックは一定温度の冷却水により冷却されている。

Fig.1 Schematic of measuring apparatus of thermal conductivity of isotropic electrically conductive adhesives

カートリッジ試験片は図 2 に示すように試験材料（ここでは導電性接着剤）を熱伝導率が既知の金属性のカートリッジブロックで挟んだものからなっている。これによって図 3 に示すように接着面に介在する試験材料の熱抵抗 R_s および上下 2 か所に存在する試験材料と接触金属間の界面熱抵抗 R_i を含む有効熱伝導率の測定が可能となる。ここではカートリッジブロックとして厚さ 5mm の純銅 (C1100、熱伝導率 $398\text{W/m}\cdot\text{K}$) を用い、同一平面上を

3 点測定することにより、試験片温度差の測定精度を向上させている。

本装置はカートリッジ方式とすることにより、米国標準の従来の装置[1,2]やカートリッジ方式を採用している実施例[8]と比較して以下の特長をもつことになる。

(1)従来の装置[1,2]では上下ロッド間に直接試験材料を挿入し接着するため、試験材料交換時に上下ロッドも交換する必要があるが、本装置では上下ロッドの再利用が可能である。(2)従来の装置[8]では試験材料温度差を上下ロッド温度からの外挿により求めるため、その温度差にはカートリッジ試験片と上下ロッド間のグリースの熱抵抗による温度差を含むことになるが、本装置ではカートリッジブロックの温度を測定するため、試験材料温度差にカートリッジ試験片と上下ロッド間のグリースの熱抵抗による温度差を含まず、試験材料温度差の測定精度が向上する。(3)従来の装置[1,2]では上下ロッド周囲と試験片周囲の断熱が必要とされていたが、本装置では上下ロッドおよびカートリッジ試験片の周囲を断熱しないこととし、断熱せずに測定できる試験材料の熱伝導率や厚さの範囲を明確にした (3.3 項参照)。

Fig.2 Schematic diagram of cartridge specimen

Fig.3 Thermal resistance in a cartridge specimen

2.2 測定方法

冷却ブロックに一定温度の冷却水を流し、ヒーターに電力を入れた後カートリッジ試験片および上下ロッドの温度変動が 1 分当たり 0.2K 以下となったときを定常状態とし、図 4 に示す定常状態での温度分布から界面熱抵抗を含む試験材料の有効熱伝導率 k_{eff} を式(1)で算出する。

$$k_{\text{eff}} = \frac{q_s \cdot t_s}{\Delta T_s} \quad (1)$$

ここに、 q_s は試験片の通過熱流束、 t_s は試験材料の厚さ、 ΔT_s は試験材料温度差である。 q_s には上下ロッドの通過熱流束の算術平均値を用いる。ロッドの通過熱流束はロッドの熱伝導率 k_r と、ロッド温度 T_r のロッドの厚さ方向（ x 方向）の温度勾配から求める。また、試験材料温度差 ΔT_s は上下のカートリッジブロックの3点の平均温度差 ΔT_c から次式で与えられるカートリッジブロックの熱伝導による温度差 ΔT_b を差し引いて求める。

$$\Delta T_b = \frac{q_s t_b}{k_b} \quad (2)$$

ここに、 t_b 、 k_b はカートリッジブロックの厚さと熱伝導率である。

界面熱抵抗を含む試験材料の熱伝導特性として、単位面積あたりの全熱抵抗 R_t および熱コンダクタンス K_t を次式で算出する。

$$R_t = \frac{1}{K_t} = \frac{\Delta T_s}{q_s} = \frac{t_s}{k_{\text{eff}}} \quad (3)$$

図3に示したように全熱抵抗 R_t は次式で与えられる試験材料の熱抵抗 R_s と2つの界面熱抵抗 R_i の和($R_t = R_s + 2R_i$)となる。

$$R_s = \frac{t_s}{k_s} \quad (4)$$

ここに、 k_s は試験材料の熱伝導率である。全熱抵抗 R_t を試験材料厚さ t_s の関数としてプロットしたときの線形近似直線のY切片から2つの接着面の界面熱抵抗 R_i を算出でき、次式から界面熱抵抗を含まない試験材料の熱伝導率 k_s を求めることができる。

$$k_s = 1 / \left(\frac{dR_t}{dt_s} \right) \quad (5)$$

Fig.4 Temperature distribution in upper and lower rods and cartridge specimen

3. 測定精度の検討

3.1 装置から外気への熱損の影響

装置から外気への熱損が測定値に与える影響を調べるため、上下ロッドとカートリッジを一方向に通過する熱伝導による熱流と、上下ロッドおよびカートリッジ周囲から外気への放熱（熱損）を考慮した本装置に対する3次元熱伝導解析を行なった。解析においては装置の標準仕様としてロッド材料をアルミニウム合金(A5052, $k_r=140\text{W/m}\cdot\text{K}$)、カートリッジブロックを純銅(C1100, $k_b=398\text{W/m}\cdot\text{K}$)、カートリッジブロック厚さ t_b を5mmとし、ロッドの1辺長さ W_r を10~60mm、ロッド有効厚さ(=ロッド中の温度測定長さ) t_r を15~50mmの範囲で変化させた。また、使用するロッド材料は、ロッドの熱コンダクタンス $K_r (=k_r/t_r)$ と試験材料の熱コンダクタンス K_t がほぼ同程度の値となるように、ステンレス鋼(SUS304, $k_r=16\text{W/m}\cdot\text{K}$)、アルミニウム合金A5052、純銅C1100から選択した。ロッドおよびカートリッジ周囲と外気間の熱伝達率は自然対流熱伝達と放射熱伝達を考慮して $8\text{W/m}^2\cdot\text{K}$ とした。熱伝導解析の結果得られたロッドおよびカートリッジの温度分布を基に界面熱抵抗を含む試験材料の有効熱伝導率 k_{eff} を式(1)から算出し、解析に使用した試験材料の熱伝導率 k_s と比較することにより、熱損による測定誤差すなわち $(k_{\text{eff}} - k_s)/k_s$ が3%以下となる界面熱抵抗を含む試験材料の熱コンダクタンス K_t の下限值 $K_{t\text{min}}$ を求めたものを図5に示す。 K_t が小さいほど熱伝導率測定に対する熱損の影響は大きくなるが、熱損による測定

誤差が 3%以下と無視できる程度に小さくなるためには K_t は式(6)を満足する必要がある。ロッドの 1 辺長さ W_r が大きく、ロッド有効厚さ t_r が小さいほど本装置で測定できる K_t の下限値が小さくなり測定範囲が広がることになる。

$$K_t \geq 754 t_r^{1.41} W_r^{-1.5} \quad (6)$$

Fig.5 Lower limit of thermal conductance of specimen for thermal conductivity measurement

3.2 試験材料の熱伝導率と厚さの影響

有効熱伝導率 k_{eff} の相対合成標準不確かさ (Bタイプ) は次式で与えられる。

$$\frac{w_{k_{eff}}}{k_{eff}} = \left[\left(\frac{w_{q_s}}{q_s} \right)^2 + \left(\frac{w_{t_s}}{t_s} \right)^2 + \left(\frac{w_{\Delta T_s}}{\Delta T_s} \right)^2 \right]^{0.5} \quad (7)$$

ここに、 w_i は変数 i の不確かさである。ここでの計算においては、装置は 3.1 項で述べた標準仕様とし、ロッドの 1 辺長さ W_r を 20mm、ロッド有効厚さ t_r を 15mm とした。計算においては試験材料の有効熱伝導率を 0.1~50W/m·K、試験材料厚さを 0.05~100mm の範囲で変化させた。解析条件として、ヒーターにより試験材料温度差 ΔT_s およびロッド有効長さ間の温度差 ΔT_r をそれぞれ 5K 以上となるように加熱し、熱電対による温度測定不確かさを 0.5K、試験材料厚さの測定不確かさを 10 μ m、ロッド熱伝導率の相対不確かさを 5% とした。

試験材料の有効熱伝導率 k_{eff} および試験材料の熱コンダクタンス K_t による不確かさの変化を図 6 に示す。試験材

料厚さが薄く熱コンダクタンス K_t が大きくなるほど厚さの測定誤差の影響が大きくなり、有効熱伝導率 k_{eff} の測定不確かさは大きくなる。このことから試験材料の有効熱伝導率 k_{eff} の相対合成標準不確かさが 10% 以下であるためには、試験材料の熱コンダクタンス K_t に上限値があることが分かる。

Fig.6 Relative combined uncertainty of effective thermal conductivity of adhesives as a function of K_t

3.3 試験材料厚さに対する熱伝導率の測定可能な範囲

上記 3.1, 3.2 項での結果から、ロッド有効厚さ t_r が 15mm、ロッドの 1 辺長さ W_r が 20mm の場合の試験材料の有効熱伝導率 k_{eff} に対する本装置で測定可能な試験材料の熱コンダクタンス K_t の上限値 $K_{t,max}$ と下限値 $K_{t,min}$ をもとに、本装置で測定可能な試験材料の厚さと熱伝導率の範囲を求めたものを図 7 に示す。測定対象となる導電性接着剤の有効熱伝導率を 0.2~50W/m·K としたとき、有効熱伝導率測定の相対不確かさが 10% 以下となるのは試験材料厚さ t_s が 0.2~70mm の範囲であり、有効熱伝導率が高いほど測定できる試験材料厚さの範囲は大きいことが分かる。

Fig.7 Range of measurable thermal conductivity for specimen thickness

4. 標準試験片を用いた測定精度の検証

4.1 標準試験片の作製

本装置による測定精度を検証するため作製した標準試験片の外観を図8に示す。(a)のSUS304試験片の試験材料厚さは0.25, 1.5, 10mmの3種類とし、一边は10mmとした。表面処理として0.02mmの無電解Niめっきを施したSUS304を純銅(C1100)製のカートリッジブロックで挟み、真空炉内で加熱融着させた。(b)のアルミニウム合金(A5052)による試験片は厚さ方向における温度測定間の距離を3.2mmとした。これは、図8(b)に示すように有効熱伝導率 $50\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 、厚さ 0.5 mm で熱コンダクタンス K_t が $1\times 10^5\text{ W/m}^2\cdot\text{K}$ である試験材料を、厚さ 5 mm の銅ブロックで挟んだカートリッジ試験片における上下の温度測定部間の熱コンダクタンスが $4.4\times 10^4\text{ W/m}^2\cdot\text{K}$ に相当するものである。

Fig. 8 Outer view of standard specimens

4.2 測定精度の検証

SUS304を使用した厚さ3種類の標準試験片について、室温にて試験片温度 30°C 、試験材料温度差 5 K 以上、接触圧力 0.3 MPa の条件で測定を行い測定精度を検証した。図9に試験材料厚さ t_s に対する全熱抵抗 R_t の変化を示す。全熱抵抗と厚さには直線関係が得られ、近似直線の傾きから式(5)を用いて計算した界面熱抵抗を除く試験材料SUS304の熱伝導率 k_s は $16.5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ となり、文献値 $16\text{ W/m}\cdot\text{K}$ [9]の+3.1%であった。したがって、カートリッジ試験片を用いる本測定装置は、不確かさ 10% 以内の熱伝導率測定精度を満足していることが分かる。また、界面熱抵抗 R_i は $3.2\times 10^{-6}\text{ m}^2\cdot\text{K/W}$ であった。

同一仕様で作製したアルミニウム合金 A5052 による標準試験片3個を用いて、温度 85°C 、接触圧力 0.3 MPa の条件で測定した結果を図10に示す。標準試験片の熱伝導率測定値は平均で $142\text{ W/m}\cdot\text{K}$ となり、文献値 $140\text{ W/m}\cdot\text{K}$ [10]の $\pm 5\%$ 以内の誤差で一致している。この標準試験片は、不確かさ解析によって最も熱抵抗が小さく測定不確かさが最も大きい測定条件に相当している。この結果から、本測定法の不確かさが 10% 以内であることが検証された。

Fig.9 Change of total thermal resistance R_t for thickness t_s of specimen (SUS304)

Fig.10 Thermal conductivity of aluminum alloy (A5052) at 85°C

5. 導電性接着剤の測定

5.1 導電性接着材試験片の作製

銀-エポキシ系導電性接着剤 XA-5554 (藤倉化成 (株) 製、重量比: Ag フィラー約 78% 、エポキシ樹脂約 12%)を用いた試験片を以下のように作製した。20×20×5mmの銅のカートリッジブロックに導電性接着剤を塗布し、厚さ制御のために所定の径の高精度ガラスビーズからなるスパーサーを設置後、銅のカートリッジブロックで挟んで均一な荷重負荷を与え、熱処理炉を用いて 150°C で30分

間の熱硬化を行った。冷却後、マイクロメータで試験片の厚さを測定し試験材料厚さを算出した。ガラスピーズには直径 0.2, 0.3, 0.5mm の 3 種類のものを使用した。

5.2 有効熱伝導率の温度変化

導電性接着材試験片を用いて、有効熱伝導率の温度および接触圧力による変化を調べたものを図 11 に示す。測定に用いた銀-エポキシ系導電性接着剤 XA-5554 は、25~120℃の温度範囲において、温度上昇に伴う直線的な有効熱伝導率の減少が見られた。この温度依存性は樹脂やフィラー材の熱膨張が要因の一つと考えられ、内部の銀フィラー材の相互接触や、樹脂とフィラー材間、または界面におけるフィラー材や樹脂と被着材との接触が温度上昇とともに阻害されることが推定される。一方、有効熱伝導率の接触圧力による変化は小さいが、これはスペーサーによる効果と考えられる。

Fig.11 Change of effective thermal conductivity of silver-epoxy ICA(XA-5554) for temperature and pressure

5.3 素材の熱伝導率と界面熱抵抗

銀-エポキシ系導電性接着剤 XA-5554 を用いた測定により得られた全熱抵抗 R_t と厚さ t_s の関係を図 12 に示す。線形近似直線から式(5)を用いて得られた試験材料の熱伝導率 k_s は 4.5 W/m·K であった。また、界面熱抵抗 R_i は $1.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ となり、金属結合である SUS304 標準試験片の値 $3.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ と比較して一桁近く大きな値を示し無視できないことが分かる。このようにダイアタッチなどのように実装状態での接着剤は、界面熱抵抗により熱伝導特性が影響されることから、導電性接着剤を高発熱デバ

イスに適用する場合、界面熱抵抗を含む実装状態の熱伝導特性を評価することが適切な熱設計を行うために重要である。

Fig.12 Change of total thermal resistance R_t for thickness t_s of specimen of silver-epoxy ICA (XA-5554)

6. 結 論

実装状態を模擬し、金属板からなるカートリッジブロックどうしを接着した状態で導電性接着剤の熱伝導率を測定できるカートリッジ方式一方向熱流定常比較法について、測定対象となる導電性接着剤の有効熱伝導率を 0.2~50W/m·K としたときの測定可能な試験材料厚さの範囲と有効熱伝導率の測定精度について実験および数値計算を使用した誤差解析により検討した結果以下の点が明らかとなった。

- (1) 本測定装置においてロッド有効厚さが 15mm, ロッドの 1 辺長が 20mm の場合、有効熱伝導率測定の相対不確かさが 10%以下となるのは、試験材料厚さが 0.2~70mm の範囲であり、有効熱伝導率が大きいほど測定できる試験材料厚さの範囲は大きい。
- (2) 本測定装置を用いて試験材料の厚さを変化させて熱抵抗を測定することにより界面熱抵抗および試験材料の熱伝導率を測定することができる。
- (3) 銀-エポキシ系導電性接着剤 XA-5554 の有効熱伝導率を測定した結果、その有効熱伝導率は温度依存性をもち、界面熱抵抗は無視できない程度に大きい値であった。

NOMENCLATURE

K	: thermal conductance, W/m ² ·K
k	: thermal conductivity, W/m·K
q	: heat flux, W/m ²
R	: thermal resistance, m ² ·K/W

T : temperature, °C
 t : thickness, m
 ΔT : temperature difference, K
 Subscript
 (b) : cartridge block
 (r) : rod
 (s) : specimen
 (t) : total

参考文献

- [1] ASTM D547-01; “Standard Test Method for Thermal Transmission Properties of Thin Thermally Conductive Solid Electrical Insulation Materials” (2001) ASTM International
- [2] ASTM E1225-04; “Standard Test Method for Thermal Conductivity of Solids by Means of the Guarded Comparative Longitudinal Heat Flow Technique” (2004) ASTM International
- [3] JIS H 7903, 「ポーラス金属の熱伝導率試験方法」, (2008) 日本規格協会,
- [4] 平田拓哉, 田中浩和, 柳浦聡, 渡邊聡, 大串哲朗; 「導電性接着剤の実装状態を考慮した熱伝導測定技術」, MES2009 講演論文集, (2009) 221-224.
- [5] 平田拓哉, 田中浩和, 柳浦聡, 渡邊聡, 大串哲朗; 「導電性接着剤の熱伝導測定装置の開発, 一カートリッジ方式一方向熱流定常比較法一」, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2009 講演論文集, (2009) 169-170.
- [6] 大串哲朗, 田中浩和, 平田拓哉, 柳浦聡, 渡邊聡; 「導電性接着剤の熱伝導測定装置の開発, 一カートリッジ方式一方向熱流定常比較法の不確かさ解析一」, 第 47 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, J131, (2010) 287-288.
- [7] 平田拓哉, 田中浩和, 柳浦聡, 渡邊聡, 大串哲朗; 「導電性接着剤の熱伝導測定装置の開発, 一カートリッジ方式一方向熱流定常比較法の各種測定条件の検討一」, 第 47 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, J132, (2010) 289-290.
- [8] P.Teertstra; “Thermal conductivity and contact resistance measurements for adhesives”, Proc. of IPACK 2007 (2007)
- [9] 「伝熱工学資料」, 日本機械学会編, 改訂第 4 版 (1986) 318, 日本機械学会, 丸善株式会社
- [10] 「アルミニウムハンドブック」, 日本アルミニウム協会編, 第 7 版, (2007) 32 日本アルミニウム協会, (株) 昭栄社

[Received April. 4, 2013, Accepted Aug. 19, 2013]