

## 論文内容要旨（和文）

氏 名 植 松 英 之 ㊞

論 文 題 目 多成分材料のひずみ硬化性及び軟化性のスイッチングに関する研究

情報を書き込むICチップを積層化することでフラッシュメモリやメモリーカードなどの記憶容量が飛躍的に増加している。ICチップを積層化するために、多成分の材料がブレンドされた接着フィルムが用いられている。接着過程における衝撃緩和性を考慮してアクリル系高分子、耐熱性が高いエポキシ、熱膨張係数を低くするための $\text{SiO}_2$ 粒子から接着フィルムは構成されている。より多くのICチップを積層するため、ボンディングワイヤが接着層に埋め込まれる積層方法が一般的になりつつある。ボンディングワイヤは数十 $\mu\text{m}$ 程度の径であり、接着層に埋め込まれる際、ワイヤ周辺の流動が拘束されるので充填不良となりボイドが形成されてしまう。そのため、接着フィルムのレオロジーを制御する必要があるが、系統的にレオロジー研究が検討されておらず、経験的に材料設計されているのが現状である。本論文では、特に成形プロセスに必要なレオロジーである伸長粘度の非線形性制御に着目し、ICチップの積層化における成形加工性を制御するための材料設計指針を提案することが目的である。

第1章では、本研究の背景と必要性を述べ、成形性を制御するために必要なレオロジー特性である伸長粘度の非線形性に関して説明した。同時に従来報告されているレオロジー研究と比較したときの本研究の新規性を明確にした。

第2章、3章では2成分材料におけるレオロジー特性を検討した。エポキシをアクリル系高分子へ 0～70vol%添加した材料において伸長粘度を検討した結果、低分子量体であるエポキシでアクリル系高分子を希釈することによって効果的にひずみ硬化性が制御できることが明らかになった。 $\text{SiO}_2$ の添加がアクリル高分子の伸長粘度へ与える影響を検討した結果、 $\text{SiO}_2$ を 30vol%以上添加することによって、効果的にひずみ軟化性が制御できることが明らかになった。

第4章では、3成分材料から構成される接着フィルムの伸長粘度を検討した。アクリル系高分子へエポキシを70vol%添加した材料をマトリクスとして用いた。 $\text{SiO}_2$ の添加量が30vol%以下では強いひずみ硬化性を示すが、40vol%では強いひずみ軟化性を示すことが明らかになった。更に、 $\text{SiO}_2$ の添加量が35vol%の材料では、低温では強いひずみ硬化性を示すが、高温では強いひずみ軟化性を示すことが判明した。これらの結果より、ICチップの積層化に対する最適な材料設計が明らかになった。


第5章では、2成分または3成分材料の伸長粘度の非線形性発現のメカニズムを検討した。アクリル系高分子へエポキシを 70vol%添加した材料へ  $\text{SiO}_2$  を 0~40vol%添加した材料の線形粘弾性を検討した。その結果、 $\text{SiO}_2$  の添加量や温度によって材料がゾル-ゲル転移を示すことが明らかになった。従って、ゾル状態ではマトリックスの伸長粘度と同様の非線形性を示し、ネットワーク構造が形成されるゲル状態では、変形と共に構造が破壊されるため、ひずみ軟化性を示すことが明らかになった。

第6章では、sol-gel 転移するメカニズムを検討した。アクリル系高分子に対して相溶もしくは非相溶するエポキシをそれぞれ添加したマトリックスへ  $\text{SiO}_2$  を添加すると、ゾル-ゲル転移が制御できることが判明した。相溶状態であるマトリックスに  $\text{SiO}_2$  を添加するとゾル状態となる。一方、エポキシが相分離した状態へ  $\text{SiO}_2$  を添加すると、エポキシが  $\text{SiO}_2$  を橋渡しすることによってネットワーク構造が形成される事が判明した。更に、アクリル高分子とエポキシが相溶している状態に非相溶成分を少量添加することによって、温度に依存してゾル-ゲル転移することが明らかになった。

#### 第7章「総括」

IC チップの積層化プロセスにおいて最適な材料設計とプロセス設計が可能となった。ゾル-ゲル転移により伸長粘度の非線形性を極端にスイッチングできることが明らかになった。ゾル-ゲル転移は、高分子と低分子の相溶性や親和性によって制御できることが判明した。

## 論文内容要旨 (英文)

氏 名 植 松 英 之 

論 文 題 目 Study of the Switching of Strain Hardening and Softening  
in Multi-components System

The integrated circuit (IC) chips are three-dimensionally integrated on a wafer using an adhesive film in order to increase the capacity of memory without a change of size. Our adhesive film consists of three components; acrylic polymer, epoxy resin and  $\text{SiO}_2$  particles. In the process of stacking IC chip, it has been empirically found that the void is formed behind wire. It is very important to investigate the rheological behavior of multi-components system for improvement of the processability, though the rheological behavior of this complex system has never been investigated. The purpose of this study is to investigate the unique flow behavior of multi-components material for improvement of processability. The guideline of material design for rheology control in multi-components system is also proposed.

The background and motivation of this study in industrial and academic point of view are described in chapter 1. Importance of control of nonlinear elongational viscosity is especially explained.

The rheological behavior of two components material is investigated in chapter 2 and 3. It is effectively possible to control the strain hardening by diluting acrylic polymer with epoxy oligomer. In contrast, it is also possible to control the strain softening of acrylic polymer by adding of  $\text{SiO}_2$ .

The rheological behavior of multi-components material (acrylic polymer / epoxy /  $\text{SiO}_2$ ) is discussed in chapter 4. The matrix polymer (acrylic polymer/epoxy) contained 70 vol% of epoxy. It is possible to control the strain hardening and softening with the volume fraction of  $\text{SiO}_2$  and temperature.

The control of nonlinearity of elongational viscosity in three components systems is discussed in chapter 5. It is found that the nonlinearity of elongational viscosity could be controlled by sol-gel transition.

The origin for development of sol-gel transition in our system is discussed in chapter 6. It is indicated that the sol-gel transition could be controlled by miscibility or affinity for components in multi-components system.

Chapter 7 concludes that the optimum material could be designed for processability in stacking of IC-chip. It is also found the sol-gel transition is useful for control of strain hardening and softening. It is also indicated that sol-gel transition could be controlled by the slight change of miscibility or affinity in components.