

博士論文

導電性接着剤内部の金属界面における  
電気抵抗および熱抵抗に関する研究

The Study of Electric Resistance and Thermal Resistance  
on Metal Interface in Electrically Conductive Adhesive

March 2018

荒尾 修

Arao Osamu

# 概要

導電性接着剤とは、樹脂のバインダの中に微細な金属フィラーを分散させ、電氣的、あるいは熱的な伝導性を付与した接着剤である。接着剤内部に分散させた金属フィラー同士が接触することでパーコレーションネットワークを形成し、電気伝導や熱伝導が行われる。しかし、接着剤内部の伝導メカニズムに関する研究はあまり進んでおらず、信頼性の検証がしきれていない。これは、パーコレーションネットワークを形成する3次元的な伝導経路を正確に観察する手法が無かったことに起因する。

これに対し本研究では、高精度な研磨と観察を繰り返すことで3次元観察を行うFIB-SEMにより、接着剤内部のパーコレーションネットワークを初めて可視化した。更にこの観察結果から材料の特性を考察した。

電気伝導に関しては、接触点数および接触面積からフィラー接触部の平均的な電気抵抗を算出した。更に、電気抵抗に対する考察の妥当性検証のため、算出した電気抵抗から実際のサンプルでの電気抵抗を予測した。この予測値の精度は約9%であった。

また熱伝導に関しては、界面抵抗モデルを導入した有限要素法による熱伝導解析を行い、フィラー界面の平均的な熱抵抗を算出した。更に、熱抵抗に対する考察の妥当性検証のため、算出した界面熱抵抗から実際のサンプルの熱抵抗を予測した。この予測値の精度は約9%であった。

## キーワード

導電性接着剤, パーコレーション, FIB-SEM, 界面抵抗, 3次元解析, 熱伝導, 電気伝導,

# 目次

## 第1章 緒論 ..... 1

- 1.1 研究背景
  - 1.1.1 電子技術概論
  - 1.1.2 電子技術の動向
  - 1.1.3 電子実装技術の動向
  - 1.1.4 電子実装技術の課題
  - 1.1.5 導電性接着剤の研究背景
- 1.2 研究目的
- 1.3 研究対象
- 1.4 研究サンプル
- 1.5 本論文の構成
- 1.6 記号の定義

[参考文献]

## 第2章 フィラー分散性に関する研究 ..... 28

- 2.1 目的
- 2.2 実験方法
- 2.3 実験結果
  - 2.3.1 FIB 研磨による連続 SEM
  - 2.3.2 3次元化
- 2.4 考察
  - 2.4.1 パーコレーションネットワークの可視化
  - 2.4.2 Ag フィラー分散状態の解析モデル化

[参考文献]

## 第3章 電気伝導に関する研究 ..... 47

- 3.1 目的
- 3.2 実験方法
- 3.3 実験結果
- 3.4 考察
  - 3.4.1 概要
  - 3.4.2 接触点数による考察
  - 3.4.3 接触面積による考察
- 3.5 電気抵抗の予測
  - 3.5.1 考え方
  - 3.5.2 Sample B の電気抵抗予測
  - 3.5.3 電気抵抗予測の妥当性検証

[参考文献]

## 第4章 熱伝導に関する研究 ..... 72

- 4.1 目的
- 4.2 実験方法
- 4.3 実験結果
- 4.4 考察
  - 4.4.1 電気伝導と熱伝導の関係
  - 4.4.2 界面を考慮しない熱伝導解析
  - 4.4.3 界面を考慮した熱伝導解析
- 4.5 熱抵抗の予測
  - 4.5.1 考え方
  - 4.5.2 Sample B の金属フィラー分散状態の把握
  - 4.5.3 形状係数  $\alpha$  の決定
  - 4.5.4 Sample B の諸物性
  - 4.5.5 Sample B の熱抵抗予測と妥当性検証

[参考文献]

關係發表論文

謝辭

# 第 1 章

## 緒論

# 1. 緒論

## 1.1 研究背景

本研究の対象は電子技術の1分野である電子実装技術において、材料として用いられている導電性接着剤である。本章では緒論として、電子技術全体の概論を示した上で、電子実装分野の位置付けと現状を解説し、導電性接着剤の既存の研究と課題について示す。

### 1.1.1 電子技術概論

電子技術とは、外部からの操作や信号などの入力から、目的となる機能を出力するための、機器内で電子の挙動を制御する技術といえる。携帯電話を例とすると、キーによる数字の入力という操作に対し、機器内の電池から取り出した電子信号を表示用の電子信号に変換し、出力として表示部に数字を表示させるという制御である。また、電気自動車を例とすると、アクセルを踏むという操作に対し、自動車内のバッテリーから取り出した直流電流の電子信号を、昇圧し更に交流電流の電子信号に変換し、出力としてタイヤに繋がるモーターを回転させるという制御である。そのため、電子挙動の制御が技術の基幹となり、電子をどのように輸送し、変換し、出力し、貯蓄し、保護するかといった技術開発がなされている。

この電子技術において、電子機器を構成する部品は、一般に以下の3つに分類される。

1つ目は、真空管のように、電子の入力部と出力部を持ち、制御により特定の電子信号を出力する部品で、能動部品と定義される。電子機器の基幹となる電子挙動を制御する役割を担っており、この能動部品の開発が今日の電子技術の

隆盛に繋がっているといえる。真空管のほかに、トランジスタや IC がこれに分類される。

2つ目は、電流の消費・放出・貯蓄を行う機能を有する部品で、受動部品と定義される。能動部品の作動を補助する役割を持っており、能動部品の技術開発に伴うような受動部品の開発が進められてきた。電気を消費する抵抗、電気を放出するコイル、電気を貯蓄するコンデンサがこれに分類される。

3つ目は、能動部品や受動部品の接続や固定の役割を担う部品のことで、機構部品と定義される。スイッチやコネクタ、基板などがこれに分類される。

これらの部品の通電や絶縁、放熱などを行いながら接続や固定を行い、電子機器として成立させることが電子実装という技術分野である。電子実装では、はんだやワイヤボンディング、本研究の対象材料である導電性接着剤などによる電気的な接続、放熱材などによる熱的な接続、樹脂封止などの絶縁や固定など、多岐に渡る技術が研究されている。

## 1.1.2 電子技術の動向

電子技術は、1883年のエジソン効果の観測により熱電子放出の研究が始まり発展してきた[1]。エジソン効果とは、図1に示すように、正電位にある金属板を白熱電球の中へ設置すると、加熱されたフィラメントからプレートへ真空を通して電子が放出される現象のことある。これは、人為的な操作によって電子を放出するという制御が任意にできることを示しており、電子技術研究の起点となった。

このエジソン効果は、加熱により金属内の電子の熱エネルギーが大きくなり、仕事関数の閾値を超え、金属表面から放出されることで電流が流れることが、オーエン・リチャードソンによって1910年に示されている。

このエジソン効果について、ジョン・フレミングが研究を行い、整流器として機能する二極真空管を発明した。真空管とは、内部を真空にし、電極を封入した管のことであり、陰極から陽極に流れる電子流を制御することで、増幅、整



流，発振などの電子の制御を行うことができる能動部品である．このジョン・フレミングの発明が最初の真空管である[2]．

フレミングによって発明された真空管は，1960年頃まで能動部品の主流であった．真空管の外観写真を図2に示す．真空管は主に軍需で開発されていた．この中で一般民生用に使用された真空管はごくわずかで，ラジオや初期のテレビなどに使用されていた．これらの真空管は，熱エネルギーを与えて仕事関数の閾値を超えさせるという作動原理上，起動後に稼働させるにはヒーターによる加熱が必要なため稼働までに時間がかかる，またヒーターを備えるという構造上発熱が激しく電子機器が非常に高温になるという課題があった．

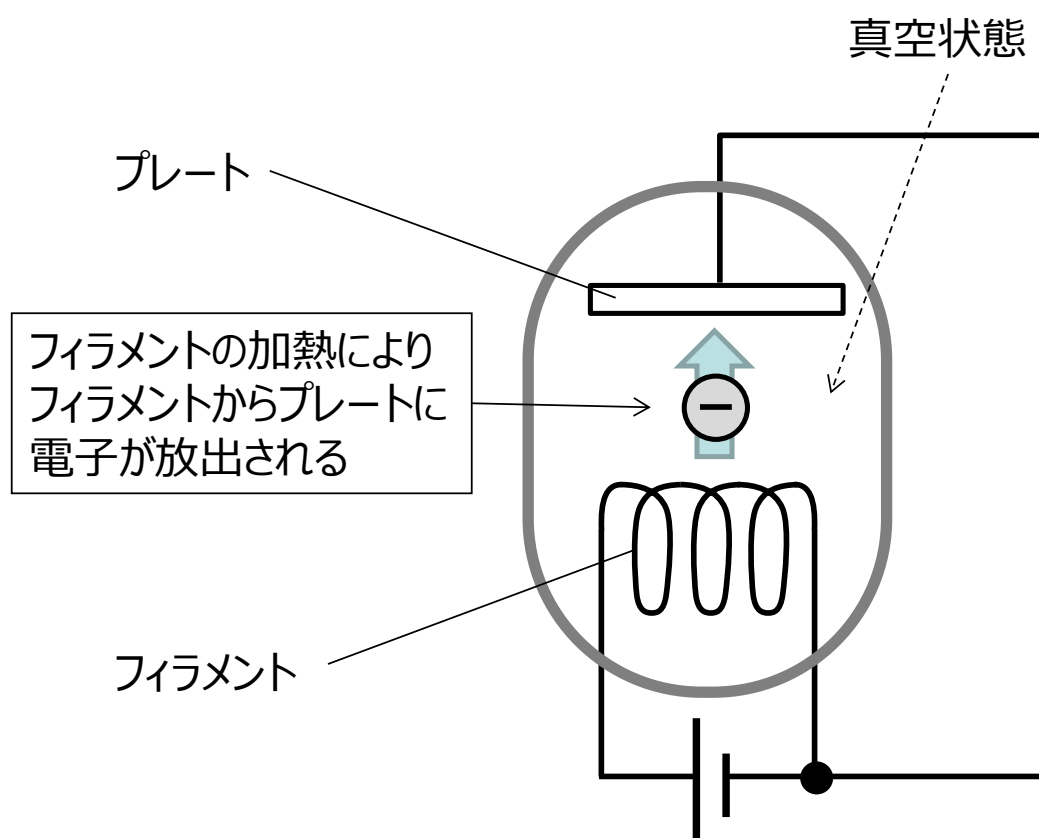


図1 エジソン効果

Figure 1 Edison effect.



图 2 真空管写真

Figure 2 Photo of vaccum tube.

真空管に替わり、1955年から1980年ごろまで主流となったのはトランジスタである。トランジスタの外観写真を図3に示す。真空管に比べ、低電圧、低消費電力であったトランジスタは、雑音が多い、高周波特性が極めて悪いなどの問題点を徐々に克服し、トランジスタラジオ、テープレコーダ、VTRなど多くの製品で真空管に置き換わっていった。真空管に比べ、起動後にすぐ稼働し、発熱はほとんどなかった。

1960年頃から使われ始め、現在も能動素子の主流となっているのはIC(Integrated Circuit: 集積回路)である。ICの外観写真を図4に示す。トランジスタの登場により電子技術は大きく発展したが、トランジスタと受動部品を接続する実装がボトムネックとなり、更なる小型化が困難となった。この課題に対し、ICは、能動部品であるトランジスタや受動部品であるダイオード、抵抗、コンデンサなどを1つの半導体チップの上の上に集積し、金属薄膜で配線して電子回路を作ることで、大幅な小型化を実現した。つまり、それまで数種類の部品を基板上で接続する構造で得ていた機能を、1チップで得ることを可能にする、大きな技術革新であった。ICは、今日でも機能や計算規模などを拡大しながら発展しており[2]、このICの集積回路を高密度化していくことが、電子技術の発展につながっている。

また、適用対象分野に着目すると、元々軍需で採用されていた電子機器は、主にテレビやラジオなどの民生品で使われるようになった。また、ワイヤや油圧など機械的な制御がされていた自動車分野で電子化が進むなど、その適用先を拡大させている。

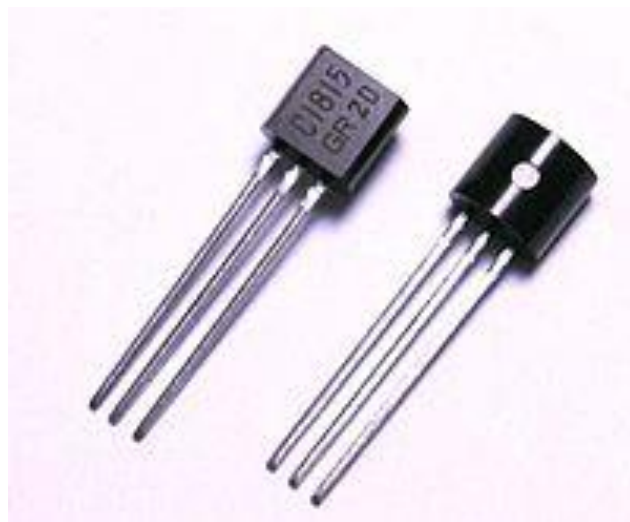


図3 トランジスタ写真

Figure 3 Photo of transistor.

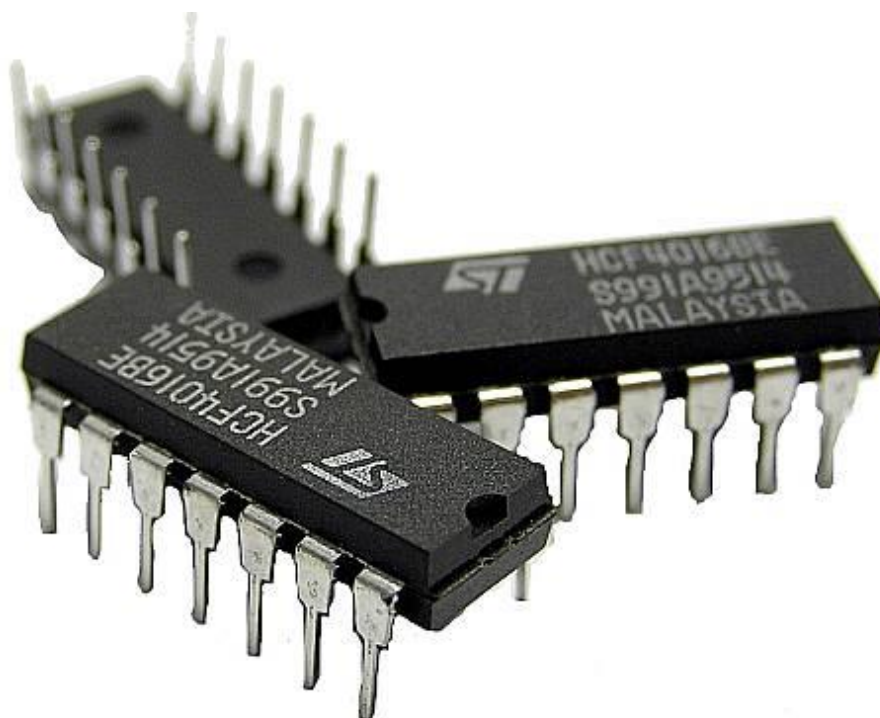


図4 IC 写真

Figure 4 Photo of IC.

### 1.1.3 電子実装技術の動向

電子実装技術は、電子技術の1分野であり、電子接続を支える技術として発展してきた。能動部品が真空管であった電子技術の黎明期には、頑丈な筐体に部品を固定し、銅細線で配線する単純な実装方式が取られており、技術としては単純な分野であった。

しかし、能動部品としてトランジスタが普及してくると、実装に対するニーズが大きく変化した。低電力での動作が可能な小型のトランジスタの普及により、受動部品も低電力で作動するすることができるため、部品の小型化が可能となった。これにより、小型化した能動部品と受動部品をコンパクトに実装できる技術が求められるようになった。このニーズに対し、配線を行ったプリント基板上に貫通孔（スルーホール）を空け、自動搭載機により部品の足をスルーホールに通すことで電気的な接続と固定を行うスルーホール技術が開発された。図5にスルーホール技術の概要を示している。電子部品の小型化と並行して、実装技術の高密度化が電子機器の小型化に繋がることから、実装技術に対する研究が盛んになっていった。

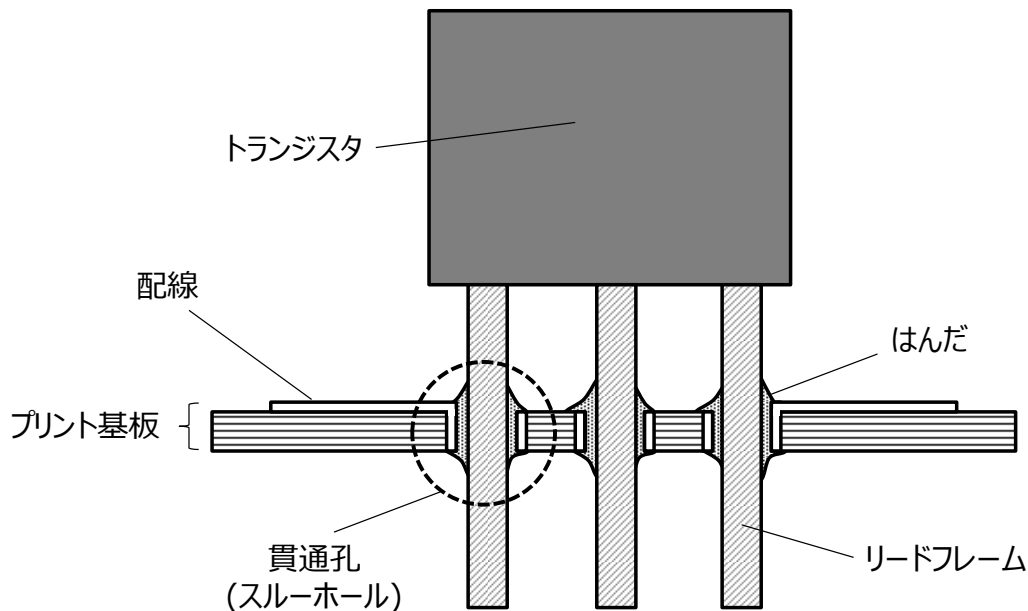


図5 スルーホール技術

Figure 5 Technology of plated through hole.

更に能動部品として IC が導入されてくると、実装技術にもより高密度化が求められてきた。IC はチップ内に回路が形成されており、機能が向上するほどより複雑な制御を行うため、IC チップに入力、あるいは出力を行うための電気経路がより多く必要となる。スルーホール技術はプリント基板上に物理的な貫通孔を空ける必要があるため、端子間の間隔に限界があった。そこで、プリント基板の表面にクリームはんだを印刷し、そこに電子部品をマウントしてリフローを行う表面実装技術が開発された。図 6 に表面実装技術の概要を示している。はんだのリフロー工程では、はんだ溶融時に表面自由エネルギーを最小に抑えようとする表面張力により、部品などが多少ずれてマウントされてもリフロー時に基板のパターン上の正確な位置に移動するセルフアライメントが働くため、生産時のロバスト性に優れることもあり、あらゆる電子機器に採用されていった。

これらの IC 部品は、IC の基板上的回路保護や部品の信頼性の観点から、樹脂などでモールドされた構造をとっている。この構造は、IC チップからパッケージのリードにワイヤボンディングなどで接続し、更にプリント基板に実装するという 2 段の接続であり、その分実装面積が大きくなる。これに対し、近年 IC チップを直接プリント基板にワイヤボンディングなど 1 段で接続し、実装面積を更に小さくした COB(Chip On Board)とよばれる技術が、特に小型・高機能分野で開発されている。

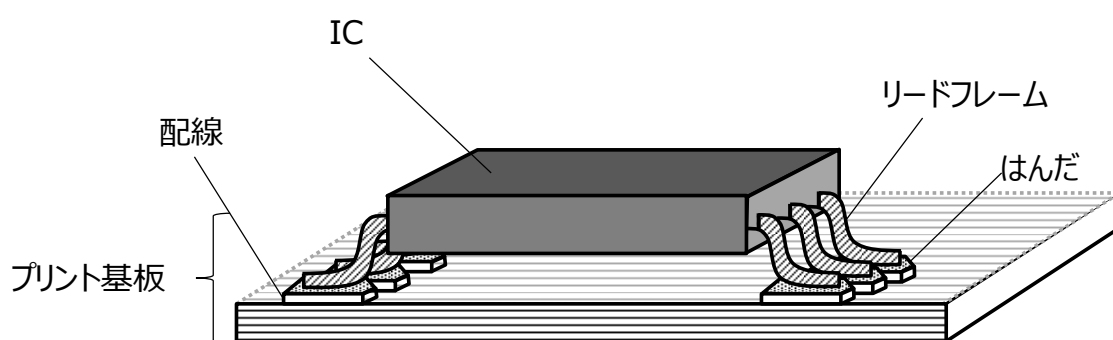


図 6 表面実装技術

Figure 6 Technology of surface mounting.

#### 1.1.4 電子実装技術の課題

このように、電子実装技術は高度化、多様化が益々進んでいる。ICチップから電氣的接続を行うワイヤボンディングや、基板に実装するはんだが電氣的接続を伴う実装技術の主流であることは間違いないが、積層化される構造に対し数回のリフローが必要となる、自動車分野での適用で更なる高信頼性が求められるなど、多様化されるニーズに対し、様々な実装技術開発が求められている。

前述したように、実装技術は歴史的に高密度化が求められており、現在でも最も大きなニーズの1つである。この高密度化に対し、技術開発、信頼性検証、検査、熱設計、材料開発など様々な開発が行われている。また、近年では、環境対応や EMC(Electromagnetic Compatibility：電磁両立性)設計など、新たな課題に対応する研究も盛んになっている[3]-[11]。

はんだ関係の実装技術に関しては、現在も様々な課題に対する研究が行われている。はんだ自体の信頼性検証設計に関係する研究としては、近年は特に数値解析による寿命予測に関する研究が多数なされている。はんだの寿命解析は、白鳥らにより98年に Sb-Pb の共晶はんだの試験片に対する解析の有効性が示された[3],[4]。また、西村らにより、実験で取得した材料物性と数値解析の関係が検証されている[5]。近年では、同じく西村らによりクラック進展を解析によって検討する研究[6]など、解析の信頼性を更に向上させる研究が多く研究者によって進められている。

また、高密度化により応力が集中し、はんだ寿命が短くなる、車載の温度や振動で厳しい環境で使用されることが多くなるなど、信頼性解析技術をツールとして、より厳しい環境で電子部品を使用するための技術開発がなされてきた。この技術開発として、例えばはんだ自体の熱寿命を向上させる材料開発[9]や、はんだの周囲を樹脂で覆うことによってはんだへの応力集中を低減させるポッティングや電子部品の下の隙間に樹脂を浸透させるアンダーフィルなどの技術開発がなされている。筆者らは、自動車のより高温に曝される領域で製品寿命を満足させるため、浸透速度の速いアンダーフィル材料を開発した[10]。またこれ以外にも、はんだへの熱応力を低減させる低応力基板などの開発が行われてきている。

更に、近年の高密度化と適用分野の拡大により、熱設計が重要な開発課題となってきた。ICは真空管とは比較にならないほど発熱は小さいが、高密度化によりチップの自己発熱による熱密度も大きくなること、自動車分野や重電分野など使用温度環境が高い分野にも適用されるようになることなどから、部品の熱暴走や熱応力による部品の故障などが発生してしまう。そのため、特に高集積、高性能、小型など高密度な製品開発や、自動車分野などの厳しい環境に対応する製品開発においては、熱設計が製品信頼性の重要な要素となる。例えば高集積化の例として、理化学研究所の開発したスーパーコンピュータの京では、ICなどの能動部品を冷却するために冷却水を効率的に供給する専用冷却ユニットを開発している[11]。また、機器全体での放熱設計の研究や、部材界面での放熱の研究、高放熱性を有する材料の開発など、多くの開発がなされている。

一方、実装に対する多様化するニーズに対応するため、はんだやワイヤボンディング以外の技術開発や材料開発も進められている。大きなニーズの1つである高密度化の実現のため、多層構造などで部品を段階的に組付ける場合、はんだが再熔融し接続が保てないという問題がある。そのため、高温でも熔融しない材料や工法が求められる。これに対し、熱硬化性の樹脂を電氣的接続に使うことで高温で熔融しない技術の研究がされている。この技術には、電極間の部材形状を工夫し、直接電極同士を接触させ樹脂で固定させる NCF(Non Conductive Film)やNCP(Non Conductive Paste)、樹脂内に金属粒子を少量配合し、接触をとる ACF(Anisotropic Conductive Film:異方性導電フィルム)やACP(Anisotropic Conductive Paste)、樹脂内に多量の金属フィラーを配合し、電氣的・熱的な経路を形成する導電性接着剤などの技術開発が行われている。本論文は、この導電性接着剤を研究対象としている。

### 1.1.5 導電性接着剤の研究背景

近年、筆者の研究領域である自動車搭載部品においても、電子部品の採用が急速に進んでいる。また、その機能面においても、電子製品の小型・高集積化



が加速している（図 7, 文献[12]より引用）. このとき, 実装という観点から電子部品と基板の電氣的な接続に着目すると, 小型・高集積化に伴い, はんだ接続部の接続面積も極端に小さくなり, はんだ接続部への応力集中が増大するため接続強度が低下する. その結果, はんだクラックが進行し, 電氣的, あるいは熱的な伝導が損なわれてしまう. これに対し, 導電接着剤は図 8 に示すように, 樹脂接着剤中の無数の金属フィラーを接触により繋げることで伝導や放熱を行うため樹脂特有の低弾性を有し, この応力集中を抑制できるなど, 今後の適用拡大への期待が大きい[12]-[18].

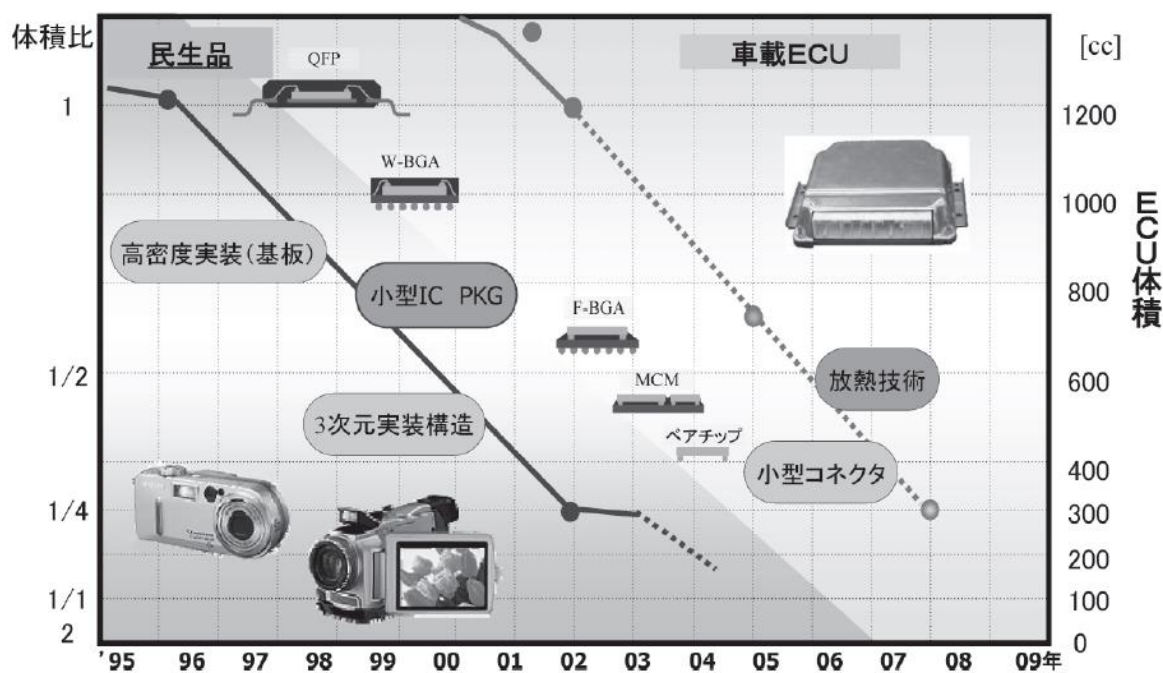
はんだと導電性接着剤の特徴の比較を, 表 1 に示す. また, はんだと比較した工程フローを図 9 に示す. 導電性接着剤は, はんだと比較して, 一般的に数十分の硬化時間が必要というデメリットはあるが, 150°C程度の低温で硬化が可能, フラックスを用いる必要がないなどの工程設計を行う上でのメリットがある. また, はんだは高温で熔融するため, 高温はんだ等の限定的な条件以外では後工程でのリフローができないが, 導電性接着剤はバインダーに熱硬化樹脂を用いた場合, 高温でも固体を維持するため, 後工程のリフローが容易である.

このように, 導電性接着剤は適用のメリットは大きい, 電気伝導および熱伝導のメカニズムは解明されていない部分が多い. 図 10 は導電性接着剤において, フィラーを分散するための混練方法を変えた時のフィラー量と電気伝導性, 及び熱伝導性の関係を示した図である (文献[13]より引用). 例えば, 線膨張係数などの一般的な特性はフィラーの配合量によってほぼ特性値が決定されるが, 電気伝導性や熱伝導性は, 同等の配合量においても混合方法によって特性が大きく異なることが示されている. この混合方法による特性の差異は, 混合条件により, 微視的にはフィラーと樹脂の界面状態に違いが出ることや, 巨視的にはフィラーの分散性に違いが出るのが要因と考えられる.

これらの特性の違いに対し, 井上らは微視的な界面状態に着目した電氣的な伝導に対する研究を行い, フィラーの界面間でトンネル効果などによる電子の移動を明らかにしている. 更に, 表面処理の方法などによるトンネル効果の影響について言及している[17].

また, 導電性接着剤全体の巨視的な検討では, これらの伝導は, 金属フィラーのパーコレーションネットワーク形成により電子や熱が輸送される現象として説明できる. 図 11 は論文[14]に示されているパーコレーションネットワーク形成の考え方である. (a)は, パーコレーションネットワーク形成の概念を示

しており、樹脂中に分散されたフィラーは少量であればネットワークを形成せず導電性が発現しないが、一定量を超えると接着剤中にパーコレーションネットワークが形成され、急速に導電性が発現する。(b)の実験結果でもこの概念が確認されている。このようにパーコレーションネットワークにより導電がなされていることは明らかにされているが、実際のネットワークを観察する技術は無く、ネットワークの特性が完全に解明されているとは言い難い。この特性の解明には、ネットワークの可視化と、ネットワークを形成する金属フィラー接触部の影響把握が必要であり、これら伝導メカニズムの解明が強く求められている。



出典：神谷,2014 (文献[12])

図7 電子製品の小型化の推移

Figure 7 Miniaturization trend of electric products.

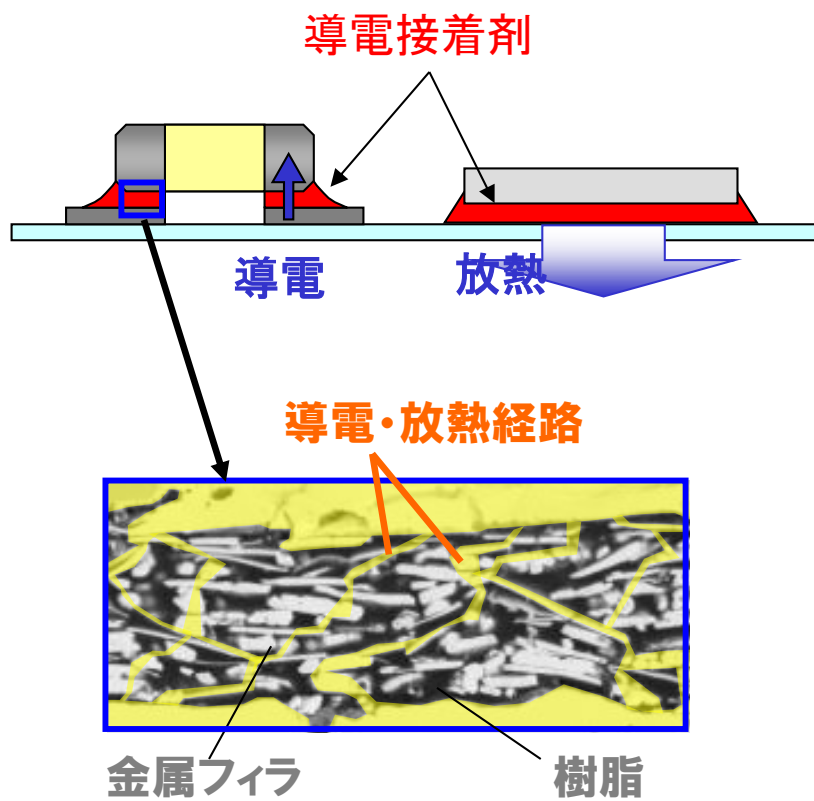


図 8 導電性接着剤の概要図

Figure 8 Schematic of electrically conductive adhesive.

表 1 はんだと導電接着剤の特徴の比較

Table 1 Comparison between the feature of solder and electrically conductive adhesive.

		はんだ		導電接着剤	
断面					
環境面	VOC放出	フラックス	△	VOCフリー	○
	鉛含有	鉛フリー化要	△	鉛フリー	○
	CO <sub>2</sub> 排出	高温必要	△	低温硬化可能	○
材料特性	導電性	1mΩ 以下	○	数十～数万mΩ	△
	放熱性	40W/m <sup>2</sup> ・°C	○	1W/m <sup>2</sup> ・°C	△
	発生応力	高硬度	△	柔軟性有り	○
工程	工程温度	220°C	△	150°C	○
	時間	5分	○	数十分程度	△
	後工程リフロー	通常不可	△	可能	○
	汚染	フラックス	△	フラックス無し	○
	セルフアライメント	有り	○	無し	△

○: 他方と比較して有利  
△: 他方と比較して不利

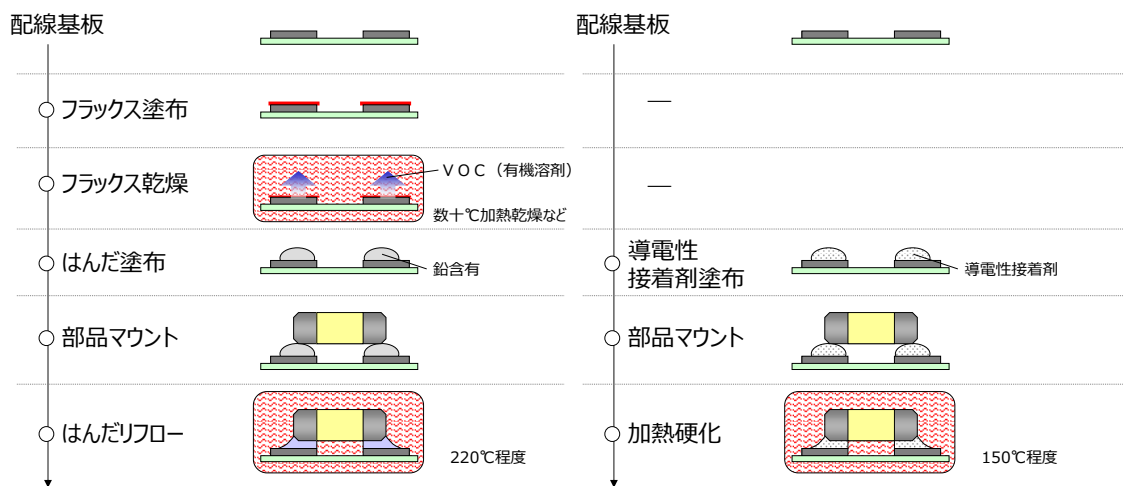
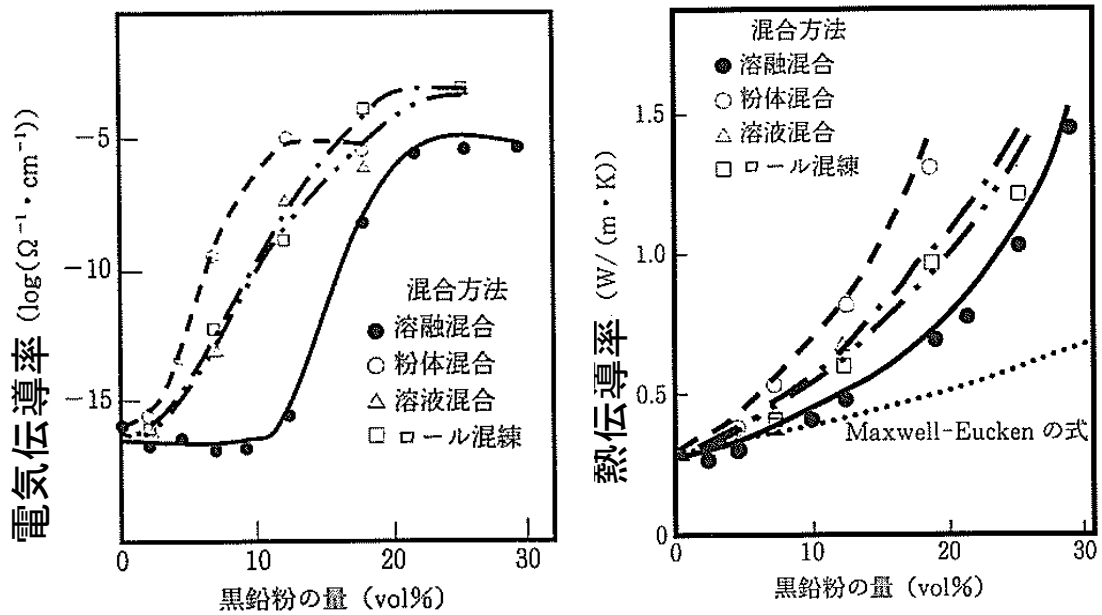


図9 はんだと導電性接着剤の工程フローの比較

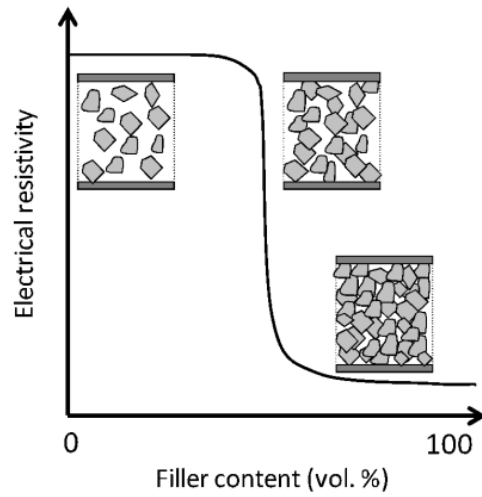
Figure 9 Comparison between the process flow of solder and electrically conductive adhesive.



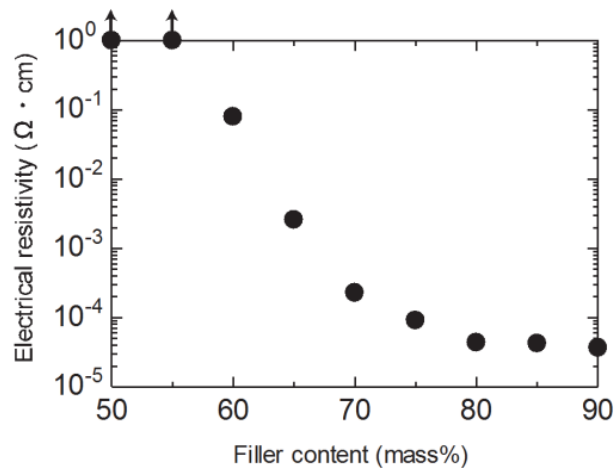
出典：上利,2007 (文献[13])

図 10 混合方法と電気伝導率, および熱伝導率の関係

Figure 10 Relationship among mixing method, electric conductivity and thermal conductivity.



(a) Schematic illustration



(b) Measured results

出典：西川,2012 (文献[14])

図 11 パーコレーションネットワーク形成に関する既存研究

Figure 11 A research of percolation network formation.

## 1.2 研究目的

研究背景を踏まえ、導電性接着剤の技術の向上に繋げるべく、本研究の目的を下記に設定した。

最適なフィラー形状選定や表面処理手法の検討、混練手法の最適化など、より高機能な導電性接着剤の技術開発を実現するため、パーコレーションネットワークを可視化し、金属フィラー界面の電気および熱に対する影響を抵抗として定量化することを本研究の目的とする。

## 1.3 研究対象

本研究の対象材料は、樹脂内部に金属フィラーを配合した複合材料である導電性接着剤とした。また、対象とする特性は、電気伝導性と熱伝導性とした。

## 1.4 研究サンプル

本研究のサンプルは、バインダーとなる樹脂にエポキシ樹脂を、フィラーに Ag を含有した Sample A , Sample B の 2 種類を考慮した。Sample A は特性を把握するための解析用サンプル、Sample B は結果の妥当性を検証するための検証用サンプルである。

Sample A と Sample B は、材料のコンパウンドメーカーから購入した。エポキシ樹脂は、ビスフェノール A 型エポキシを主な主剤とし、フェノール系硬化剤を配合した。また、充填剤として、Sample A, Sample B 共に有機酸による表面処理を施した高純度（純度 99.99wt%以上）の電子材料向けの鱗片状 Ag フィラーをほぼ同量ブレンドした。このフィラーを、プラネタリーミキサーを用い



て、材料の硬化温度以下に制御しながら混練した。Ag の表面処理として、同じシランカップリング処理を行っており、本検討では Ag と樹脂の界面状態は同じとみなして検討を行った。両サンプルの大きな違いは、Sample B のフィラーの方が小径であることである。

Sample A の硬化後の SEM による断面写真を図 12 に、Sample B の硬化後の SEM による断面写真を図 13 に示した。Sample B のフィラーが小径であることが確認できる。

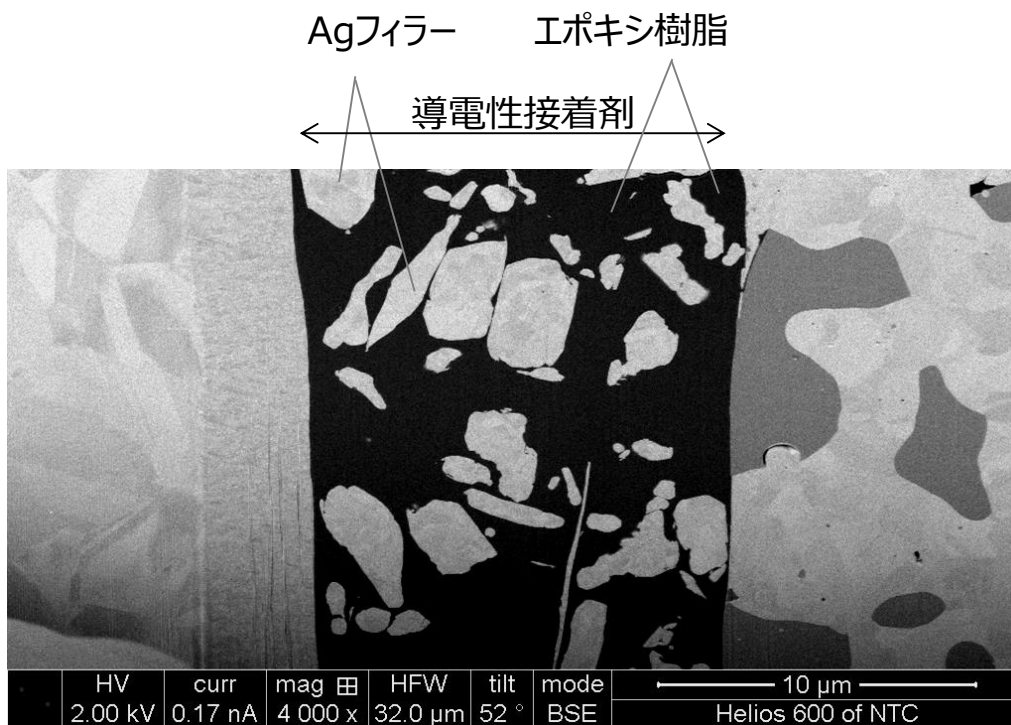


図 12 Sample A の断面写真  
 Figure 12 Cross section photo of Sample A.

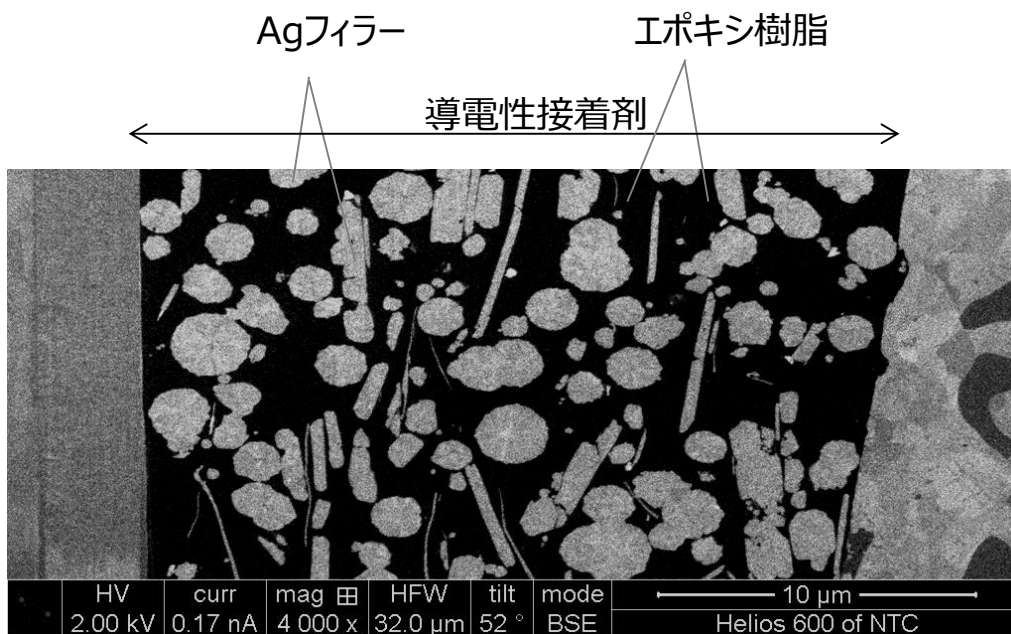


図 13 Sample B の断面写真  
 Figure 13 Cross section photo of Sample B.

## 1.5 本論文の構成

本論文の全体構成について示す．先ず，電気伝導と熱伝導両方に関係する，導電性接着剤の内部に配合している金属フィラーの分散状態を把握した（2章）．次にこの結果を利用し，電気伝導性（3章）と熱伝導（4章）それぞれに対してフィラー接触部の影響を定量化した．この値を用い，**Sample B** の特性値をそれぞれ予測した．そして，予測値と実測値を比較し，予測値の妥当性を検証した．

## 1.6 記号の定義

本論文に用いた記号の一覧を表 2，3 に示す．本論文では電気と熱を，抵抗に着眼して取り扱う．電気と熱の抵抗を明確に区別するため，電気に関しては，添え字に  $e$  を付与し，また熱に関しては添え字に  $h$  を付与する体系で定義している．

表 2 電気伝導に関する研究(3章)における記号の定義

Table 2 Definition of the symbol in this study about the electric conduction (chapter 3).

記号	単位	定義
$R_e$	mΩ	電気抵抗
$R_{eVol}$	mΩ·mm	導電性接着剤バルクの体積電気抵抗率
$R_{eInt}$	mΩ·mm <sup>2</sup>	導電性接着剤と電極間の界面電気抵抗率
$R_{eAg-Ag}$	mΩ/点	Ag-Ag間の1点当たりの平均的な接触電気抵抗
$R_{eNi-Ag}$	mΩ/点	Ni-Ag間の1点当たりの平均的な接触電気抵抗
$R_{eLine}$	mΩ·mm/本	電気経路の単位長さに対する電気抵抗率
$N_{Ni-Ag}$	点·mm <sup>-2</sup>	Ni電極界面におけるAgフィラとの接触点数
$N_L$	点·mm <sup>-2</sup> /本	接着剤内部の電気経路における平均的なフィラ接触数
$N_S$	点·mm <sup>-2</sup>	接着剤内部の断面における平均経路数
$R_{eA}$	mΩ·mm <sup>2</sup>	電気のNi電極における界面抵抗率
$w$	mm	界面抵抗と体積抵抗の分離評価における接着剤の幅
$t$	mm	界面抵抗と体積抵抗の分離評価における接着剤の厚さ
$m$	mm	界面抵抗と体積抵抗の分離評価における電極の幅
$a$	mm	界面抵抗と体積抵抗の分離評価における電極間の距離
$\rho$	mΩ·mm	電気伝導の数値解析によける界面要素の体積抵抗率

表 3 熱伝導性解析(4章)における記号の定義

Table 3 Definition of the symbol in this study about the thermal conduction (chapter 4).

記号	単位	定義
$R_h$	$W^{-1} \cdot K$	熱抵抗
$R_{hVol}$	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	導電性接着剤バルクの体積熱抵抗率
$R_{hAg-Ag}$	$W^{-1} \cdot K/点$	Ag-Ag間の1点当たりの平均的な接触熱抵抗
$R_{hf}$	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	充填材の熱抵抗
$R_{hm}$	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	樹脂の熱抵抗
$R_h'$	$W^{-1} \cdot m^2 \cdot K$	単位面積あたりの熱抵抗
$\lambda_{Vol}$	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	導電性接着剤バルクの体積熱伝導率
$L$	$W \cdot \Omega \cdot K^{-2}$	ローレンツ数
$T$	K	絶対温度
$\sigma$	$\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$	電気伝導率
$K$	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	熱伝導率
$Q$	W	熱移動量
$A$	$mm^2$	表面要素の面積
$D$	nm	表面要素の厚さ
$p$	-	導電性接着剤中のフィラーの体積分率
$C_1$	-	高分子マトリックスの高次構造に関する特性係数
$C_2$	-	フィラー界面や形状に関係した特性係数
$n_h$	個	熱流束が通過するフィラーと樹脂の平均界面数
$r$	mm	フィラ短径
$a$	-	フィラー形状を表す無次元係数

## 第1章の参考文献

- [1] 高尾利治, 藤井寛一, “理工学における 効果 (エフェクト) の事典,” 東京電機大学出版局, 第1版, p.48, 1972
- [2] “電子部品技術史 1945-1998: 日本のエレクトロニクスを隆盛へと先導した電子部品発展のあゆみ,” 日本電子機械工業会 電子部品部, 1999
- [3] 于 強, 白鳥 正樹, “BGA はんだ接合部の形状を考慮した疲労寿命評価,” エレクトロニクス実装学会誌 Vol.1 No.4 pp.278-283, 1998
- [4] 于 強, 白鳥 正樹, “マイクロはんだ接合部の強度信頼性評価と信頼性設計に関する諸問題,” 日本機械学会 RC144 エレクトロニックパッケージングにおけるマイクロ接合の信頼性評価に関する研究分科会報告書, pp.77-154, 1998
- [5] 西村, 茂木, 酒井, 川瀬, 作山, 今村, 森宗, “鉛フリーQFP パッケージの設計パラメータ評価に関する研究,” エレクトロニクス実装学会, エレクトロニクス実装学会誌 Vol.4, Vol.5, pp.416-420, 2001
- [6] 寺崎健, 谷江尚史 “き裂進展モデルに基づくはんだ疲労寿命予測方法,” 日本機械学会論文集, A 編 Vol.74, No.740, pp.574-582, 2008
- [7] 五十嵐和広 “はんだ接合部の疲労寿命推定方法および装置,” 特許第4179248号
- [8] 向井, 門田, 廣畑, 高橋, 川上, 高橋邦 “はんだ接合部の損傷パシミュレーション,” 日本機械学会論文集.A 編 Vol.72, No.721, pp.1364-1369, 2006

- [9] 西浦正孝 他, “Sn-3.5mass% Ag-8.0mass% In-0.5mass%Bi 及び Sn-3.0mass% Ag-0.5mass% Cu 鉛フリーはんだの熱疲労信頼性,” 13<sup>th</sup> Symposium on Microjoining and Assembly Technology in Electronics, pp.221-226, 2007
- [10] 荒尾修, 青木孝司, 新帯亮, ”高浸透アンダーフィル材料開発,” 自動車技術会 学術講演会, 121-07 号, pp13-18, 2007
- [11] 塚本 俊之, 草野 義博, 平井 慶太, Jie WEI, “「京」にみる冷却技術,” 伝熱 J. HTSJ, Vol. 52, No. 220, 2013
- [12] A. Kamiya, “High reliability of automotive electronics products and embedded device technologies,” Journal of Japan Institute of Electronics Packaging, Vol.17, No.5, pp353-363, 2014, doi: 10.5104/jiep.16.127
- [13] Y. Agari, “Development of highly thermal conductive polymer composites,” Journal of Adhesion Society of Japan, Vol.43, No.8, pp 325-330, 2007
- [14] H. Nishikawa“Relation between metal filler and electrical conductivity for electrically conductive adhesive,” Journal of Smart Processing, Vol.1, No.3, pp138-142, May. 2012
- [15] S.S. Kim, K.S. Kim, K. Lee, S. Kim, K. Suganuma, H. Tanaka, ”Electrical resistance and microstructural changes of silver epoxy isotropic conductive adhesive joints under high humidity and heat,”J. Electron. Mater, Vol.40, No.2, pp.232-238, Feb.2011
- [16] Y. Kariya, H. Yamaguchi, M. Itako, N. Mizumura, K. Sasaki, ” Mechanical behavior of sintered nano-sized Ag particles,”Journal of Smart Processing, Vol.2, No.4, pp160-165, July.2013, doi: 10.7791/jspmee.2.160

- [17] M. Inoue, "Electrical and thermal conductivity of electrically conductive adhesives," *Journal of the Adhesion Society of Japan*, Vol.47, No.1, pp.23-34, Jan.2011
- [18] K. Kurosu, N. Kawamoto, Y. Murakami, D. Shindo, "TEM study of local conduction mechanisms in model specimens of Ag-based conductive adhesive," *IEEE Trans. Electron. Packag. Manufact.*, vol.2, No.2, pp.294-299, Feb.2012, doi:10.1109/TCPMT.2011.2176734



## 第 2 章

# ファイラー分散性に関する研究

## 2. フィラー分散性に関する研究

### 2.1 目的

電気や熱の伝導は、接着剤中に分散した金属フィラーの接触によりパーコレーションネットワークが形成されることで行われる[1],[2]ため、メカニズムの解明にはまず金属フィラーの分散状態の把握、すなわち接着剤中の電氣的な導電経路の解析が必要である。従来、金属フィラーの分散性は、導電性接着剤の研磨により断面を出し、SEM（走査電子顕微鏡：Scanning Electric Microscope）で観察を行うことにより把握されている。この手法で観察した断面図を図 14 に示しており、1 断面のフィラー分散状態を、2 次元で観察することができる。しかし、実際の導電性接着剤の内部では、フィラーが 3 次元で分散しているため、従来手法ではパーコレーションネットワークの解析が困難である[2]-[6]。そこで、3 次元的なフィラーの分散状態を把握し、パーコレーションネットワークの解析を実施することを本章の目的とした。

### 2.2 実験方法

フィラー分散状態の観察法として、図 15 に示す FIB-SEM による 3 次元観察を行った。これは、一定厚み間隔で連続的に FIB（集束イオンビーム装置：Focused Ion Beam）による電子研磨を行い、各面を SEM により観察し、これらの SEM 像を再構成することにより、3 次元観察を実現する技術である[7]。なお本観察は、FEI 社の Helios 600 NanoLab を用いた。

従来この FIB-SEM は主として数  $\mu\text{m}$  程度の微細な部分の観察に用いられているが、今回導電接着剤に適用するにあたり、装置上の最大の視野広さである厚み方向約  $20\mu\text{m}$  を  $0.1\mu\text{m}$  毎に観察することで実施した。また、 $2.0\text{mm}\times$

1.2mm サイズのチップコンデンサを導電性接着剤により実装した構造を実装サンプルと想定し，観察を行った．

サンプル構成の概念図を図 16 に示す．本サンプルは，配線基板上にセラミック製のチップコンデンサを導電性接着剤により実装している．配線基板には，Cu 配線の表面に Ni めっきが施されたものを用いた．また，チップコンデンサは，Cu 電極表面に Ag めっきが施されたものを用いた．導電接着剤の抵抗は，導電性接着剤内部の体積抵抗 (Volume resistance) と，電極との界面抵抗 (Interface resistance) の 2 種類に分けられる．更に界面抵抗は，上下 2 種類の電極それぞれの界面抵抗，すなわちチップコンデンサ電極との界面抵抗と，配線基板電極との界面抵抗の 2 種類に分けられる．

また，導電接着剤内部は，バインダーであるエポキシ樹脂中に Ag フィラーが配合され，主にこの Ag フィラーの接触によって伝導が行われている．このフィラーの接触抵抗の組合せは 2 種類ある．1 つ目は，コンデンサ電極と Ag フィラー，あるいはフィラー同士の接触抵抗である，Ag-Ag 接触抵抗 (Ag-Ag contact resistance) であり，2 つ目は，配線基板と Ag フィラーの接触抵抗である Ni-Ag 接触抵抗 (Ni-Ag Contact resistance) である．

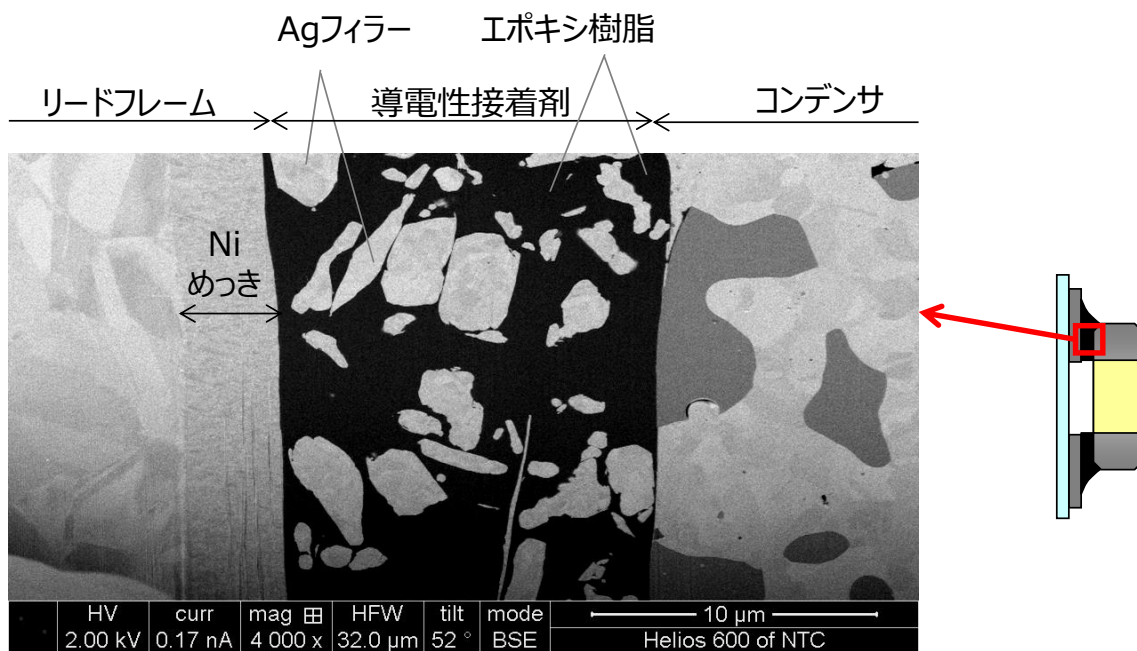


図 14 SEM による通常の 2 次元断面観察  
 Figure 14 Usual 2D cross-section view by SEM.

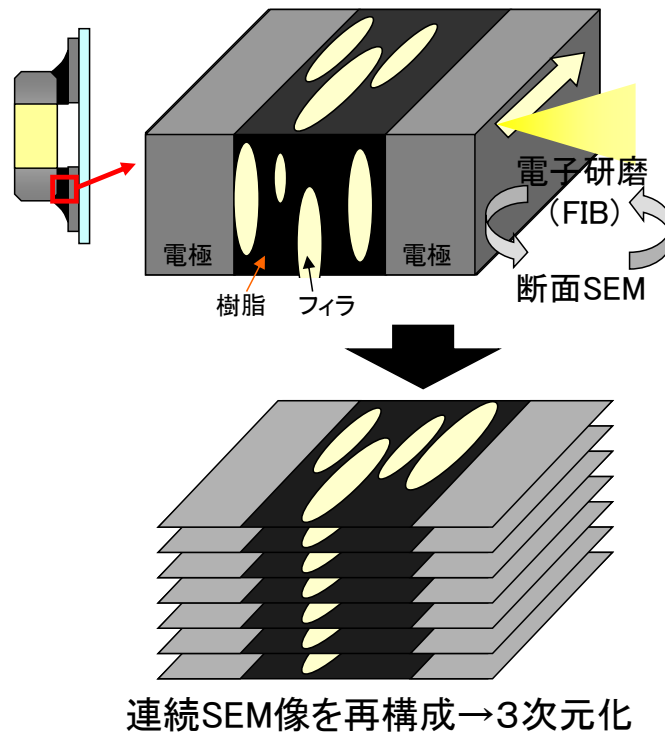


図 15 FIB-SEM の概要図

Figure 15 Conception diagram of FIB-SEM.

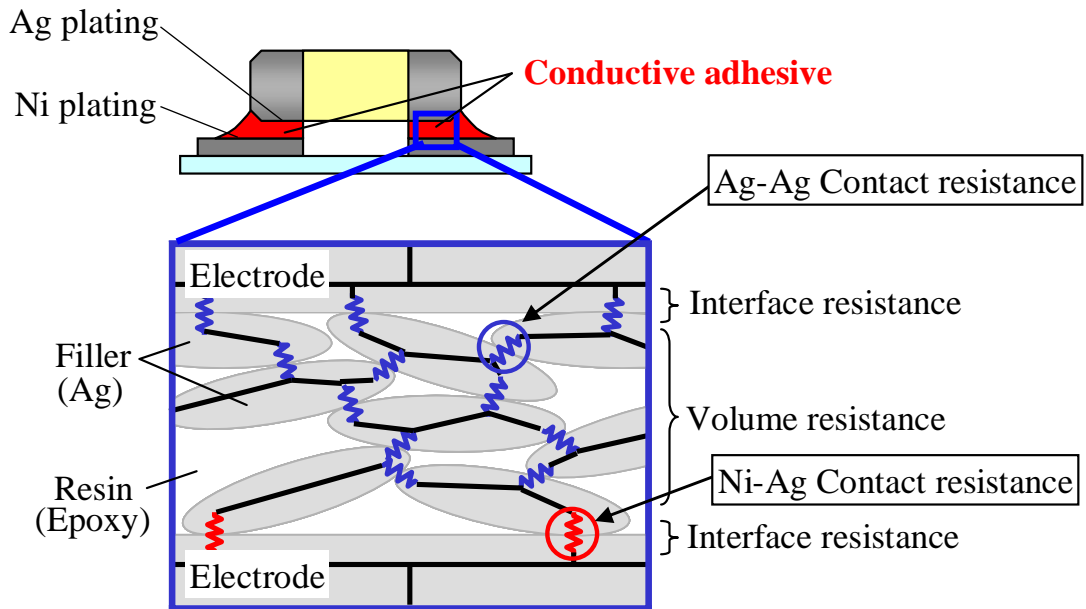


図 16 実装サンプルの構造

Figure 16 Construction of the mounting sample.

## 2.3 実験結果

### 2.3.1 FIB 研磨による連続 SEM

Sample A の実装サンプルに対し、装置内にて FIB 研磨と SEM 観察を連続的に実施した。各断面の観察結果を図 17 に示す。図中の黒色部分が樹脂、それ以外の白、もしくは灰色の部分が金属である。左右両側に電極があり、図の左側が配線基板の Ni 電極、右側がチップコンデンサの Ag 電極となる。また、樹脂中に分散している白色部分が Ag フィラーである。

### 2.3.2 3次元化

連続した SEM 像を金属部分と樹脂部分で 2 値化し、フィラーと電極に分けて 3 次元に再構成した。再構成には、ソフトウェアとして ImageJ を用いた。この再構成したデータを Mercury Computer Systems 社のソフトウェアである Amira を用い 3 次元像とし表示した画像を図 18 に示した。この画像は、観察断面から奥行方向には  $0.1\ \mu\text{m}$  の間隔で FIB 研磨されており、観察も  $0.1\ \mu\text{m}$  毎に実施している。導電樹脂内部のフィラーはブロック状であるため、 $0.1\ \mu\text{m}$  の観察面間の間隔に対しフィラー占有率が 50%を超えている、すなわちフィラーの間隔が  $0.05\ \mu\text{m}$  以下であれば、平均的には奥行方向にもフィラーが存在し、接触しているとみなした。この考え方に基づき、樹脂中のフィラー分散状態を 3 次元に再構成している。図 18 より樹脂中の大量のフィラー充填が確認できる。本評価サンプルではフィラーの電極と平行方向の配向や形状の不均一性が確認でき、異方性を考慮すべきである。本研究では、電極間を繋ぐ方向の伝導性を検討した。

以上のようにフィラーの分散状態を観察できたが、これではまだパーコレーションネットワークは可視化できない。

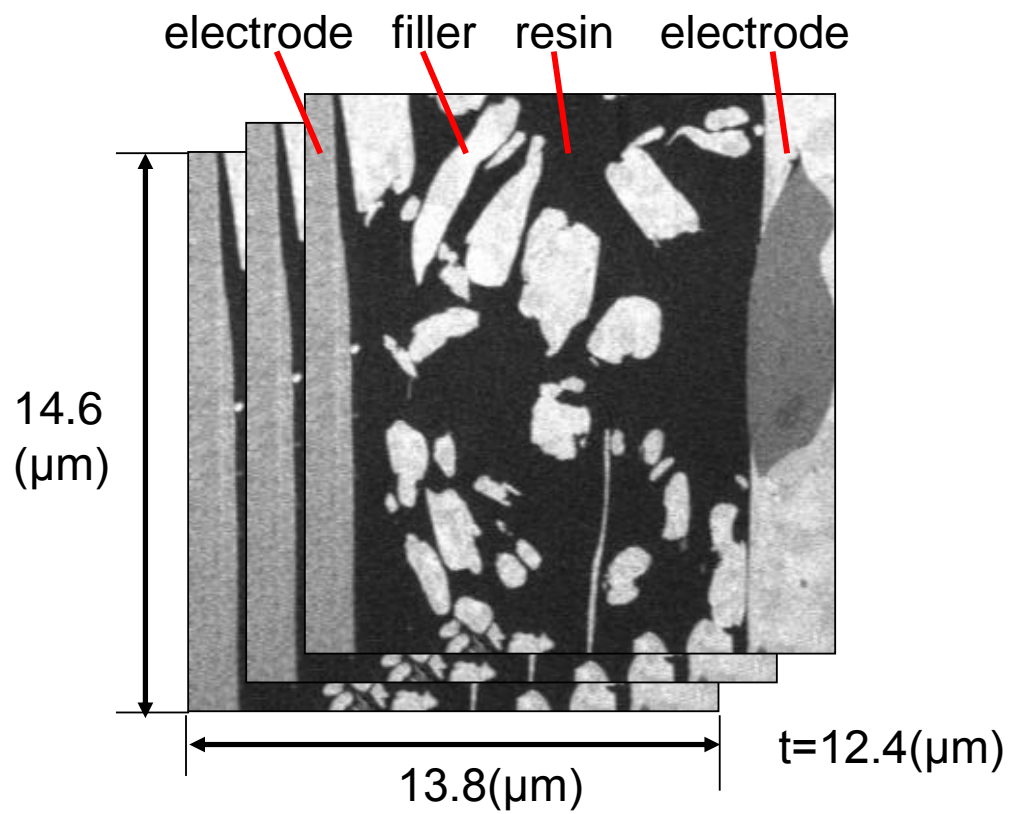


図 17 SEM による導電性接着剤の連続写真

Figure 17 Consecutive microphotograph in electrically conductive adhesive by SEM.

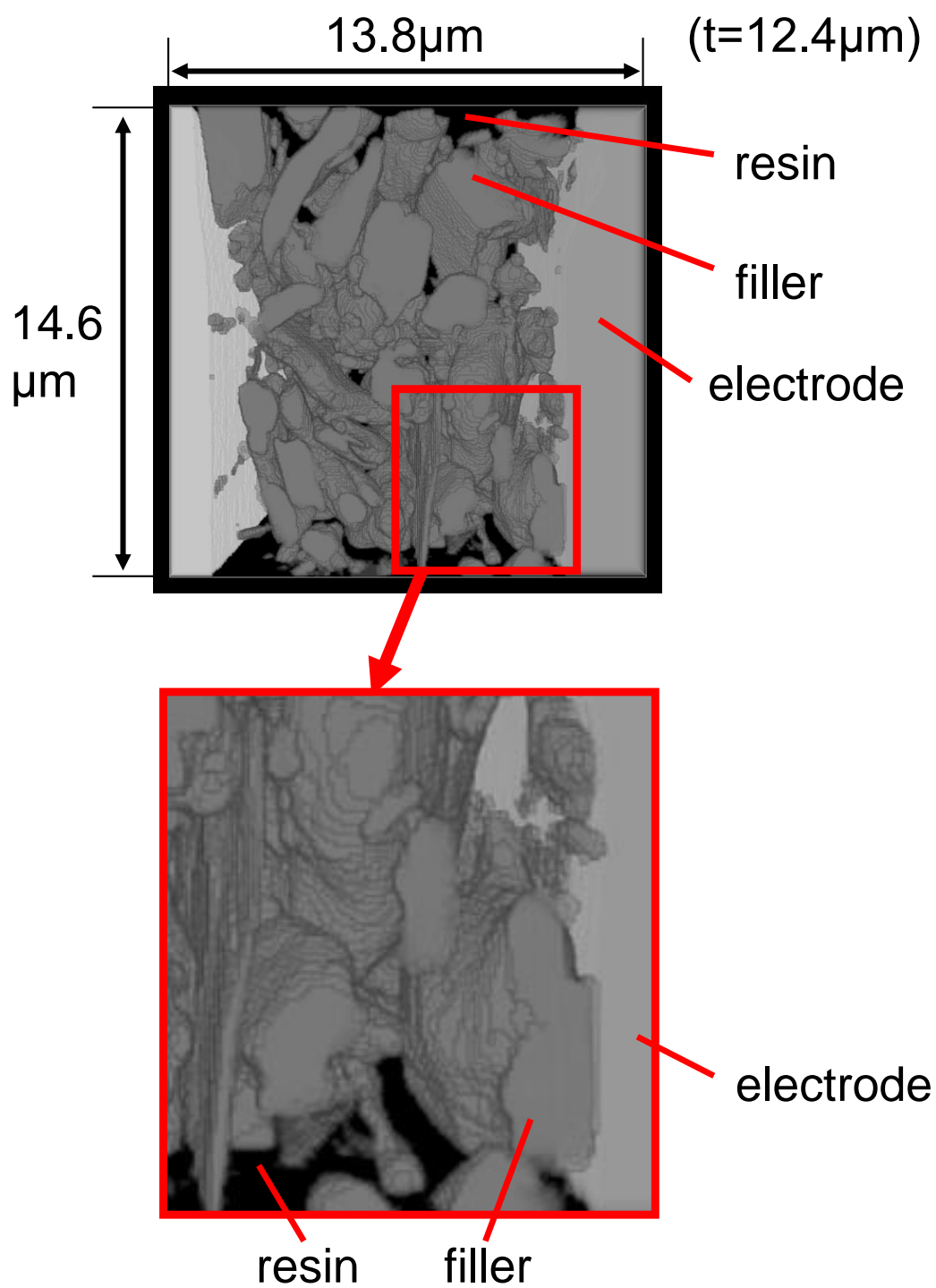


図 18 導電性接着剤内部の 3 次元でのフィラー分散状態  
 Figure 18 3D dispersion of filler in electrically conductive adhesive.



## 2.4 考察

### 2.4.1 パーコレーションネットワークの可視化

パーコレーションネットワークを可視化するため、画像解析ソフト(Amira, Mercury Computer Systems)を用いて細線化処理を行った。細線化処理とは3次元で再構成したフィラーの分散状態からそれぞれのフィラーを外側から削り、細く残した図形の中心線を経路として求める処理である。この細線化した線は、導電性接着剤内部において、接触しているフィラー間を繋いだ線であり、電気や熱の伝導が行われる主な経路、つまり導電性接着剤のパーコレーションネットワークを示す。

図 19 に本検討での細線化処理の概念図を示す。まず、図 19 の **initial** で示すように、観察領域をブロック化し、フィラーを白ブロック、樹脂を黒ブロックとして2値化する。次に、図 19 の **processing** で示すように、この白ブロックの中で、黒と隣り合う1つの白ブロックに着目する。この白ブロックが、(1)のように別の黒ブロックと縦横斜めいづれかで隣り合う場合、黒に変換すると白の連続性が途切れると判断し、白ブロックを維持する。着目した白ブロックが、(2)のように別の黒ブロックと隣り合わない場合、黒に変換しても白の連続性は保たれると判断し、黒ブロックへ変換する。この場合、例えば図 19 のように同一フィラーの複数点で接触するような場合も、導通経路の本数は維持される。

細線化処理とは、図 19 の **after processing** で示すように、全ての白ブロックが(1)の状態になるまで全方位から順に実施し、白ブロックの連続性、即ち導通経路を維持したまま1ブロック単位の細線として残す処置である。

図 18 の **Sample A** の観察結果に対し、この細線化処理を施した結果を図 20 に示す。図中の血管のような網目状の線がパーコレーションネットワークである。この処理により、パーコレーションネットワークが可視化でき、接触点数の計測が可能となった。

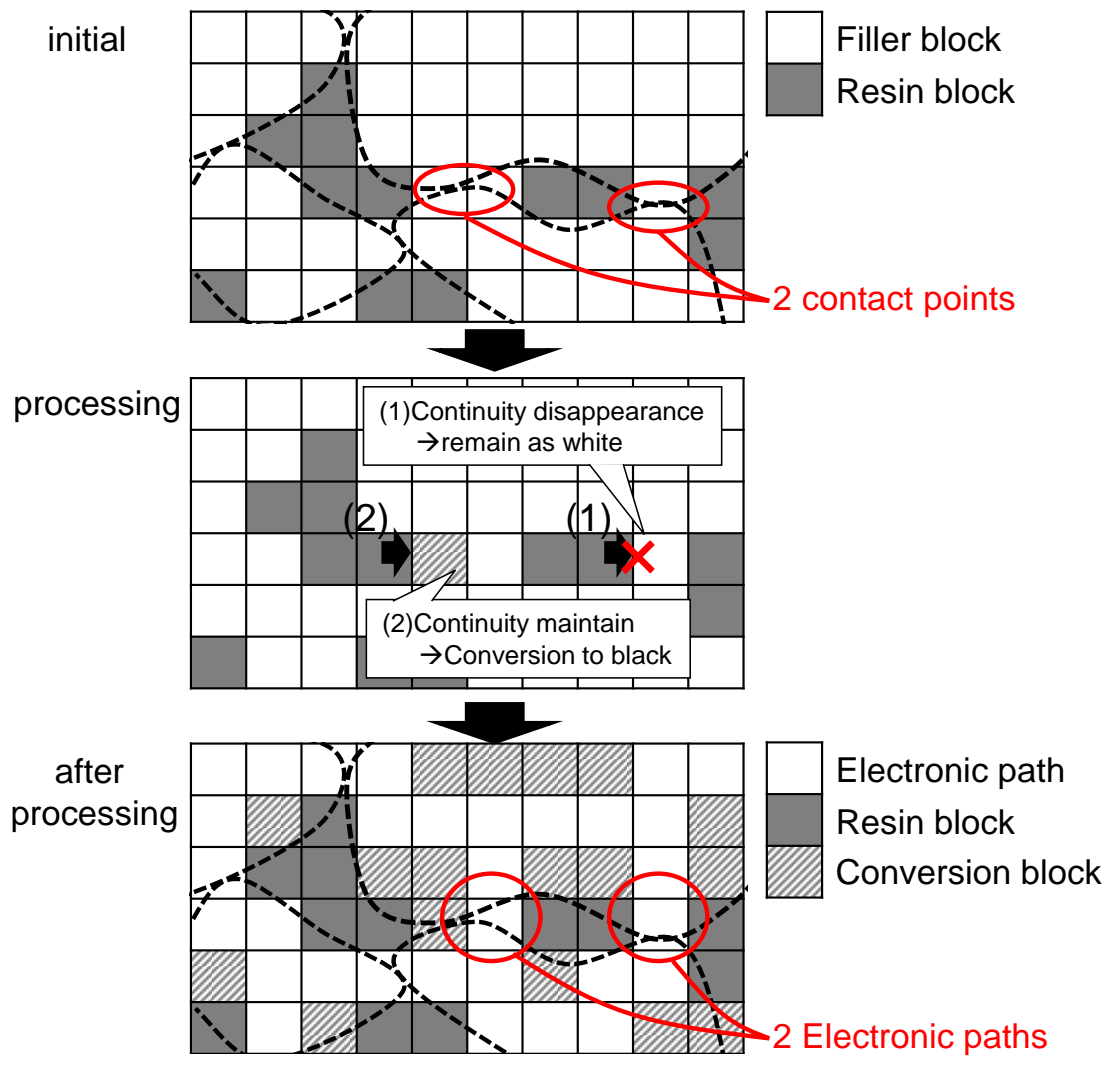


図 19 細線化処理の概念図  
Figure 19 Conceptual diagram of thinning process.

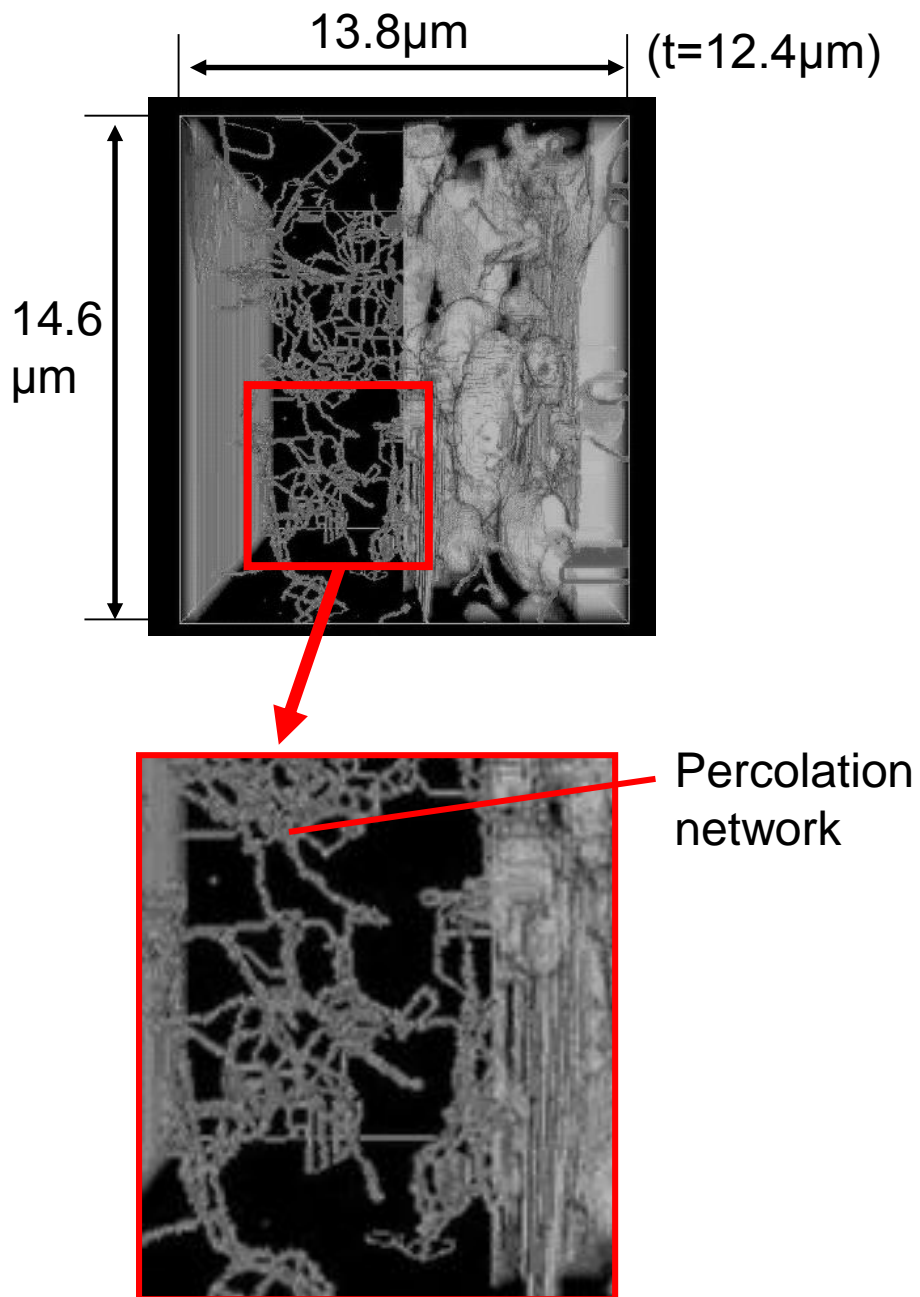


図 20 サンプル A の導電性接着剤内部のパーコレーションネットワーク  
Figure 20 Percolation network in the electrically conductive adhesive of Sample A.

## 2.4.2 Ag フィラー分散状態の解析モデル化

更に詳細な電氣的，熱的な考察を加えるため，FIB-SEM によって得られた Ag フィラーの分散状態の解析モデル化を行った[8]．この解析モデル化には，JSOL 社の Simpleware を用いている．今回，下記(1)，(2)の考え方に基づいて解析モデルを作成した．

### (1)連続的な表面の形成

本観察の FIB-SEM による画像は， $0.1\ \mu\text{m}$  単位の連続写真によって構成されている．そのため，この状態のまま解析モデル化すると，図 21 に示すように 1 辺が  $0.1\ \mu\text{m}$  のボクセルと呼ばれる立方体の集合体となり，表面に粗さが残り，連続的な解析とならない．そこで，マーチングキューブ法[9]を用い，解析モデルの表面の粗さを取り除いた．この手法は，隣接するボクセルの関係から表面が滑らかとなるパターンを割り当て，スムーズな表面を再構成する手法である．本手法により作成した Ag フィラー表面の解析モデルを図 22 に示す．図 21 と比較し，連続的な表面が形成できていることが確認できる．

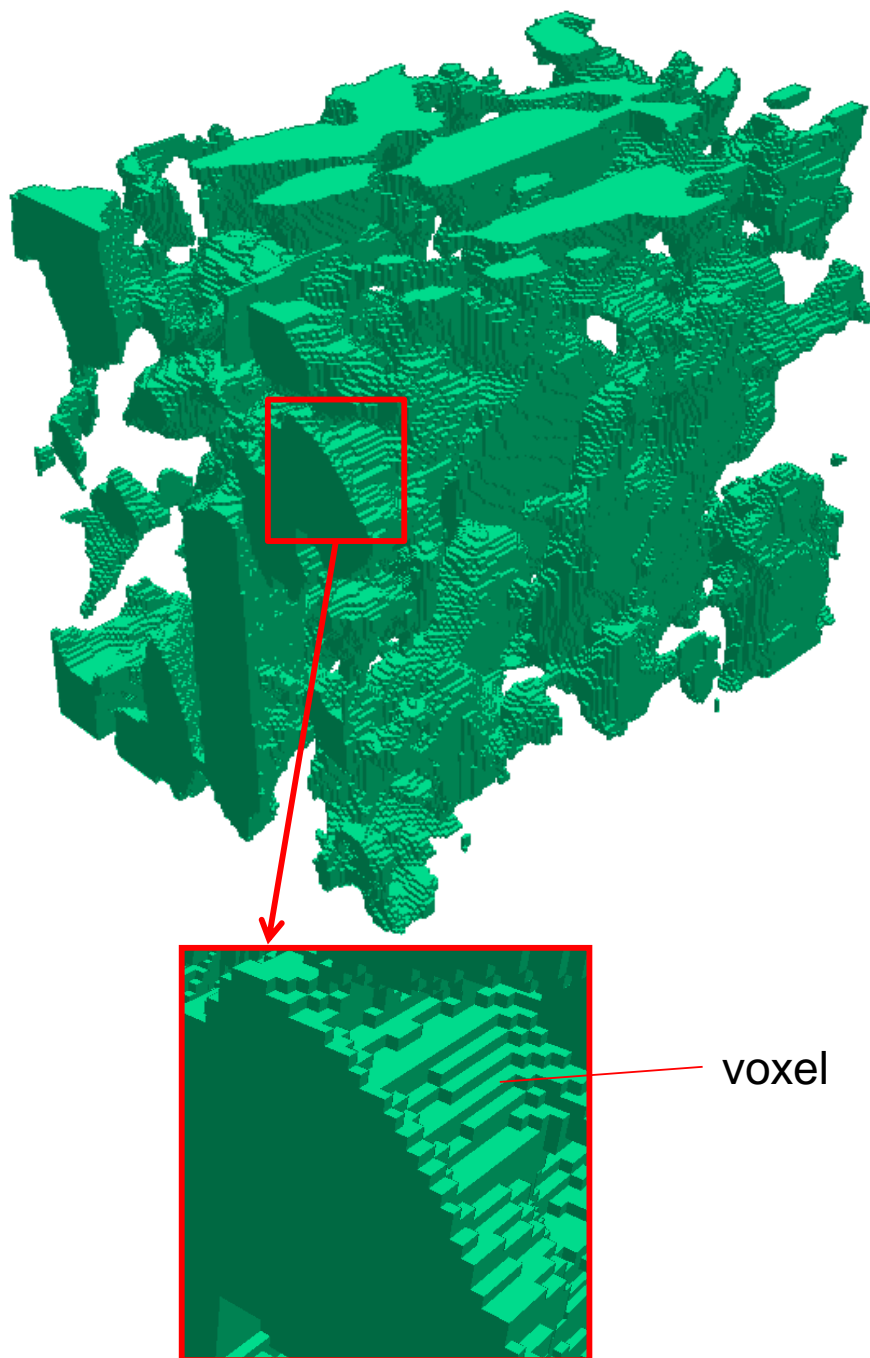


図 21 連続写真の状態での解析モデル化

Figure 21 Analysis modeling in the status of the conductive photos.

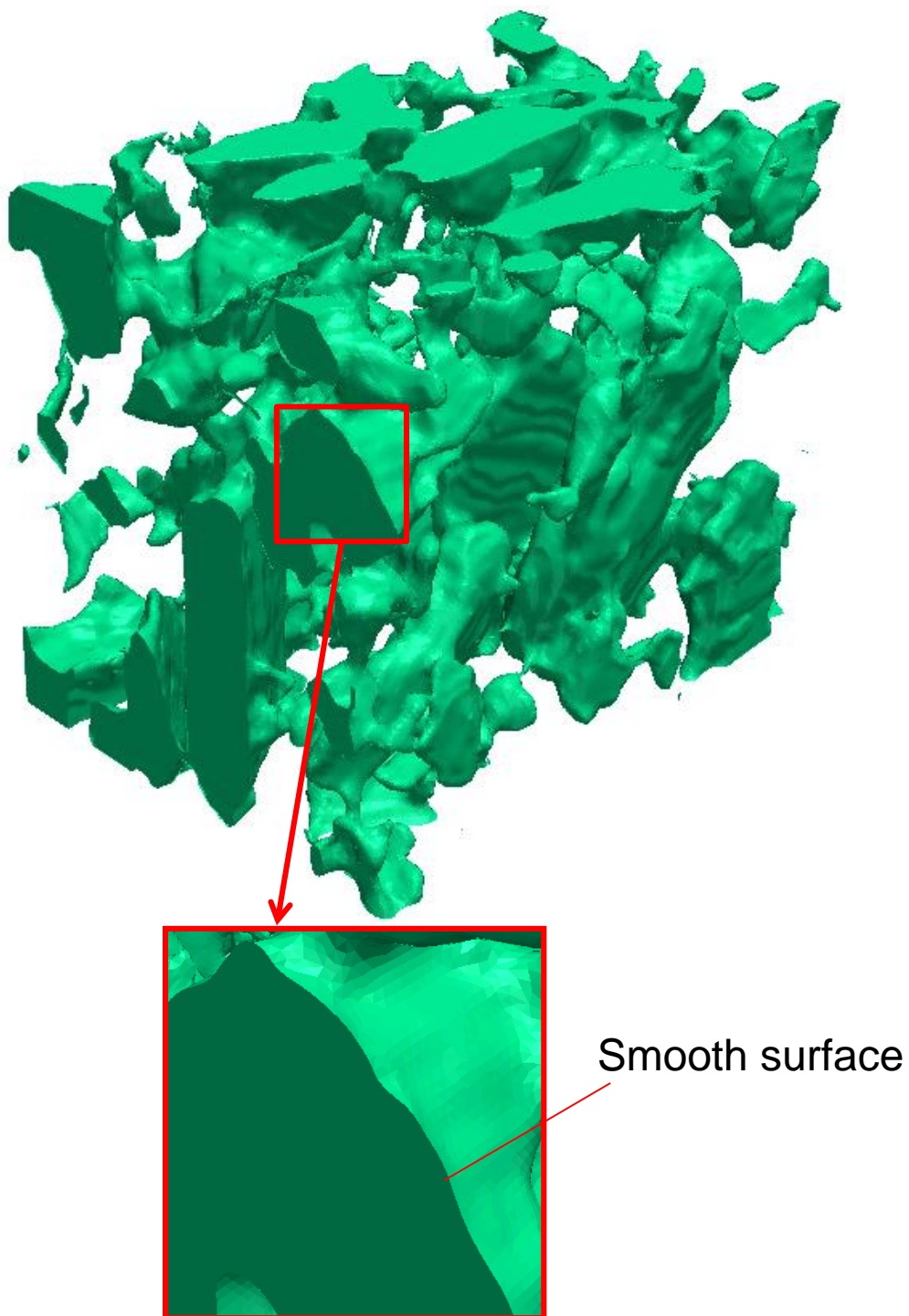


図 22 スムージング処理をした解析モデル化

Figure 22 Analysis modeling in the status of the smoothing processing.

## (2) 界面要素の作成

導電性接着剤は、Ag フィラー同士の繋がりにより電気及び熱の伝導性を発現しているため、Ag フィラー界面近傍の電気や熱のやりとりに対する考察が重要である。この考察を行うため、解析モデルの Ag フィラー最表面に界面要素として別要素化した解析モデルを作成する。

界面要素は、ブーリアン演算[10]に基づき作成した。作成の概念を図 23、図 24 に示す。界面要素が無い場合、図 23 のフィラー同士の界面の接触点を一体とした解析となるが、今回のモデルにおいては、図 24 に示すように、便宜上解析モデルのフィラー表面の 1 層を界面要素として別要素化した。界面要素は、フィラーと樹脂の界面から、フィラー側に本解析モデルの薄さの限界である約 80(nm)の厚みで作成した。

本手法により作成した解析モデルを図 25 に示す。図 25 の(a)は界面モデルの作成前、(b)は界面モデルの作成後である。フィラーの最表面に界面要素が形成できていることが確認できる。また、今回の解析においては、電極界面の取扱いがポイントとなるため、予め電極界面近傍だけを取り出した解析モデルも作成している。

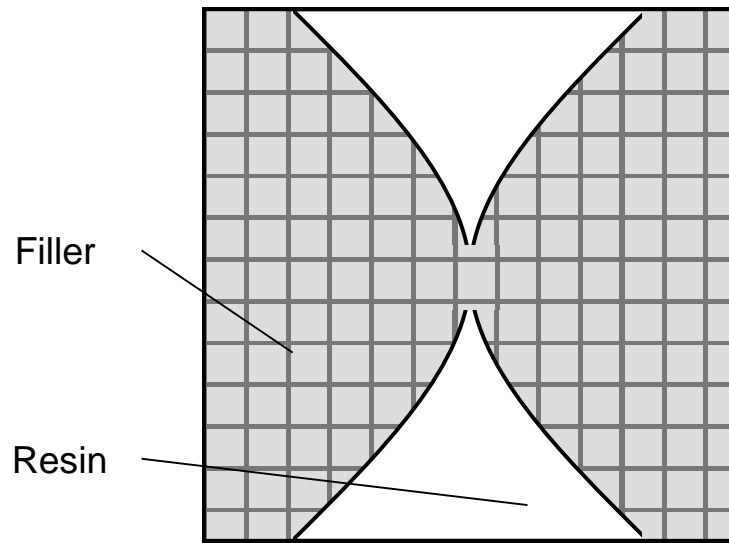


図 23 初期解析モデル  
Figure 23 Initial analysis model.

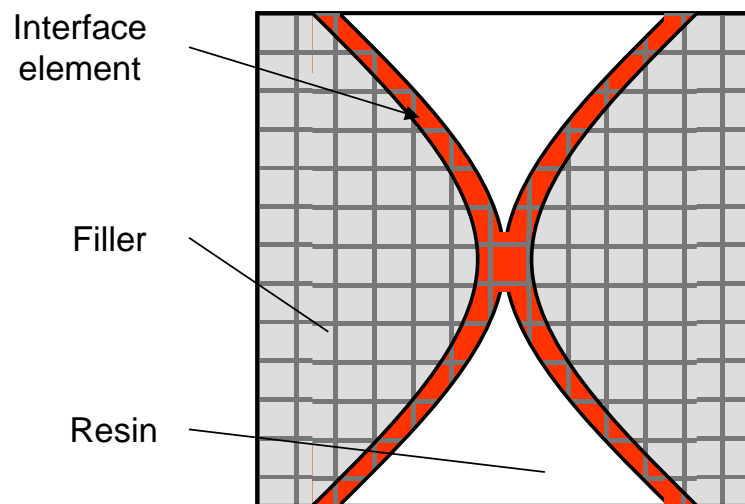


図 24 界面要素解析モデル  
Figure 24 Interface element analysis model.



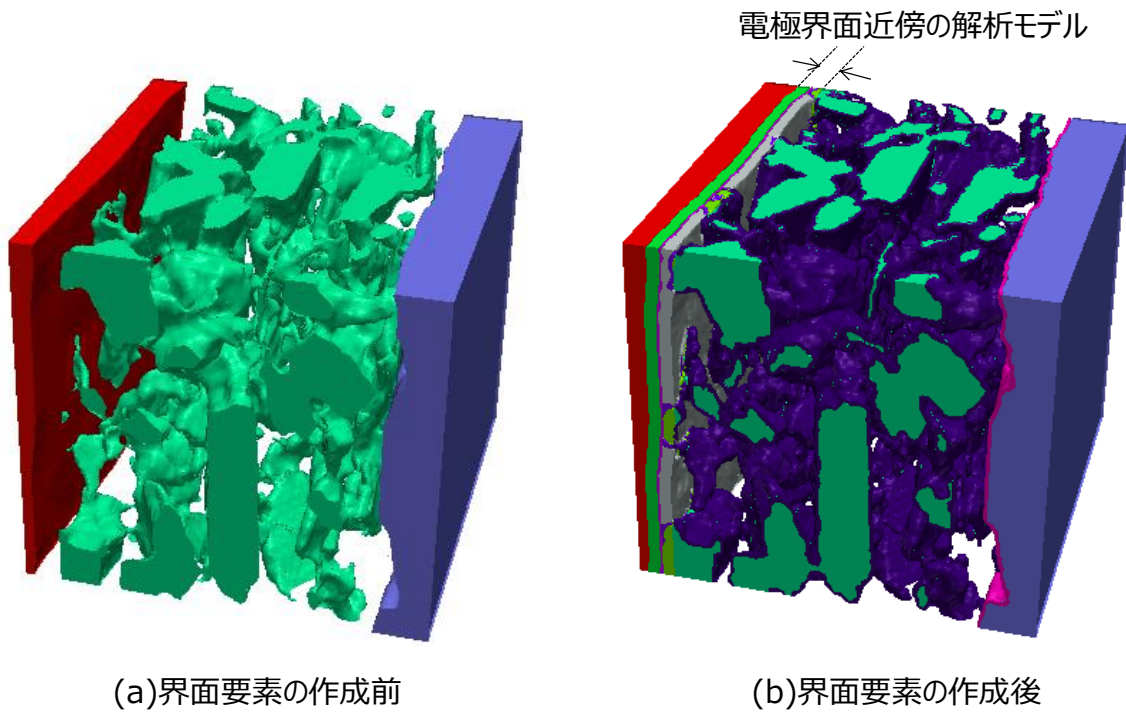


図 25 界面要素を作製した本研究の解析モデル  
Figure 25 Interface element analysis model of this study.

## 第2章の参考文献

- [1] M. Inoue, "Electrical and thermal conductivity of electrically conductive adhesives," *Journal of the Adhesion Society of Japan*, Vol.47, No.1, pp.23-34, Jan.2011
- [2] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, "The electric and thermal resistance analysis on metal filler interface in electrically conductive adhesive," *Journal of IEICE*, Vol.J99-C, No.8, pp. 348-356, Aug. 2017
- [3] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, "The electric resistance analysis between metals in electrically conductive adhesive," *Journal of IEICE*, Vol.J99-C, No.12, pp. 684-692, Dec. 2016
- [4] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, "The 3D-visualization of conductive pathway between electrodes in conductive adhesive," *Journal of Japan Institute of Electronics Packaging*, Vol.16, No.2, pp127-135, Feb.2013, doi: 10.5104/jiep.16.127
- [5] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, "A study of interface thermal resistance and bulk thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites," *Journal of Smart Processing*, Vol.3, No.4, pp199-204, April. 2014, doi: 10.7791/jspmee.3.199
- [6] O. Arao, "Quantification of interface thermal resistance and prediction of thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites," *SAE Technical Paper* 2015-01-0695, 2015, doi:10.4271/2015/01-069510.5104/ jiep.16.127

- [7] M.Kato, T.Ito,Y.Aoyama, K.Sawa, T.Kaneko, N.Kawase, H.Jinnai:” Three-Dimensional Structural Analysis of a Block Copolymer by Scanning Electron Microscopy Combined with a Focused Ion Beam,”*Polymer Science Part B:Polymer Physics*,Vol.45,No.6,pp.677-683, 2006
- [8] P.G. Young, T.B.H. Beresford-West, S.R.L. Coward, B. Notaberardino, B. Walker, A. Abdul-Aziz, “An efficient approach to converting three-dimensional image data into highly accurate computational models,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol.366, No.1878,pp.3155-3173, June.2008,doi: 10.1098/rsta.2008. 0090
- [9] William E. Lorensen, Harvey E. Cline,” Marching Cubes: A high resolution 3D surface construction algorithm. In,” *Computer Graphics*, Vol. 21, Nr. 4, July 1987
- [10] Katz, Matthew J, Overmars, Mark H, Sharir Micha, “ Efficient hidden surface removal for objects with small union size”, *Computational Geometry, Theory and Applications* 2 (4), 223–234,1992, doi:10.1016/0925-7721(92)90024-M

## 第3章

# 電気伝導に関する研究

## 3. 電気伝導に関する研究

### 3.1 目的

導電性接着剤は、はんだと同様に電気伝導と熱伝導が主な機能となる。本章は、この内電気伝導について検討し、次章にて熱伝導について検討する。金属結合により電気伝導を行うはんだに対し、導電性接着剤は金属フィラーの接触によって電気伝導性を確保しているため、導電率がはんだと比較して低い。そのため、導電性接着剤の適用には、電気伝導性の信頼性確保のための伝導メカニズムの解明が大きな技術課題となっている[1]-[5],[8],[9].

そこで、導電性接着剤において、電気の伝導経路を正確に解析し、抵抗値として定量化し、考察を加えることで、電極間の伝導メカニズムを明らかにすることを本章の目的とした。

### 3.2 実験方法

電極間の導電経路における抵抗には、マクロで見ると図 26 で示す電極と導電樹脂の接着界面の抵抗である界面抵抗  $R_{eInt}$  と、導電性接着剤の体積抵抗  $R_{eVol}$  があるため、先ず界面抵抗と体積抵抗の層別評価を行った。この評価は、NEDO（新エネルギー・産業技術総合開発機構）プロジェクトによって検討された導電接着剤の標準評価方法(ISO16525-2)を利用している[9].

評価方法の概略と写真を図 27 に示す。本評価は、下地の基板電極として電解 Ni めっきを用いている。この電極上に一定厚み  $t$  で導電性接着剤を塗布し硬化させる。このとき、電極測定間隔を変えて、つまり導電樹脂の長さをブロック単位で変えて抵抗を測定していくと、接着剤の長さで抵抗値をプロットした時

の1ブロックあたりの抵抗値  $r$  は体積抵抗率  $R_{eVol}$  と比例し, 式(1)の関係となる.

$$R_{eVol} = r \cdot \frac{(W \cdot t)}{a} \quad (1)$$

また界面抵抗率  $R_{eInt}$  は  $y$  切片  $R_{e0}$  から式(2)で示される.

$$R_{eInt} = R_{e0} \cdot W \cdot L \quad (2)$$

この評価を sample A に対して実施した.

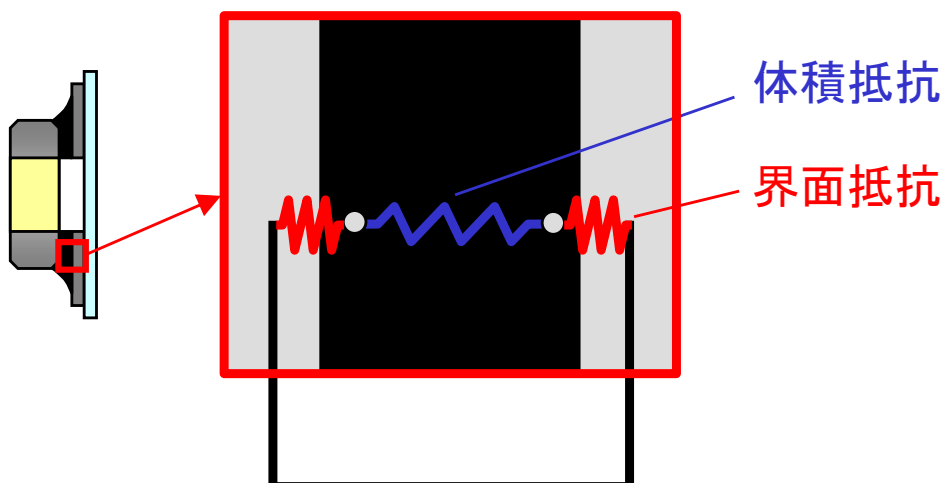


図 26 電極間の抵抗の種類

Figure 26 Kinds of resistance between electrodes.

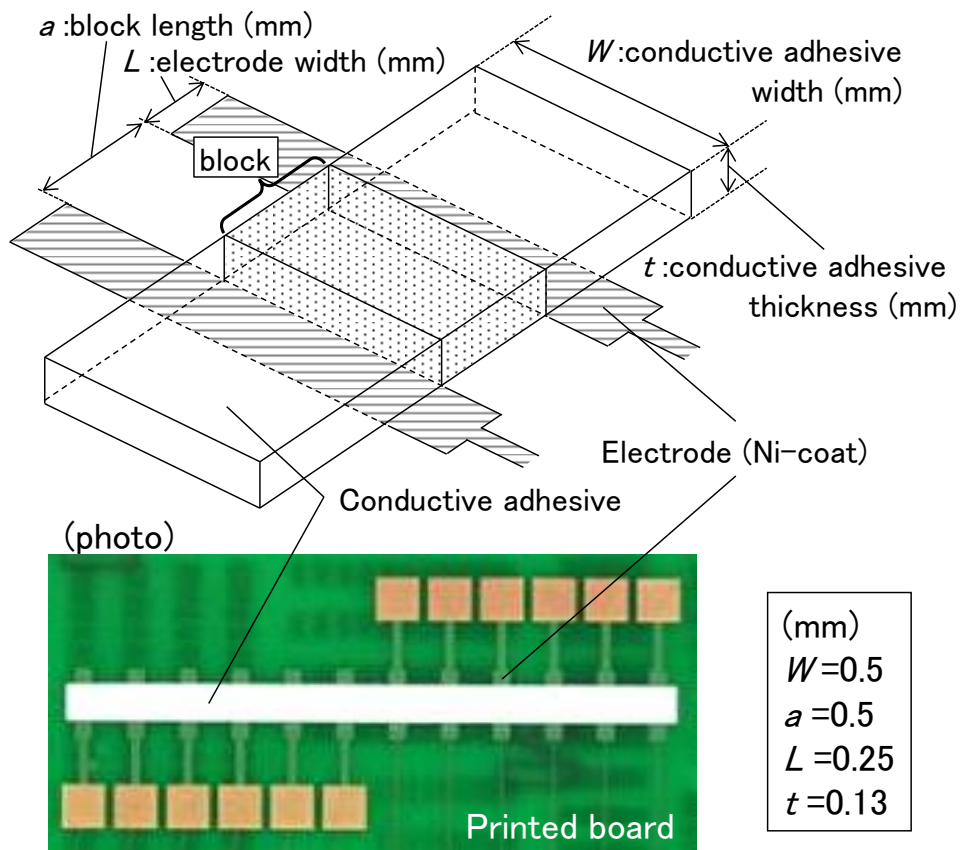


図 27 界面抵抗と体積抵抗の評価方法

Figure 27 Test method of interface resistance and volume resistance.

### 3.3 実験結果

Sample A の界面抵抗と体積抵抗の層別抵抗評価結果を図 28 に示す。横軸は電極間の導電性接着剤長さ、縦軸は実測した抵抗値を表している。図 28 において、直線を外挿した  $y$  切片である  $58\text{m}\Omega$  が界面抵抗を表し、直線の傾きが体積抵抗を表す。

式(2)から計算すると、界面抵抗率  $R_{eInt}$  は  $7.31\text{m}\Omega \cdot \text{mm}^2$  となる。例えば、1608 (長さ  $1.6\text{mm} \times$  幅  $0.8\text{mm}$ ) のチップ部品の場合、実装サンプルの電極と導電接着剤の界面の面積は  $1.2\text{mm}^2$  程度であるため、サンプルでの界面での抵抗は  $6.09\text{m}\Omega$  となる。また、式(1)から計算すると、体積抵抗率  $R_{eVol}$  は  $5.5 \times 10^{-1}\text{m}\Omega \cdot \text{mm}$  となる。同じく 1608 のチップ部品の実装サンプルでの導電接着剤の厚みは  $10\mu\text{m}$  程度であるため、実装サンプルでの体積抵抗は  $4.6 \times 10^{-3}\text{m}\Omega$  程度となる。

今回のサンプルの Ni めっきにおいては、界面抵抗は体積抵抗に比べ 3 桁程度大きく、実際の使い方では Ni めっき電極の界面抵抗の影響が支配的であることが示された。

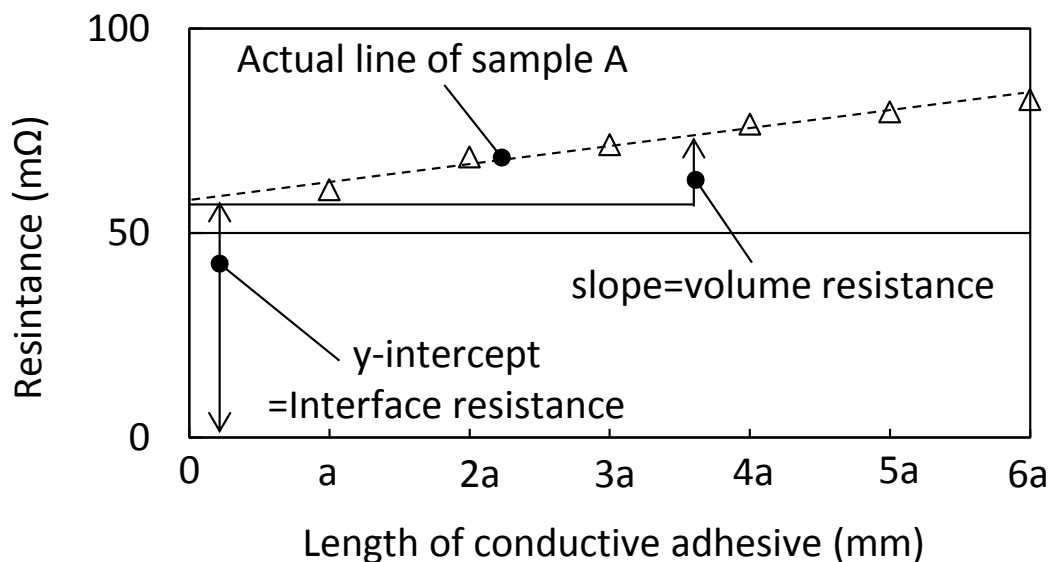


図 28 界面抵抗と体積抵抗の層別評価結果

Figure 28 Test result of stratified resistance of interface and volume.



## 3.4 考察

### 3.4.1 概要

金属フィラー間の接触抵抗を定量化する。接触について、接触点数と接触面積の2つで考察を行った。まず接触点数による考察として、接触点毎の抵抗を一律とみなし、平均的な接触抵抗を算出した。次に、接触面積による考察として、抵抗の支配的要因である界面抵抗に対し、接触面積の大小の影響を加味するため、接触面に対する接触抵抗解析を実施した。そして、この定量化した接触抵抗から Sample B の導電性接着剤の界面抵抗を予測し、実測結果との比較より妥当性を検証した。

### 3.4.2 接触点数による考察

#### (1) 考え方

接触点1点あたりの接触抵抗値を定量化するに当たり、本来であれば図 29 のように、複数点との接触や、横、あるいは逆方向への電流の流れも存在する実際の抵抗回路にて、かつ各接触点での接触抵抗の差異を考察に加えるべきであるが、本研究では計算用の手法として図 30 の等価回路図にて、各接触点での接触抵抗を等しいものとして、平均抵抗値で考察した。

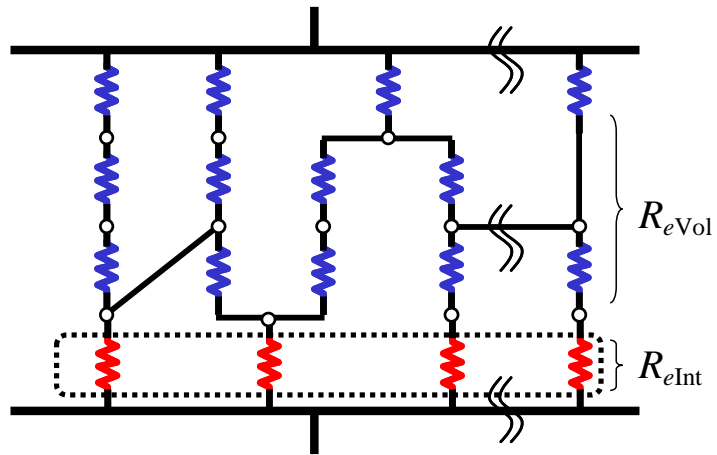


図 29 実際の導電性接着剤内部抵抗の電気回路図

Figure 29 Actual electronic circuit diagram of resistance in electrically conducted adhesive.

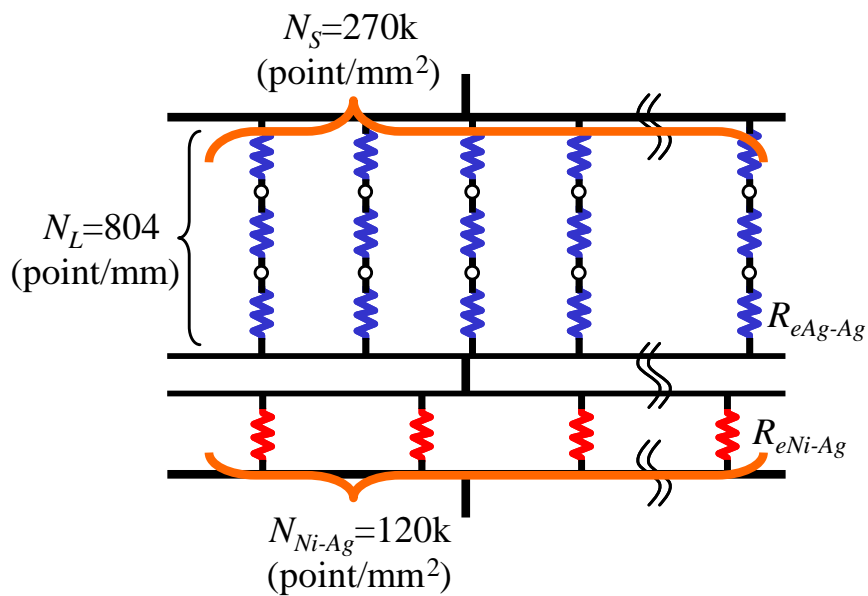


図 30 計算用の導電性接着剤内部抵抗の等価電気回路図

Figure 30 Equivalent electronic circuit diagram for calculation in electrically conducted adhesive.

## (2) 接触点数の計測

本論文 2.4.1 の FIB-SEM による導電性接着剤内部のパーコレーションネットワークの可視化結果から接触点数を計測した。この計測結果を図 31, 図 32 に示す。図 31 は, Ni 電極界面で Ag フィラーと接触している点を示しており, Ni 界面においては今回観察した  $14.6 \times 12.4 \mu\text{m}$  の面内では,  $n=3$  で平均 21.7 点のフィラーとの接触点 (フィラー間距離  $\leq 50\text{nm}$ ) を確認した。ここから計算すると,  $1\text{mm}^2$  当りの経路数  $N_{\text{Ni-Ag}}$  は, 平均 120k 点と計算できる ( $k=10^3$  を意味する)。また, 図 32 は導電性接着剤中での接触点を示しており, 接着剤中の導電方向と垂直な断面について同様に計測すると,  $n=6$  で面内に平均 49.0 点,  $1\text{mm}^2$  当りの接触点数  $N_S$  は 270k 点の接触点を確認できる。更に, 接着剤中の導電方向での接触点数 (つまり, 一経路当たりの接触点数) は,  $n=6$  で平均 8.8 点, 導電性接着剤の長さ  $1\text{mm}$  当りの接触点数  $N_L$  は 804 点であることが確認できる。

この結果と, 3.1 の界面/体積抵抗値の結果より, 接触点 1 点あたりの平均的な抵抗値を算出する。

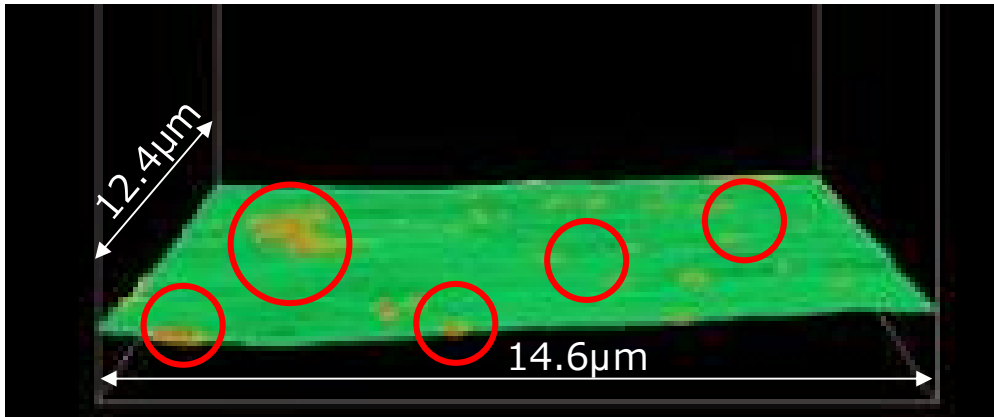


図 31 Ni 電極界面の接触点  
 Figure 31 Contact points on Ni electrode.

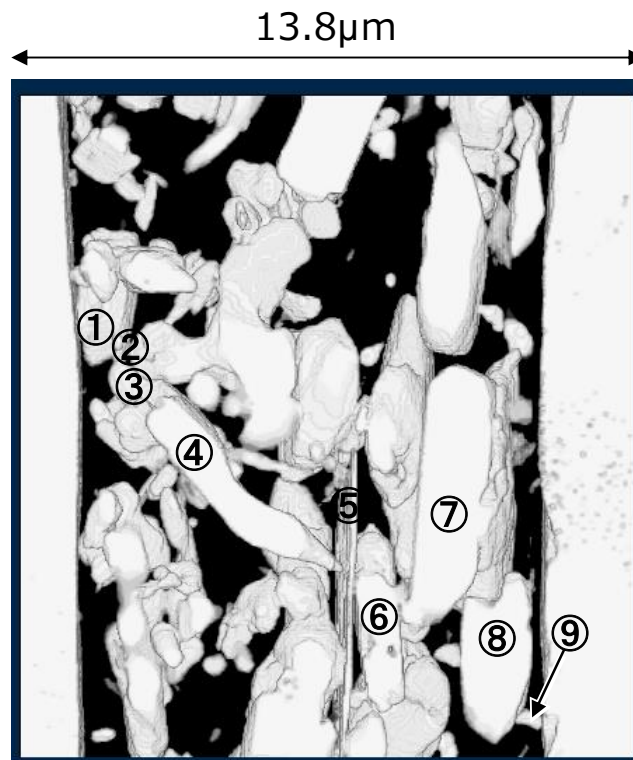


図 32 導電性接着剤中の接触点  
 Figure 32 Contact points in electrically conductive adhesive.

### (3) 接触点の平均抵抗値の算出

先ず電極と導電性接着剤との界面について検討する．図 30 の等価回路図で示したように，導電経路は面内に並列抵抗を形成していると考えられるため，Ni と Ag フィラーの接触点  $x$  点目の 1 点あたりの抵抗を  $R_{eNi-Ag}(x)$  とすると，基板電極と導電接着剤の界面抵抗  $R_{eInt}$  との関係は式(3)で示される．

$$\frac{1}{R_{eInt}} = \sum_{x=1}^{N_{Ni-Ag}} \frac{1}{R_{eNi-Ag}(x)} \quad (3)$$

ここで，界面抵抗での接触点の抵抗の平均値で考察する，すなわち  $R_{eNi-Ag}(x)$  は  $x$  によらず一定と仮定すると， $1\text{mm}^2$  の接触点数は  $N_{Ni-Ag}$  なので，式(3)は式(4)で示される．

$$\frac{1}{R_{eInt}} = \frac{N_{Ni-Ag}}{R_{eNi-Ag}} \quad (4)$$

式(4)より，式(5)を導ける．

$$R_{eNi-Ag} = R_{eInt} \cdot N_{Ni-Ag} \quad (5)$$

式(5)は，実験により計測可能な界面抵抗  $R_{eInt}$  と，FIB-SEM により計測可能な接触点数  $N_{Ni-Ag}$  から，Ni-Ag 間の 1 点あたりの平均接触抵抗  $R_{eNi-Ag}$  を計算できることを示している．

式(5)より計算すると，Ni-Ag 接触点の 1 点あたりの平均の接触抵抗  $R_{eNi-Ag}$  は  $8.78 \times 10^5 (\text{m}\Omega/\text{点})$  となる．

体積抵抗も電極と平行面の導電経路数については上記と同様の考え方で計算できる．すなわち，導電経路は面内に図 30 で示す並列抵抗を形成していると考え

えられるため、導電経路  $x$  本目の 1 本あたりの抵抗を  $R_{eLine}(x)$  とすると、導電接着剤の体積抵抗  $R_{eVol}$  との関係は、式(6)となる。

$$\frac{1}{R_{eVol}} = \sum_{x=1}^{N_s} \frac{1}{R_{eLine}(x)} \quad (6)$$

ここで導電経路内の抵抗について着目すると、1つの導電経路内では Ag-Ag フィラー間の接触抵抗が直列抵抗を形成していると考えられるため、導電経路内の接触点  $n$  点目の 1 点あたりの抵抗を  $R_{eAg-Ag}(n)$  とすると、導電経路 1 本あたりの抵抗  $R_{eLine}(x)$  との関係は、式(7)となる。

$$R_{eLine}(x) = \sum_{n=1}^{N_L} R_{eAg-Ag}(n) \quad (7)$$

ここで、体積抵抗での接触点抵抗の平均値で考察する、すなわち  $R_{eAg-Ag}(n)$  は  $n$  によらず一定と仮定すると、1 経路における Ag 同士のフィラー接触点数は  $N_L$  なので、式(7)は式(8)となる。

$$R_{eLine}(x) = N_L \cdot R_{eAg-Ag} \quad (8)$$

式(6)と式(8)の関係から、 $R_{eLine}(x)$  は  $x$  によらず一定と仮定すると、 $1\text{mm}^2$  の導電経路数は  $N_s$  なので、式(9)が導ける。

$$\frac{1}{R_{eVol}} = \frac{1}{R_{eAg-Ag}} \cdot \frac{N_s}{N_L} \quad (9)$$

式(9)より、

$$R_{eAg-Ag} = R_{eVol} \cdot \frac{N_s}{N_L} \quad (10)$$

式(10)は式(5)と同様に，実験により計測可能な体積抵抗  $R_{eVol}$  と，FIB-SEM により計測可能な導電経路数  $N_S$  と 1 経路における接触点数  $N_L$  から，Ag-Ag 間 1 点あたりの接触抵抗  $R_{eAg-Ag}$  を計算できることを示している．

式(10)より計算すると，Ag-Ag の 1 点あたりの平均の接触抵抗  $R_{eAg-Ag}$  は  $1.85 \times 10^2(\text{m}\Omega/\text{点})$  となる．Ni-Ag の接触抵抗  $R_{eNi-Ag}$  は  $8.78 \times 10^5(\text{m}\Omega/\text{点})$  であるため，Ag-Ag の接触抵抗  $R_{eAg-Ag}$  の  $1.85 \times 10^2(\text{m}\Omega/\text{点})$  に比べ，3~4 桁程度接触抵抗が高いことが確認できた(図 33)．

また，界面抵抗  $R_{eInt}$  と体積抵抗  $R_{Vol}$  は直列抵抗を形成していると考えられるため，全体の抵抗値  $R_{eTotal}$  は  $R_{eInt}$  と  $R_{eVol}$  の和となる．このことと，式(5)，式(10)より，全体の抵抗値は式(11)にて予測することができる．

$$R_{eTotal} = \frac{1}{N_{Ni-Ag}} \cdot R_{eNi-Ag} + \frac{N_L}{N_S} \cdot R_{eAg-Ag} \quad (11)$$

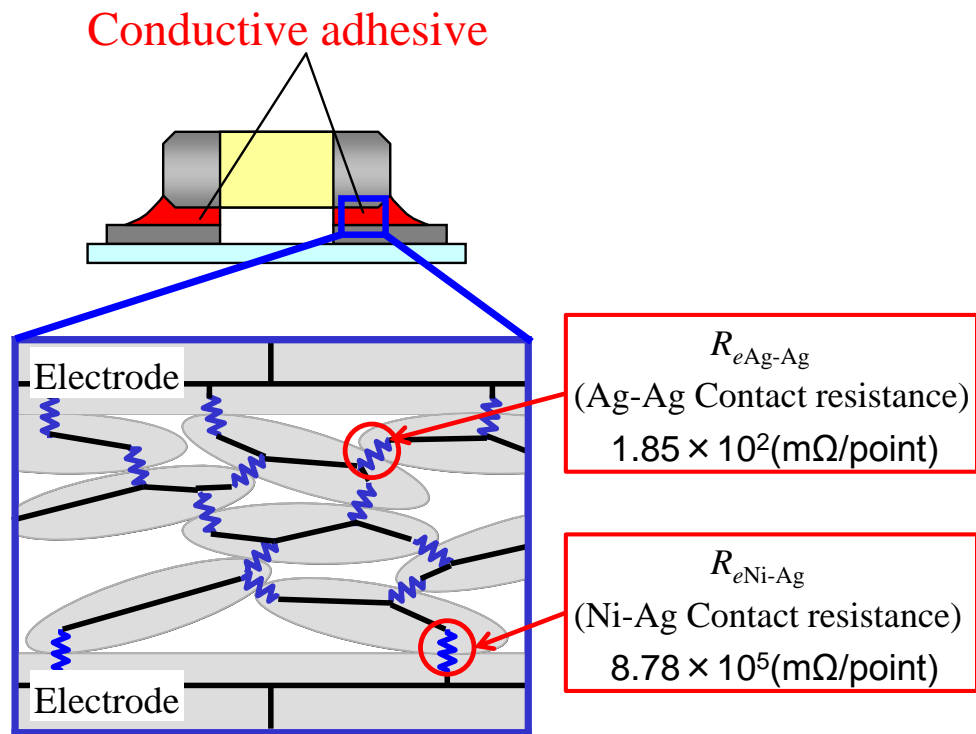


図 33 導電性接着剤内部の接触抵抗の計算結果

Figure 33 Calculation result of the contact resistance in electrically conductive adhesive.



### 3.4.3 接触面積による考察

#### (1) 考え方

接触抵抗にはフィラーや電極など金属の接触状態が与える影響が大きいと考えられるため、接触面の精査を行い、考察を加える。3.3 で言及したように、実サンプルでの導電性には Ni 電極と導電性接着剤間の界面抵抗、すなわち微視的には Ni-Ag 間の接触抵抗の影響が支配的であるため、この Ni 電極と導電樹脂の界面に着目して精査する。

図 34 の黒色部は、Ni 電極と導電接着剤の界面における電極とフィラーの接触部を示したものである。各接触点毎に接触面積の大小があることが確認できる。このため、4.2 の接触点数での考察に対し、接触面積の影響を考察に加えることで、接触点に対する抵抗の大小を加味したより正確な接触抵抗の定量化を行うことができると考えた。

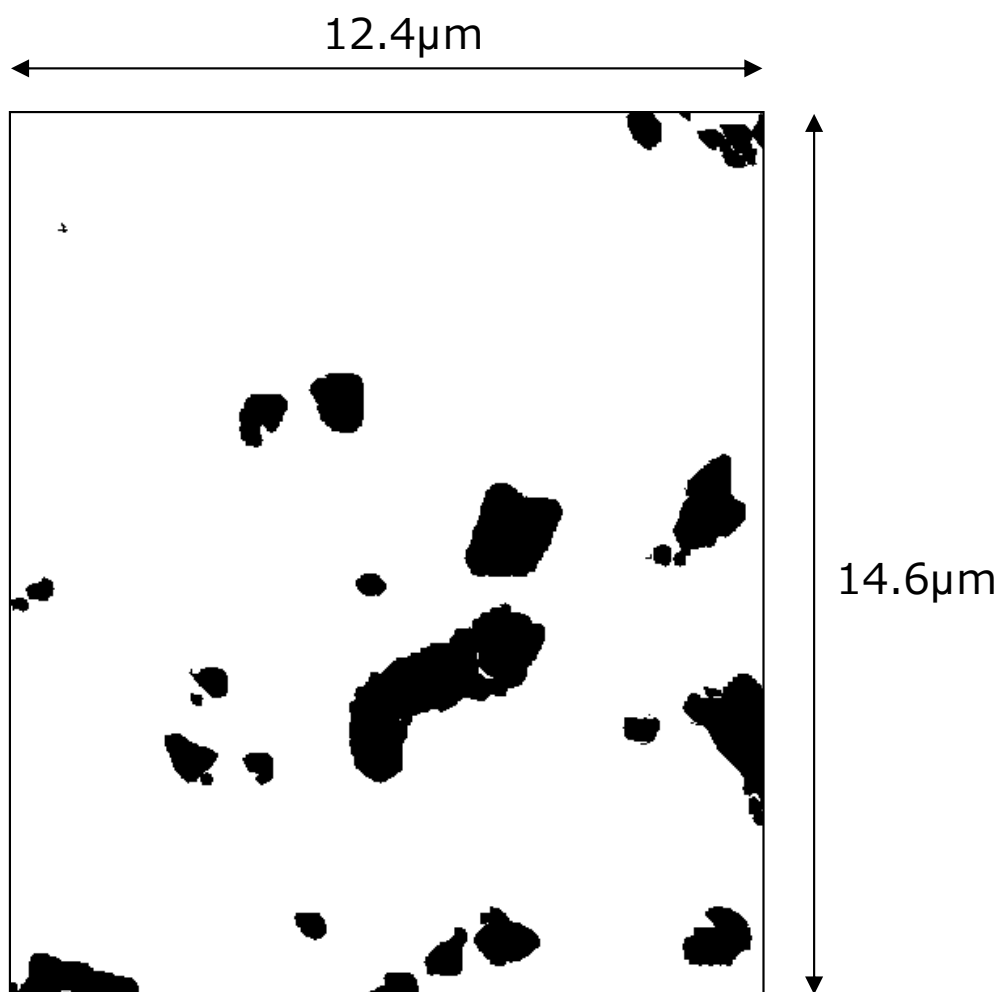


図 34 Sample A の Ni 電極とフィラー間の接触面  
Figure 34 Contact area between Ni-electrode and filler of Sample A.

## (2)界面抵抗の算出

界面においてフィラーと電極とが接触している面積は，界面全体の 8.5%であった．この界面近傍の領域について，電流解析を試みた．

FIB-SEM で取得した 3次元の情報を，2.4.2 で示した Simpleware による手法 [6], [7]を用いて解析モデル化した．この解析モデルを図 35 に示す．本解析は導電性接着剤と電極との界面部分に着目しているため，図 25 の電極界面近傍の解析モデルを用いて解析を行った．ポイントである電極界面の電氣的抵抗の影響を考慮するため，電極界面を解析モデルの限界の薄さである 80nm で界面要素として別要素化し，ここに任意の体積抵抗率  $\rho$  を導入することで界面の影響を考察していく．この解析モデルに対し，Ansys により電流解析を行った．解析条件は，3次元フルモデル，メッシュタイプは4接点四面体1次要素，約 80 万要素である．境界条件は，電圧 1mV を両端に与え，側面は絶縁として解析した．

この解析結果における，界面での電流の方向と強さをベクトルとして図 36 に示した．接触界面での電流が解析できていることを示している．

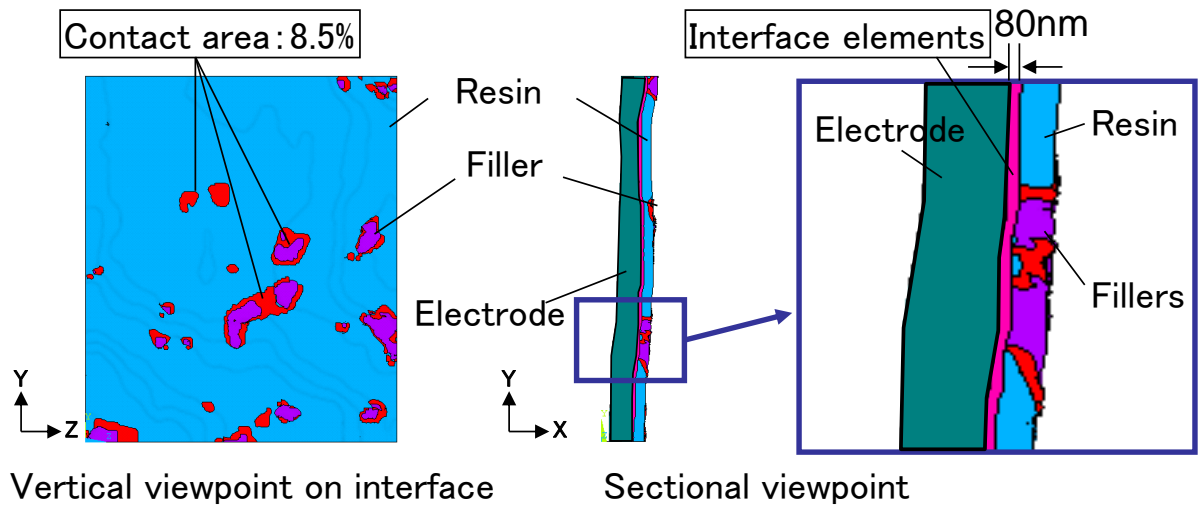
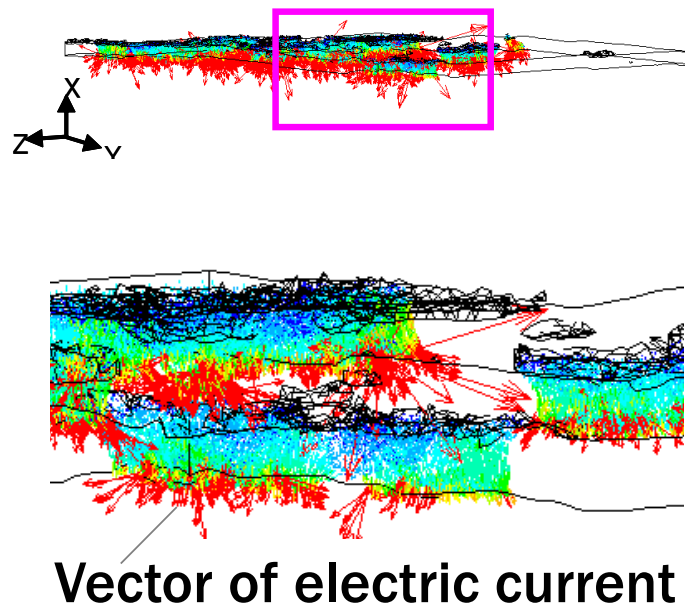


図 35 Ni 電極の解析モデル  
 Figure 35 Analysis model on Ni-electrode.



**Vector of electric current**

図 36 電流のベクトル  
 Figure 36 Vector of electric current.

次に、この解析結果より、両端の間に流れる電流量を計算した。そして、この結果と両電極間の電圧 1mV を用いて、オームの法則より全体の抵抗を計算した。この結果を図 37 に示しており、電極界面の 80nm 層の体積抵抗率変化を x 軸に、算出した全体の界面抵抗率を y 軸にプロットしている。この関係を両対数でとると、x と y はほぼ直線となり、 $y=0.0016x^{0.97}$  の関係で近似される。この関係より、3.1 で示した実機評価の結果である界面抵抗率  $7.31\text{m}\Omega \cdot \text{mm}^2$  の場合、厚さ 80nm の界面要素の体積抵抗率  $\rho$  は  $6.21 \times 10^3 \text{m}\Omega \cdot \text{mm}$  となる。

ここで、厚みの影響をキャンセルし、純粋な面積に対する抵抗に換算を行う。電気抵抗  $R_e(\Omega)$ 、体積抵抗率  $\rho (\text{m}\Omega \cdot \text{mm})$ 、導体の厚さ  $D(\text{mm})$ 、導体の断面積  $A(\text{mm}^2)$  の関係は、式(12)で示される。

$$\rho = \frac{R_e \cdot A}{D} \quad (12)$$

今回の場合、導体の厚さ  $D=80 \times 10^{-6}(\text{mm})$  は便宜上の値であるためこれをキャンセルし、接触部の界面抵抗率  $R_e \cdot A$  に換算するため、式(12)を式(13)にする

$$R_e \cdot A = \rho D \quad (13)$$

式(13)に、計算した体積抵抗率  $\rho = 6.21 \times 10^3 (\text{m}\Omega \cdot \text{mm})$  と導体の厚さ  $D=80 \times 10^{-6}(\text{mm})$  を代入すると、界面抵抗率  $R_e \cdot A$  は、 $0.497 \text{m}\Omega \cdot \text{mm}^2$  と計算できる。この値は、接触面積当たりの界面抵抗を示しており、接触界面の接触面積に対する抵抗を定量化することができた。この結果は、界面における接触面積を測定できれば、マクロな界面抵抗を予測できることを示している。

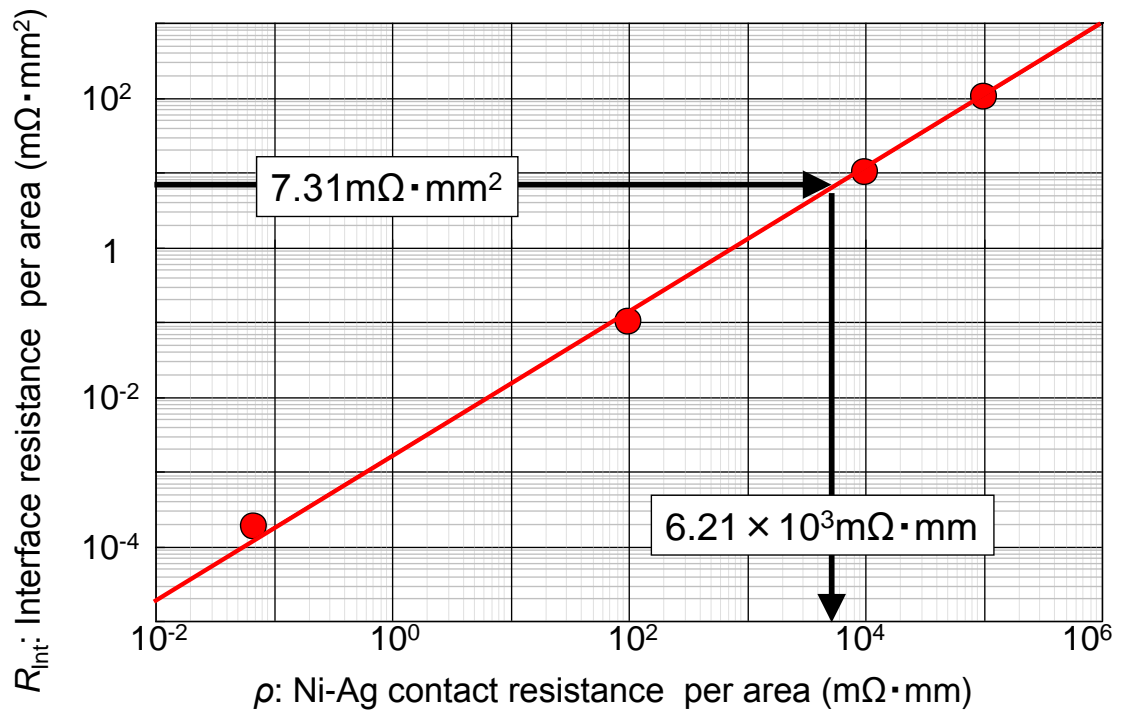


図 37 単位接触面積あたりの Ni-Ag 間の接触抵抗解析結果

Figure 37 Analysis result of Ni-Ag contact resistance per area.

## 3.5 電気抵抗の予測

### 3.5.1 考え方

導電接着剤の Ni 界面での接触面積当たりの界面抵抗が算出できたので、次は逆に実際のサンプルにおける電気抵抗の予測を試みた。本検討では、接触状態を変えたサンプルにて検討を行うため、平均フィラー径を 2/3 程度に小さくした検証用の Sample B を用い、予測と評価を行った。

### 3.5.2 Sample B の電気抵抗予測

まず、2 章と同様の手法で Sample B の実装サンプルに対して、FIB-SEM による 3 次元観察を行い、界面での接触面を把握した。Sample A と Sample B のフィラー分散状態の観察結果、および接触状態の比較を表 4 に示す。また、Ni 電極とフィラーの接触面を図 38 に示す。 $N_S=260k$  (点 $\cdot$ mm $^{-2}$ )、 $N_L=852$  (点 $\cdot$ mm $^{-1}$ )であり、接触面の面積は面全体の 9.5%であった。この接触面積と、3.4.3 で算出した単位面積当たりの抵抗  $0.497m\Omega\cdot mm^2$  より界面抵抗が予測できる。

### 3.5.3 電気抵抗予測の妥当性検証

Sample B の接触点数、および接触面積の測定結果から、Sample B の実際のサンプルでの抵抗を予測した。この予測結果を、図 39 の実線で示す。また、図 25 と同じ実験で測定した sample B の実測値を図 39 の下側の破線で示す。検証用 sample B の予測値と実測値の差は、界面抵抗(y 切片)で約 9%であり、体積抵

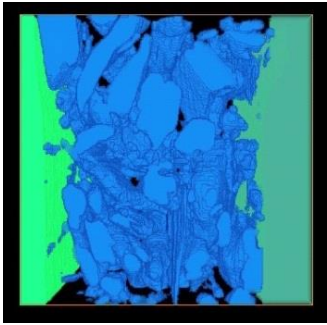
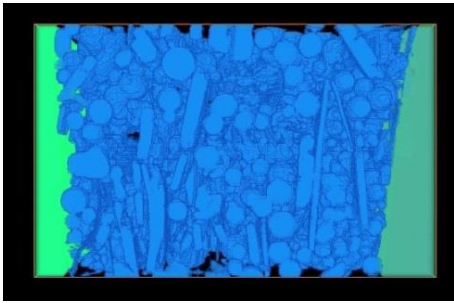
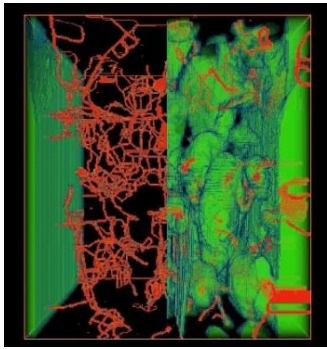
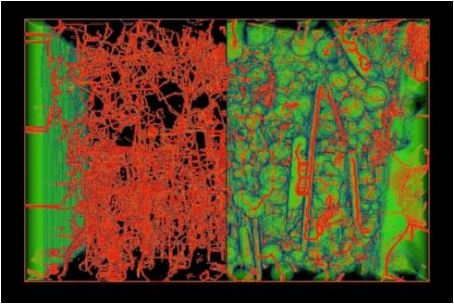
抗の傾きも、予測と実測で同じ傾向を示しているため、実測値を計算である程度再現することができた。このことより、本手法により実測の抵抗値を推測することが可能であり、本研究は妥当であることが検証できた。

また、Ag-Ag間の界面抵抗に関しては、文献[8]で論じられている。この文献によると、Ag-Ag間に厚さ50nmのエポキシ樹脂が存在する場合、2.5Vの電圧に対する界面抵抗は約 $2.5 \times 10^{10}(\text{m}\Omega/\text{点})$ となり、今回接触点数から計算したAg-Agの界面抵抗 $1.85 \times 10^2(\text{m}\Omega/\text{点})$ に比べ8桁程度大きい。このことは、50nmから更にAg-Ag間が接近すると抵抗が急激に小さくなることを示唆している。本報告ではAg-Ag間の厚さ50nm以下を接触点とみなして平均的な界面抵抗の計算を実施したが、実際には接触部は面であり、更に面内でも抵抗の大小が存在するため、今後、より正確な解析を進めるには、この影響を加味した解析を実施する必要がある。



表4 SampleA と SampleB の接触点と接触面の計算値

Table 4 Calculation of contact points and contact area in Sample A and Sample B.

		Sample A	Sample B
Observation by FIB-SEM	3D		
	Electric path		
Number of contact points	$N_s$	270k (points/mm <sup>2</sup> )	260k (points/mm <sup>2</sup> )
	$N_L$	804 (points/mm)	852 (points/mm)
Interface contact area		8.5(%)	9.5(%)

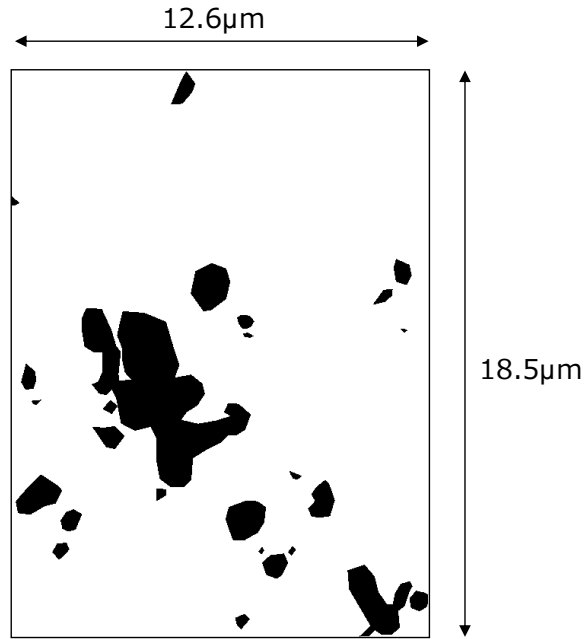


図 38 SampleB の Ni 電極とフィラー間の接触面  
 Figure 38 Contact area between Ni-electrode and filler of Sample B.

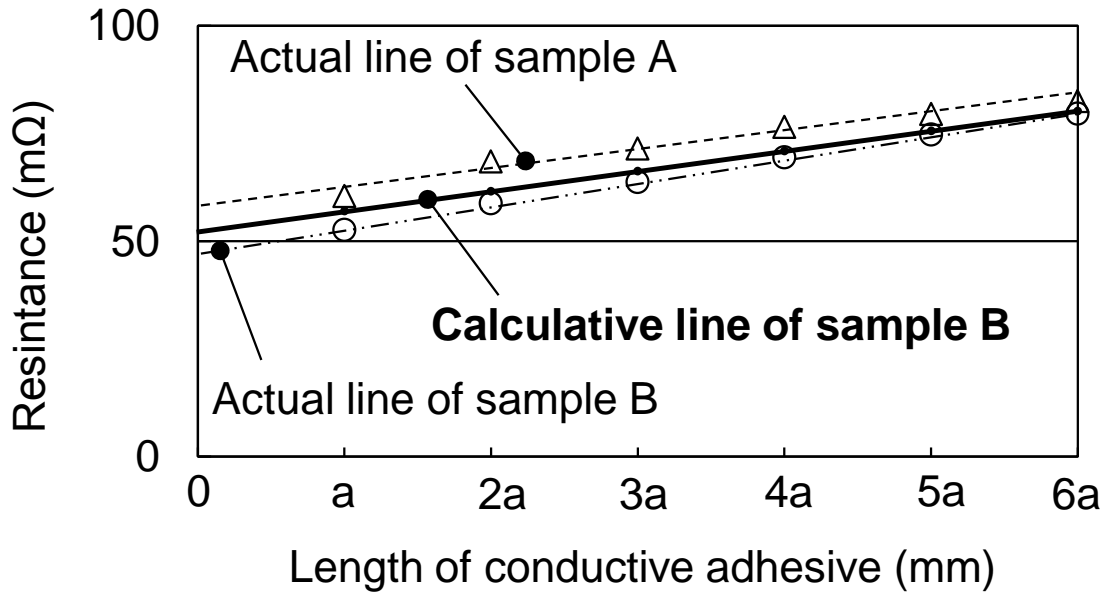


図 39 実測線と計算線の結果の比較  
 Figure 39 Result comparison of actual line and Calculation line.

## 参考文献

- [1] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric and thermal resistance analysis on metal filler interface in electrically conductive adhesive,” *Journal of IEICE*, Vol.J99-C, No.8, pp. 348-356, Aug. 2017
- [2] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric resistance analysis between metals in electrically conductive adhesive,” *Journal of IEICE*, Vol.J99-C, No.12, pp. 684-692, Dec. 2016,
- [3] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The 3D-visualization of conductive pathway between electrodes in conductive adhesive,” *Journal of Japan Institute of Electronics Packaging*, Vol.16, No.2, pp127-135, Feb.2013, doi: 10.5104/jiep.16.127
- [4] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “A study of interface thermal resistance and bulk thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” *Journal of Smart Processing*, Vol.3, No.4, pp199-204, April. 2014, doi: 10.7791/jspmee.3.199
- [5] O. Arao, “Quantification of interface thermal resistance and prediction of thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” *SAE Technical Paper* 2015-01-0695, 2015, doi:10.4271/2015/01-069510.5104/ jiep.16.127
- [6] P.G. Young, T.B.H. Beresford-West, S.R.L. Coward, B. Notaberardino, B. Walker, A. Abdul-Aziz, “An efficient approach to converting three-dimensional image data into highly accurate computational models,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol.366, No.1878,pp.3155-3173, June.2008,doi: 10.1098/rsta.2008. 0090
- [7] O.C. Zienkiewicz, R.L. Taylor, J.Z.Zhu, ” *The finite element method, Its basis & fundamentals 6th edition,*” Butterworth-Heinemann, 2005

- [8] T. Yu, "Novel isotropical conductive adhesives for electronic packaging application," IEEE Trans Adv Packag, Vol.32 No.3, pp.589-592 ,Aug.2009
- [9] NEDOプロジェクト, "導電性接着剤に関する標準化事業," 平成21年度活動報告, 第2回 iCAS JEITA フォーラム, 社団法人 電子情報技術産業協会, 導電性接着剤標準化委員会, Mar. 2010

## 第 4 章

# 熱伝導に関する研究

## 4. 熱伝導に関する研究

### 4.1 目的

本章は熱伝導性について検討した。3章で検討した電気抵抗の場合，樹脂部分は金属よりも10桁以上絶縁性が高いため，樹脂部分を絶縁体とみなして解析を行えるが，熱伝導に関しては樹脂部分の熱伝導率は金属と比べて3桁程度の大きさであり，バルク全体の熱伝導性に影響を与える。そのため，接触点だけでなく，金属フィラーと樹脂の界面全体を考慮に入れる必要がある。そこで，金属フィラー界面の影響を定量化し，考察を加えることで，導電性接着剤の熱伝導メカニズムを解明することを本章の目的とした[1]-[5]。

### 4.2 実験方法

レーザーフラッシュ法[6],[7]により sample A の熱抵抗を測定した。測定は，10mm 角の面で，厚さ 1.0mm の sample A に対し，室温(27°C)の条件で実施した。装置は NETZSCH 社の LFA447 を用いている。

### 4.3 実験結果

レーザーフラッシュ法にて sample A の熱伝導率を測定すると， $1.39(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ であった。これを熱抵抗に換算すると， $0.72(\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K})$ となる。

## 4.4 考察

### 4.4.1 電気伝導と熱伝導の関係

まず、電気伝導と熱伝導の関係について考察した。バルク状の金属材料の場合、熱伝導率は式(14)のウィーデマン・フランツの法則[7]に従う。

$$\lambda/\sigma = LT \quad (14)$$

$L$ はローレンツ数で  $2.44 \times 10^{-8} (\text{W} \cdot \Omega \cdot \text{K}^{-2})$ 、 $T$ は絶対温度(K)、 $\sigma$ は電気伝導率 ( $\Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ )、 $\lambda$ は熱伝導率 ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ )である。金属バルクの熱伝導の大部分は、与えられた熱エネルギーが金属中の自由電子の動きを活性化させることで行われている。そのため、自由電子の数、すなわち材料の電気伝導性によって熱伝導性もほぼ決定される。

式(14)を抵抗に換算すると、熱抵抗  $R_h$ は熱伝導率  $\lambda$ の逆数であり、また電気抵抗  $R_e \cdot A$ は導電率  $\sigma$ の逆数であるため、式(15)が導ける。

$$R_h = R_e / LT \quad (15)$$

導電性接着剤の場合、熱抵抗の小さい金属フィラーが熱伝導の大部分を担っていると考えられるが、フィラーの接触界面が多数存在するため、界面の無い金属バルクとは熱伝導挙動が異なると考えられる。そこで、界面における熱抵抗の考察を加える。3章において、Ag-Ag 接触点の1点当たりの接触抵抗は  $1.85 \times 10^2 (\Omega/\text{点})$ と算出している。ここから金属バルクと同様に熱抵抗と電気抵抗が比例すると仮定すると、この値と式(15)より接触点の熱抵抗は、 $2.15 \times 10^4 (\text{W}^{-1} \cdot \text{K}/\text{点})$ と算出できる。この値は、自由電子によるエネルギー伝達が、フィラー間においても式(15)に従って行われた熱抵抗の理論値を意味する。

次に、導電性接着剤のバルク特性から接触点の平均熱抵抗を算出する。4.3の

結果より，sample A のバルクの熱抵抗率  $R_{hVol}$  は  $0.72(W^{-1}\cdot m\cdot K)$  となる．ここで，熱抵抗も電気抵抗と同様に，図 40 の抵抗回路を形成し，熱抵抗についても式(10)と同様に，ファイラー間の平均的な熱抵抗  $R_{hAg-Ag}$  と式(16)の関係が成立すると仮定する．

$$R_{hAg-Ag} = R_{hVol} \cdot N_S / N_L \quad (16)$$

この式に， $R_{hVol}=0.72(W^{-1}\cdot m\cdot K)$ と，図 40 の  $N_S, N_L$  を代入すると，サンプルでのファイラー間の平均的な熱抵抗  $R_{hAg-Ag}$  は， $2.42 \times 10^5 (W^{-1}\cdot K/\text{点})$  と計算できる．

Ag-Ag ファイラー間の接触点においては，自由電子による熱抵抗の理論値  $2.15 \times 10^4 (W^{-1}\cdot K/\text{点})$  と比較すると，実サンプルの平均的な熱抵抗の測定値  $2.42 \times 10^5 (W^{-1}\cdot K/\text{点})$  は 10 倍程度大きい．これは自由電子の運動による熱エネルギーの大半は Ag-Ag の接触点を越えていないことを示している．

これは，熱伝導は電気伝導に比べ自由電子の運動速度増加が非常に小さく，また接触点に向かう指向性も小さいため，自由電子が接触点を超えるエネルギーに達しなことが要因と考えられる．そのため，自由電子によるエネルギーだけでなく，樹脂などの絶縁体で支配的である分子のフォノン（分子振動）による熱伝導を考慮する．

今回の sample A のバルク熱抵抗は  $0.72 (W^{-1}\cdot K\cdot m)$  である．これに対し，バインダであるエポキシ単体の熱抵抗率は  $3.3 (W^{-1}\cdot K\cdot m)$  と導電性接着剤のバルクの熱抵抗率に近く，バルク熱伝導に影響を与えると考えられるため，エポキシの熱伝導も考慮に加える必要がある．そこで，エポキシの影響も加味できる，熱伝導解析による考察を行った．



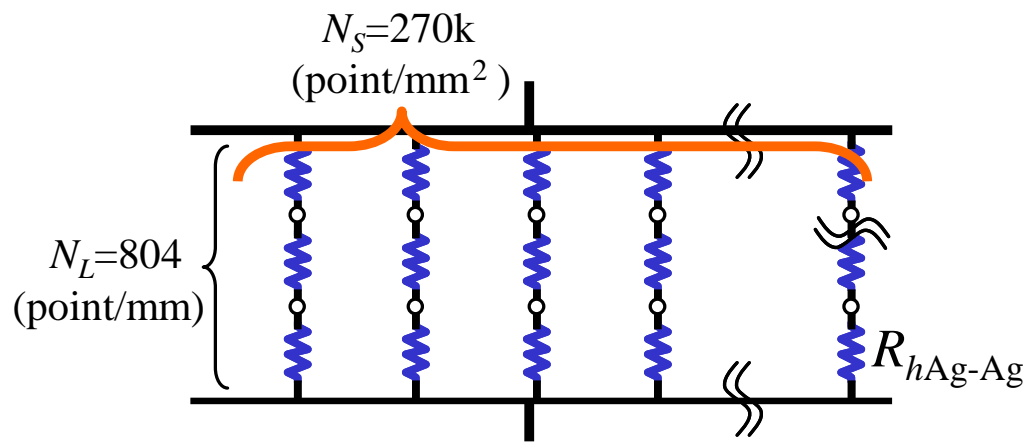


図 40 計算用の導電性接着剤内部熱抵抗のモデル図

Figure 40 Equivalent thermal diagram for calculation in electrically conducted adhesive.

#### 4.4.2 界面を考慮しない熱伝導解析

先ず、接触部熱抵抗の無い解析を行う。解析モデルの作成は、界面のみをモデル化した電気解析の手法を、導電性接着剤と電極全体に拡張することで行った。解析モデル作成は Sample A の 3.3.1 で観察した 3 次元のフィラー分散状態を、2.4.2 で示した解析モデル化手法に基づき、JSOL 社の Simpleware[8]を用いて 4 節点約 1000 万要素に解析モデル化した(図 41)。熱伝導に関しては、観察結果全体をモデル化したため、要素数が約 1000 万要素と大きくなった。そのため、大規模解析に適する Adventure Cluster[9]をソルバーとして用いた。図 41 のフィラー部に Ag の熱抵抗率  $2.33 \times 10^{-3}(\text{W} \cdot \text{m} \cdot \text{K})$ 、樹脂部にエポキシの熱抵抗率  $3.33(\text{W} \cdot \text{m} \cdot \text{K})$  を代入し、Adventure Cluster を用いて解析した熱伝導解析の温度分布の結果を図 42 に示す。この温度分布の結果からバルクの熱抵抗率  $R_h$  を計算すると、 $R_{hVol}=0.072(\text{W} \cdot \text{m} \cdot \text{K})$  となった。この結果は、実測値  $R_{hVol}=0.72(\text{W} \cdot \text{m} \cdot \text{K})$  の結果と 10 倍程度の大きな乖離がある。

このバルク熱抵抗での実測値と界面の影響を考慮していない解析値との約 10 倍の差は、4.4.1 で考察した接触点平均熱抵抗での実測値と界面での熱損失の無い理論値との約 10 倍の差と同程度とみなせる。この結果は、解析により理論値を計算できることを示しており、本熱伝導解析手法が妥当であることを裏付けている。

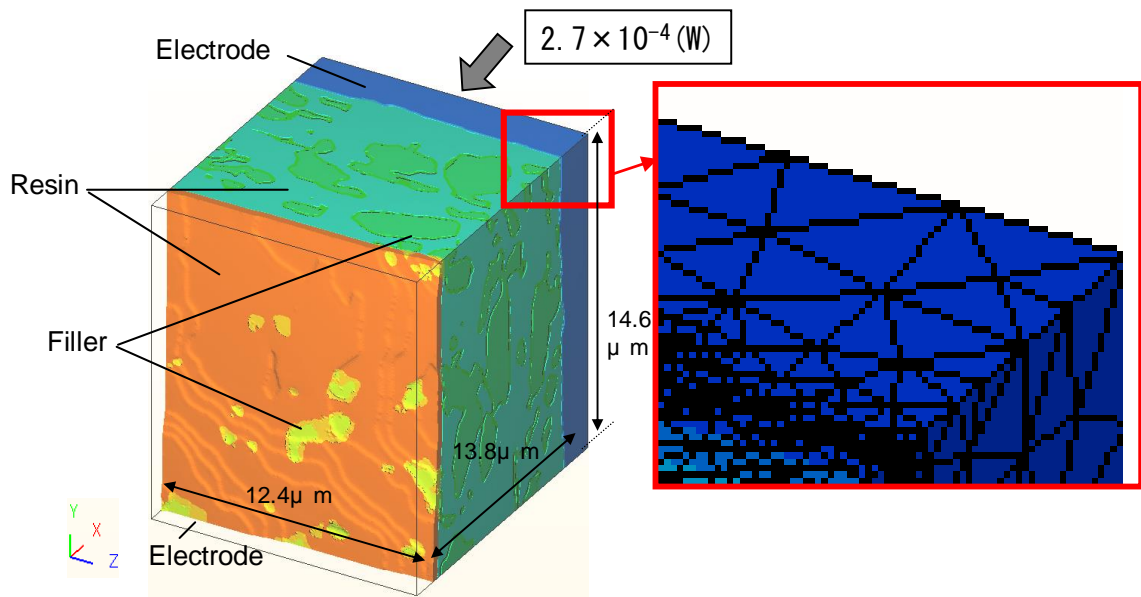


図 41 熱伝導解析モデル

Figure 41 Model of thermal conduction analysis.

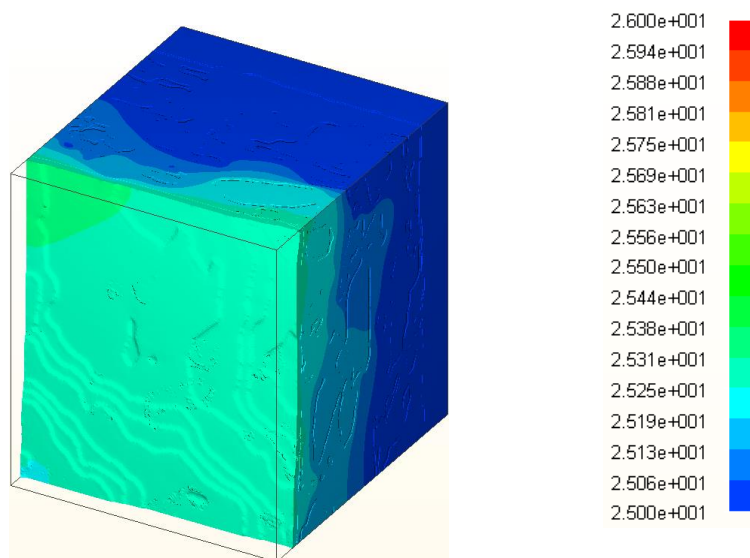


図 42 熱伝導解析の熱分布

Figure 42 Heat distribution of thermal conduction analysis.

### 4.4.3 界面を考慮した熱伝導解析

4.4.2 の解析では図 43 に示すようにフィラー同士の界面の接触点を一体として解析しているが、実際のサンプルでは図 44 に示すように、接触界面が存在し熱的な損失があると推測している。そこで、接触点の影響を考慮した解析を行う。図 45 に示すように、便宜上解析モデルのフィラー表面の 1 層を別要素化し、この表面要素の熱伝導率を変えていくことで界面熱抵抗を模した。この解析モデルは、2.4.2(2)の手法にに基づき作成した。別要素化した表面の厚み要素  $D$  は、本解析モデルの薄さの限界である約 80(nm)とした。

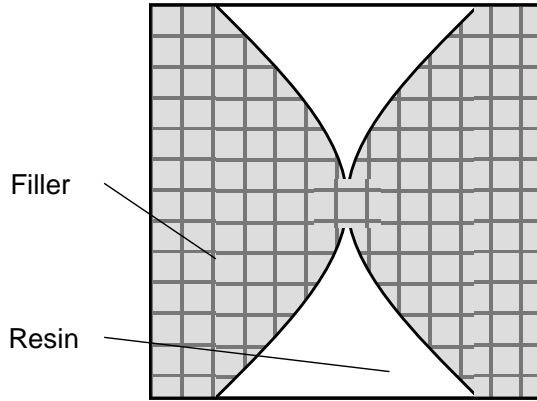


図 43 初期解析モデル

Figure 43 Initial analysis model.

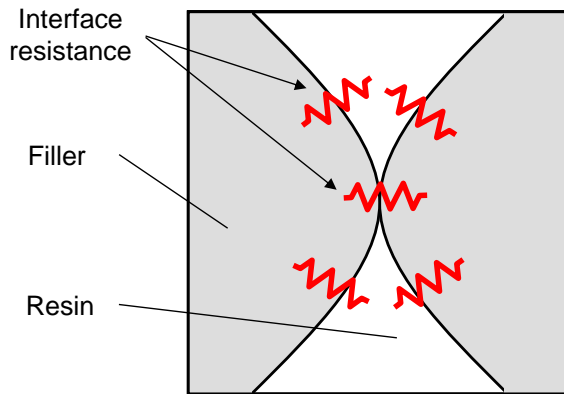


図 44 実際のサンプル

Figure 44 Actual sample.

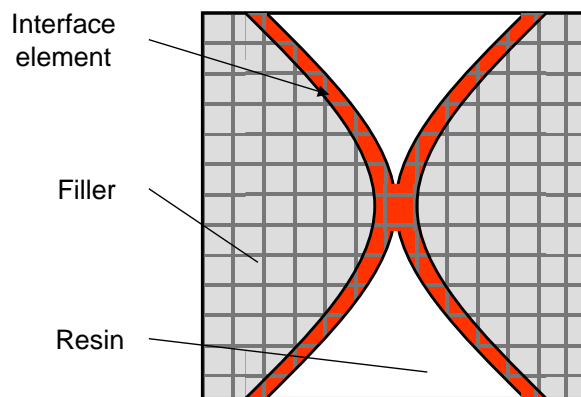


図 45 界面要素解析モデル

Figure 45 Interface element analysis model.

接触の影響を考慮するにあたり，表面要素の厚み  $D=80(\text{nm})$  の影響を除去するため，表面要素の熱抵抗にて整理した．熱抵抗  $R_h(\text{K}\cdot\text{W}^{-1})$  は，式(17)で示される．ここで  $\Delta T$  は温度差(K)， $Q$  は熱移動量(W)である．

$$R_h = \Delta T / Q \dots(17)$$

面積が  $A(\text{m}^2)$  であれば単位面積あたりの熱移動量は  $Q/A$  なので，単位面積あたりの熱抵抗  $R_h'$  ( $\text{K}\cdot\text{m}^2\cdot\text{W}^{-1}$ ) は式(17)とフーリエの法則より熱伝導率  $\lambda(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$  を用いて，式(18)の関係で示される．

$$R_h' = R_h \cdot A = D / \lambda \dots(18)$$

つまり単位面積での熱抵抗  $R_h'$  は  $R_h \cdot A$  で示され，熱伝導率の逆数に厚さ  $D=80(\text{nm})$  を乗じることで算出できる．この手法での解析結果を図 46 に示す．

横軸は  $D=80(\text{nm})$  の界面要素に代入した熱抵抗  $R_h'$  (入力データ) であり，縦軸はバルク全体の熱抵抗率  $R_{hVol}$  (出力データ) である．図中の縦の点線が界面要素にフィラーの熱抵抗を入れる，すなわち図 43 で示したフィラーが一体の場合の解析である．

界面要素の熱抵抗を増加させるほどバルクの熱伝導率が增大しており，妥当な傾向といえる．このプロットを用い，実測の熱伝導率  $0.72(\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K})$  から界面の熱抵抗を逆算すると，接触界面の平均の熱抵抗  $R_h \approx 4.28 \times 10^{-7}(\text{W}^{-1}\cdot\text{m}^2\cdot\text{K})$  と定量化できる．この結果は，Ag の厚さに換算すると  $183(\mu\text{m})$ ，樹脂の厚さに換算すると  $128(\text{nm})$  に相当する大きな熱抵抗が界面に存在することを示唆している．この界面熱抵抗は，フィラーと樹脂間の化学的な結合が少ないためと，フィラーと樹脂の弾性率の違いにより効率的に熱が伝わらないために生じしていると推測できる．

以上の解析により、平均的なフィラー界面の熱抵抗  $R_h$  が算出できた。  $R_h$  は平均的なフィラー界面の熱抵抗なので、フィラーの表面状態に違いがなければ同一の値を適用でき、フィラーの表面積の大小によるバルク熱抵抗への影響が予測できると考えた。ただし、本来であれば、ミクロなフィラーと樹脂の界面状態やフィラー間の接触状態の違いなどがバルクの熱抵抗にも影響するはずであるが、今回は熱抵抗においても便宜的に平均の熱抵抗にて考察している。

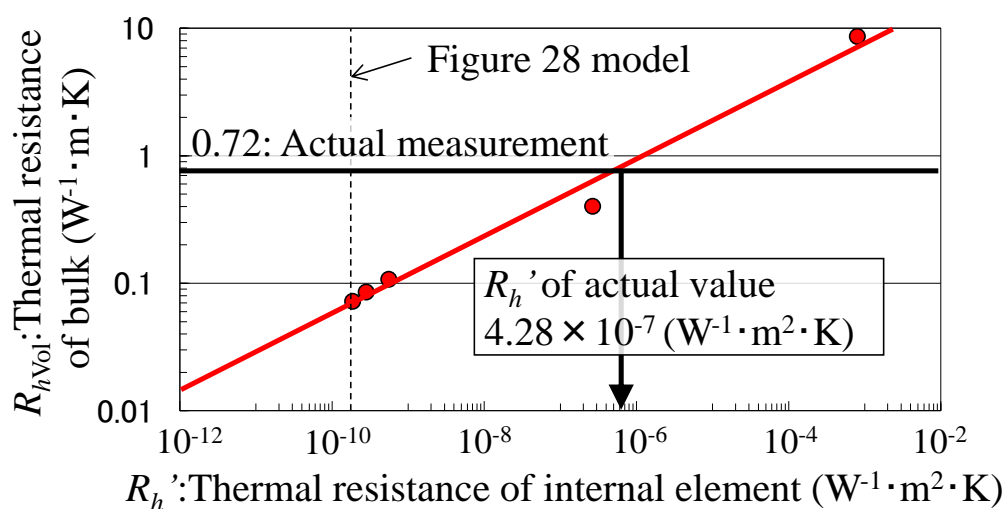


図 46 熱伝導解析結果

Figure 46 Result of thermal conduction analysis.

## 4.5 熱伝導の予測

### 4.5.1 考え方

熱伝導の予測式は多くの研究者たちにより提案されているが[11],[12], 今回は比較的予測値と実測値が合う, 式(19)で示される上利らの提唱した式[12]を用いて考察を行う.

$$\text{Log}(\lambda_{\text{Vol}}) = p \cdot \text{Log}(C_2 \lambda_f) + (1-p) \text{Log}(C_1 \lambda_m) \quad (19)$$

$\lambda_{\text{Vol}}$  はバルクの熱伝導率,  $\lambda_f$  は充填材の熱伝導率,  $\lambda_m$  は樹脂の熱伝導率,  $C_1$  は高分子マトリックスの高次構造に関する特性係数で通常 1 を用いる,  $C_2$  はフィラー界面や形状に関係した特性係数,  $p$  はフィラーの体積分率である. この式は実験的に  $C_2$  を算出することでバルク物性を求めることができる. 本考察では, 粒径等のフィラー形状が  $C_2$  に与える影響を検討した.

今回, バルクの熱伝導を各構成要素での熱抵抗の集合体と考え, 上記式を熱抵抗に換算する.

$R_{h\text{Vol}}$  をバルクの熱抵抗,  $R_{hf}$  を充填材の熱抵抗,  $R_{hm}$  を樹脂の熱抵抗とし, 式としての形をそろえるため  $1/C_2 = R_{fs}$  とすると, 式(19)は式(20)で表せる.

$$\text{Log}(R_{h\text{Vol}}) = p \cdot \text{Log}(R_{hf}) + (1-p) \text{Log}(R_{hm}) + p \cdot \text{Log}(R_{fs}) \quad (20)$$

式(20)の右辺の第1項, 第2項については, フィラー・樹脂それぞれの熱抵抗の総和( $R_{hf}, R_{hm}$ )の対数に体積分率を乗じることで示されている. バルク熱抵抗の構成要素は, フィラー・樹脂それぞれとその界面の3つから構成されている



と考え、第3項の  $R_{fs}$  は界面熱抵抗の総和になるとみなした。

$R_{fs}$  は熱伝導方向の垂直面の場合、フィラー表面積を  $S$  とすると、 $R_h'/S$  と比例し、 $S$  が大きいほどバルクの熱抵抗は小さくなる。一方熱伝導方向の場合、熱流束が通過するフィラーと樹脂の平均界面数を便宜的に  $n$  とすると、 $n$  は直列抵抗を形成する、すなわち  $R_{fs}$  は  $n$  に比例するため、(21)の関係が成立するとみなして考察する。

$$R_{hs} \propto n \cdot R_h' / S \quad (21)$$

ここで、フィラーの含有量が同じ場合、 $n$  はフィラーの充填数と比例すると考えた。フィラー充填数はフィラー1個当りの平均体積(球体の場合  $4\pi r^3/3$ )と逆比例するため、(22)の関係がある。

$$n \propto 1/r^3 \quad (22)$$

また、フィラーの充填量が同じ場合、(21)の  $S$  はフィラー短径  $r$  と逆比例する。

$$S \propto 1/r \quad (23)$$

(21), (22), (23)の関係より、式(20)は係数  $\alpha$  を用いて式(24)で示すことができた。

$$\frac{\text{全体項}}{\text{全体項}} = \frac{p \cdot \text{フィラ項}}{\text{フィラ項}} + \frac{(1-p)\text{樹脂項}}{\text{樹脂項}} + \frac{p \cdot \text{界面項}}{\text{界面項}}$$

(24)

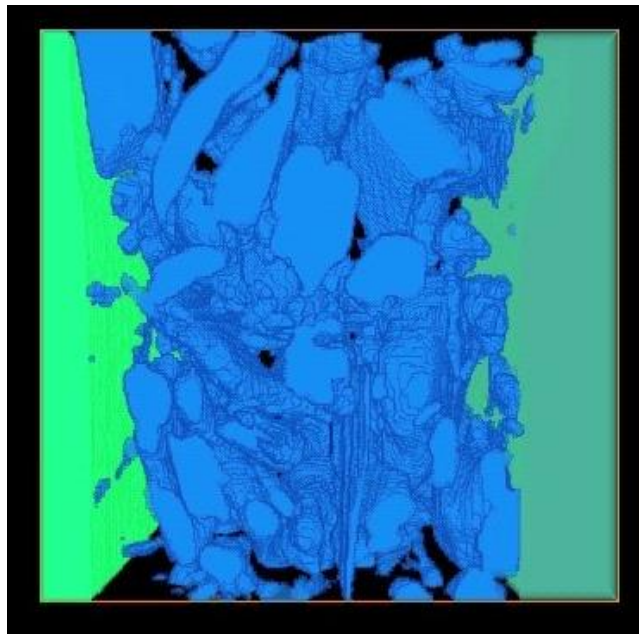
$\alpha$ は次元を持たず形状を表す係数であるため、今回は形状係数と定義し考察する。 $\alpha$ はフィラーの形状が同一であれば同じ値になるが、例えば毬栗（いがぐり）状など基本形状が大きく異なる場合や、同じ鱗片状でもアスペクト比が大きく異なる場合などは、形状係数 $\alpha$ は異なる値をとると考えられる。この式(24)を予測式として考察を行う。

式(24)において、左辺（全体項とする）は実験結果により計測可能な数値である。右辺第1項は、フィラーの熱抵抗 $R_{f,t}$ と配合比 $p$ により決定されるため、フィラー項とする。右辺第2項は、樹脂の熱抵抗 $R_{r,m}$ と配合比 $(1-p)$ により決定されるため、樹脂項とする。フィラー項と樹脂項は、それぞれの熱抵抗と配合比により計算することが可能であるため、全体項を計算するには右辺第3項（界面項とする）の決定がポイントとなる。

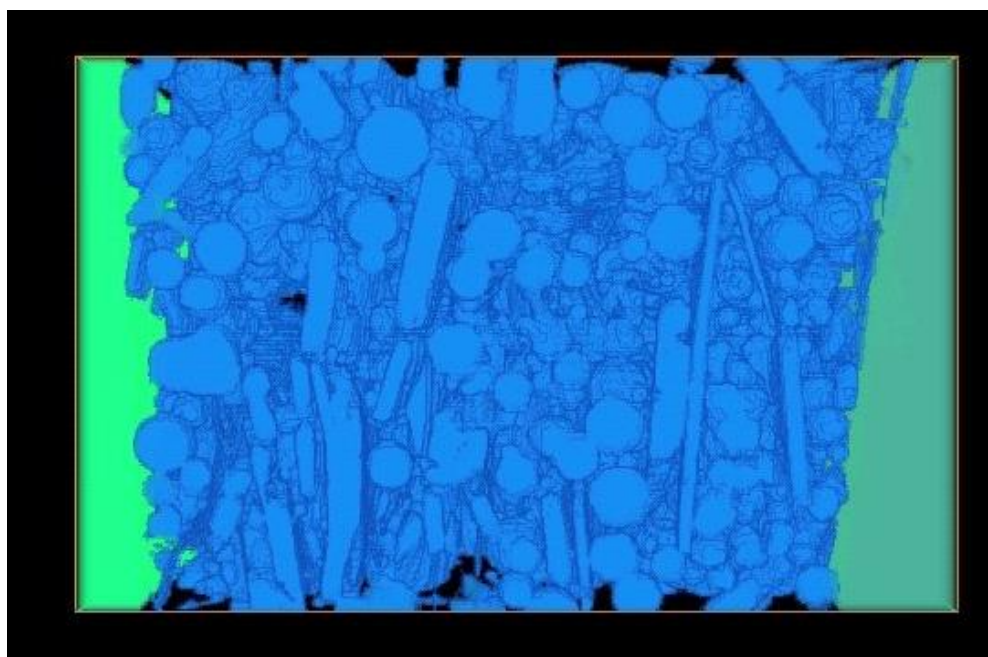
界面項において、フィラー短径 $r$ はFIB-SEMによって把握可能である。また、界面の熱抵抗 $R_{i,t}$ については、4.4.3で $R_{i,t} \approx 4.28 \times 10^{-7} (\text{W}^{-1} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{K})$ と算出している。故に、残る $\alpha$ が把握できれば、式(24)を用いた導電性接着剤のバルクの熱伝導率の予測が可能となる。本研究では、熱伝導率等の物性を把握しているSample Bについて物性予測を行い、その予測結果と実測結果を比較することで本予測手法の妥当性を検証する。

## 4.5.2 Sample Bの金属フィラー分散状態の把握

先ず、2章で記述したFIB-SEMにより観察した、Sample Bのフィラー分散状態を示す。比較のため図45の上側にSample Aの観察結果(図5と同サンプル)を、図45の下側に物性を予測するsample Bの観察結果を示す。Sample AとSample Bは同じ鱗片状のフィラーが入っているが、Sample Bの方が微細なフィラーを適用している。



(a) Sample A



(b) Sample B

図 47 Sample A と Sample B のフィラー分散状態  
Figure 47 Filler dispersion of Sample A and Sample B.

### 4.5.3 形状係数 $\alpha$ の決定

式(24)に今回の結果を導入し、 $\alpha$ の決定を行う。今回の検討により算出した Sample A の各パラメータを表 5 に示す[10]。フィラー、樹脂の熱抵抗、及びフィラーの含有率はカタログ値、それ以外の特性は今回測定、あるいは算出した値である。sampleA において、形状係数  $\alpha$  以外のパラメータは把握しているため、これらの値を式(24)に代入し、 $\alpha$ を計算した。その結果  $\alpha=2.15 \times 10^{-4}$  と算出できた。

表 5 Sample A の特性値  
Table 5 Parameters of Sample A.

Item		Contents	Unit	Sample A
Filler	$R_{ff}$	Thermal resistance of filler (Inverse of $\lambda_f$ )	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	$2.33 \times 10^{-3}$
	$l$	Minor axis of filler	m	$3.0 \times 10^{-6}$
Resin	$R_{hm}$	Thermal resistance of resin (Inverse of $\lambda_m$ )	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	3.33
Bulk	$\rho$	Volume fraction of filler	—	0.310
	$R'$	Thermal interface resistance per unit area	$W^{-1} \cdot m^2 \cdot K$	$4.28 \times 10^{-7}$
	$\alpha$	Shape factor	—	$2.15 \times 10^{-4}$
	$R_{hVol}$	Thermal resistance of bulk (Inverse of $\lambda_{Vol}$ , measured value)	$W^{-1} \cdot m \cdot K$	0.720

#### 4.5.4 Sample B の諸物性

$\alpha$  の算出により，今回の材料における予測パラメータを全て決定することができたので，予測式(24)とこれらのパラメータを用いて，Sample B のバルクの熱伝導率の予測を行う．なお，バルクの熱抵抗を測定すると，Sample A の  $0.72(\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K})$  に対し，Sample B は  $0.85(\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K})$  と，2 割程度高い値となっている．

Sample B の諸物性を表 6 に示す．Table 6 において，表中の左矢印( $\leftarrow$ )は，Sample A と同じパラメータを適用したことを示している．バルク材料を構成するフィラーはどちらも Ag，樹脂はどちらも同一配合組成のエポキシであり，Sample A と Sample B は同じ熱抵抗  $R_f, R_m$  を用いることができる．また，フィラー体積分率  $p$  は Sample A の 0.310 に対し 0.306 と同等程度であり，フィラーの短径  $r$  は，Sample A の  $3.0(\mu\text{m})$  に対し，Sample B は  $2.0(\mu\text{m})$  と小径フィラーを配合している．

Sample A と Sample B は，フィラーに対して同様の表面処理を行っているため同じ界面を形成していると考え，単位面積での平均的な界面熱抵抗  $R'_h$  は同じ値を適用する．また両材料は，フィラーサイズに違いはあるもののどちらも薄片状のフィラーが配合されており，凝集等の不均一性も確認されないため，今回は同じ形状係数  $\alpha$  が適用できると仮定して予測を行う．

表 6 Sample A と Sample B の特性値  
Table 6 Parameters of Sample A and Sample B.

Item		Contents	Unit	Sample A	Sample B
Filler	$R_{ff}$	Thermal resistance of filler (Inverse of $\lambda_f$ )	$\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K}$	$2.33 \times 10^{-3}$	$\leftarrow$
	$l$	Minor axis of filler	m	$3.0 \times 10^{-6}$	$2.0 \times 10^{-6}$
Resin	$R_{fm}$	Thermal resistance of resin (Inverse of $\lambda_m$ )	$\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K}$	3.33	$\leftarrow$
Bulk	$p$	Volume fraction of filler	—	0.310	0.306
	$R'$	Thermal interface resistance per unit area	$\text{W}^{-1}\cdot\text{m}^2\cdot\text{K}$	$4.28 \times 10^{-7}$	$\leftarrow$
	$\alpha$	Shape factor	—	$2.15 \times 10^{-4}$	$\leftarrow$
	$R_{fVol}$	Thermal resistance of bulk (Inverse of $\lambda_{Vol}$ , measured value)	$\text{W}^{-1}\cdot\text{m}\cdot\text{K}$	0.720	<b>prediction</b>

#### 4.5.5 Sample B の熱抵抗予測と妥当性検証

上記パラメータを式(24)に代入し、Sample B におけるバルクの熱抵抗を計算した。その結果、Sample B において、単位体積でのバルク熱抵抗の予測値は  $0.94(\text{W}^{-1} \cdot \text{m} \cdot \text{K})$  となる。これに対し Sample B の熱抵抗の実測値は、 $R_{hTotal}=0.85(\text{mK/W})$  なので、予測値と実測値の差は 9%程度の精度で予測できることが確認できた (図 48)。

今回の評価結果においては材料の熱抵抗の予測と実測の傾向は一致しており、界面熱抵抗や分散状態などのミクロな特性から、バルクの熱伝導率というマクロな特性を予測する本手法は妥当であると判断している。

熱伝導において、フィラーの粒径が大きくなると、伝導経路上で通過する熱抵抗の大きいフィラー界面数が減るため、経路 1 本当たりの熱伝導が大きくなる一方、ネットワーク全体の経路数は少なくなる。今回の検証で、フィラーの粒径が大きい Sample A の方がバルクの熱伝導が大きいことから、経路 1 本あたりの熱伝導増大の方が、経路数の減少より、バルクの熱伝導に与える寄与度が大きいことが確認できた。但し、フィラーが一定の大きさを超えると、パーコレーションネットワークを安定的に形成できなくなり、大きく熱伝導が低下すると考えている。

また、フィラー含有率を増やすと、ネットワークの経路数が増えるため、熱伝導も大きくなるはずである。しかし、実際にはフィラーを拘束する樹脂のバインダーとしての機能を有するためのフィラー含有量の上限値が存在し、フィラー含有量が上限値を上回ると、バインダーの樹脂不足により樹脂中のフィラーを拘束できないため、パーコレーションネットワークを形成できなくなり、大きく熱伝導が低下すると考えている。

今後、本予測手法の適用可能範囲を見極めるため、上記考え方に基づき、フィラー量が違うサンプル等で予測の正確性を検証したうえで、毬栗状などフィラーの形状を意図的に変えたサンプルについて同様の評価を行っていき、形状係数の差異を把握していきたい。

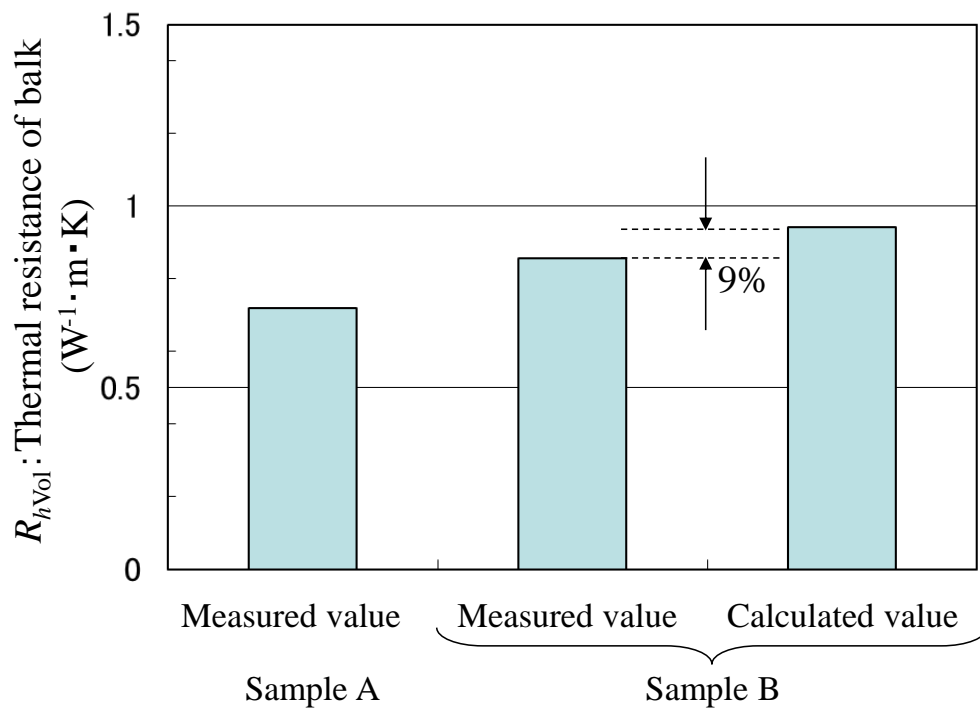


図 48 Sample B の予測値の妥当性  
 Figure 48 Validation of prediction in Sample B.

## 第 4 章の参考文献

- [1] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric and thermal resistance analysis on metal filler interface in electrically conductive adhesive,” Journal of IEICE, Vol.J99-C, No.8, pp. 348-356, Aug. 2017
- [2] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric resistance analysis between metals in electrically conductive adhesive,” Journal of IEICE, Vol.J99-C, No.12, pp. 684-692, Dec. 2016
- [3] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The 3D-visualization of conductive pathway between electrodes in conductive adhesive,” Journal of Japan Institute of Electronics Packaging, Vol.16, No.2, pp127-135, Feb.2013, doi: 10.5104/jiep.16.127
- [4] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “A study of interface thermal resistance and bulk thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” Journal of Smart Processing, Vol.3, No.4, pp199-204, April. 2014, doi: 10.7791/jspmee.3.199
- [5] O. Arao, “Quantification of interface thermal resistance and prediction of thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” SAE Technical Paper 2015-01-0695, 2015, doi:10.4271/2015/01-069510.5104/ jiep.16.127
- [6] 長島昭,” 熱物性値測定法 その進歩と工学的応用,” 日本機械学会, 1991
- [7] 尾崎良平, 長村光造, 足立正雄, 田村今男, 村上陽太郎,” 金属材料基礎学,” 朝倉書店, 1978



- [8] P.G. Young, T.B.H. Beresford-West, S.R.L. Coward, B. Notaberardino, B. Walker, A. Abdul-Aziz, "An efficient approach to converting three-dimensional image data into highly accurate computational models," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, Vol.366, No.1878,pp.3155-3173, June.2008,doi: 10.1098/rsta.2008. 0090
- [9] O.C. Zienkiewicz, R.L. Taylor, J.Z.Zhu," *The finite element method, Its basis & fundamentals 6th edition,*" Butterworth-Heinemann, 2005
- [10] 山田悦郎, "熱物性," Vol.3, pp.78, 1989
- [11] J.C.Maxwell," *A Treatise on Electricity and Magnetism,*" Vol. 1, p.440, Dover, New York ,1954, 等.
- [12] Y.Agari, A.Ueda, S.Nagai," *Thermal Conductivity of a Polymer Composite.*", *J. Appl. Polym. Sci.*,49, 1625 ,1993

# 第 5 章

## 結論

## 5. 結論

本論文は、導電性接着剤の最適なフィラー選定に繋げるため、電気と熱の導電メカニズムを明らかにすることを目的として研究した。

まず 2 章にて、**FIB-SEM** により導電性接着剤内部を観察することで、内部の金属フィラーの分散状態を 3 次元的に正確に把握した。更に、細線化処理を施すことで、パーコレーションネットワークを導電経路として初めて可視化した。

次に 3 章にて、電気伝導に関する解析を行った。2 章で可視化した伝導経路から、フィラーの接触点数を計測し、平均的な 1 点当たりの接触抵抗を算出した。更にこの結果を利用し、導電性接着剤バルクの電気抵抗を予測した。そして、この予測値と実測値を比較することで、本手法が妥当であることを検証した。

また 4 章にて、熱伝導に関する解析を行った。先ず、電気抵抗と直接関係する自由電子による伝熱と、樹脂などの分子のフォノンによる伝熱の影響について考察し、分子のフォノンの影響が大半を占めることを見出した。そこで、樹脂のフォノンの影響も加味できる有限要素法による熱伝導解析を行った。特に、フィラー界面を別要素化することで、界面の影響を考察した。その結果から、フィラー界面の熱抵抗を定量化することができた。更にこの結果を利用し、熱においても導電性接着剤バルクの熱抵抗を予測した。そして、この予測値と実測値を比較することで、本手法が妥当であることを検証した。

同様の検討を行えば、例えばフィラー表面処理や形状の影響を定量化するなど、フィラーの素性がバルクの電気抵抗や熱抵抗に与える影響が明確化できるはずである。これらの予測方法をベースにし高分子複合材料の電気伝導性や熱伝導性に関する材料の因子を明確化し、フィラーの最適選定が可能となる。

また、樹脂中の充填物の分散を解析モデル化できる本技術は、シリカ等のフィラーを充填した構造材料や磁性材料、あるいは繊維強化材料など他の機能を有する複合材料に対しても応用が期待できるため、今後これらの材料に対する研究を進めていきたい。

## 関連発表論文

### 投稿論文

- [1] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric and thermal resistance analysis on metal filler interface in electrically conductive adhesive,” Journal of IEICE, Vol.J100-C, No.8, pp. 348-356, Aug. 2017
- [2] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The electric resistance analysis between metals in electrically conductive adhesive,” Journal of IEICE, Vol.J99-C, No.12, pp. 684-692, Dec. 2016
- [3] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “The 3D-visualization of conductive pathway between electrodes in conductive adhesive,” Journal of Japan Institute of Electronics Packaging, Vol.16, No.2, pp127-135, Feb.2013, doi: 10.5104/jiep.16.127
- [4] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “A study of interface thermal resistance and bulk thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” Journal of Smart Processing, Vol.3, No.4, pp199-204, April. 2014, doi: 10.7791/jspmee.3.199
- [5] O. Arao, “Quantification of interface thermal resistance and prediction of thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” SAE Technical Paper 2015-01-0695, 2015, doi:10.4271/2015/01-069510.5104/jiep.16.127

## 国際会議

- [1] O. Arao, A. Shintai, A. Sugiura, “Thermal and Electric Conductive Analysis in Isotropical Conductive Adhesive by Modeling 3D Fillers Dispersion Observed by FIB-SEM,” IEEE CPMT (Components, Packaging, and Manufacturing Technology) Symposium Japan (ICSJ), July 2012
- [2] O. Arao, “Quantification of interface thermal resistance and prediction of thermal conductivity by observation of stereoscopic filler dispersion in polymer composites,” SAE 2015 World Congress, April, 2015

## 国内学術講演会

- [1] 荒尾修, 新帯亮, 杉浦昭夫, “導電接着剤における電極間導電経路の3次元可視化,” 第21回マイクロエレクトロニクスシンポジウム(MES 2011), 2011年9月
- [2] 荒尾修, 新帯亮, 杉浦昭夫, “高分子複合材料におけるフィラーの立体的な分散把握による界面熱抵抗定量化と熱伝導率予測,” 第20回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム(Mate2014), 2014年2月
- [3] 荒尾修, 新帯亮, 杉浦昭夫, “電性接着剤内部の金属間における界面電気抵抗解析,” 2017年電子情報通信学会総合大会, 2017年3月
- [4] 荒尾修, “放熱材料内部フィラーの3次元パーコレーションネットワークの観察と界面熱抵抗解析,” 材料学会 東海支部 第12回材料学術講演会, 2018年3月

## 受賞

2011年9月 MES2011での講演

国内学術講演会[1], “導電接着剤における電極間導電経路の3次元可視化”に対して, 一般財団法人エレクトロニクス実装学会より, ベストペーパー賞受賞

2013年2月 エレクトロニクス実装学会誌への投稿論文

投稿論文[3] “導電性接着剤における電極間導電経路の3次元可視化” に対して, 一般財団法人エレクトロニクス実装学会より, 論文賞受賞

2014年2月 Mate2014での講演

国内学術講演会[2], “高分子複合材料におけるフィラーの立体的な分散把握による界面熱抵抗定量化と熱伝導率予測”に対して, 一般社団法人スマートプロセス学会より, 技術開発論文賞受賞

2018年3月 材料学会東海支部 第12回材料学術講演会での講演

国内学術講演会[4], “放熱材料内部フィラーの3次元パーコレーションネットワークの観察と界面熱抵抗解析”に対して, 一般社団法人材料学会より, 優秀講演賞(技術分野)受賞

# 謝辞

本論文は、筆者が所属する株式会社デンソーで行った技術開発に伴う研究成果を博士論文としてまとめたものです。関係学会での発表も含め、本研究により電子実装技術の発展に少しでも貢献できれば幸甚です。

本論文の作成にあたり、筆者が九州大学大学院修士課程に在籍していた時の指導教官であられた鹿児島大学の池田 徹 教授より、懇切丁寧なご指導、及び手続き上のご助言を賜りました。また、同じく大学院の時にご指導いただいた、宮崎 則幸先生（現在、北九州市環境エレクトロニクス研究所 所属）より、ご助言を賜りました。大学院の時に両先生にご指導頂けたことは筆者の幸せであり、研究者としてのあり方を学ぶことができました。心より敬意と感謝を申し上げます。

本論文を完成するにあたり、鹿児島大学の駒崎 慎一教授、ならびに佐藤 紘一准教授には、多くの的確なご助言を頂きました。また、芝浦工業大学の荻谷 義治教授には、導電性接着剤の解析などで専門的なご助言を頂きました。深く感謝いたします。

本論文の研究を遂行するにあたり、筆者が所属する株式会社デンソー材料技術部の諸氏には研究の機会と多大なご援助をいただきました。特に、筆者の上司にあたる新帯 亮氏には、基礎評価から理論構築まで多大なご助言、ご協力を頂きました。心より御礼申し上げます。

また、株式会社 JSOL の宮崎 美季氏には解析モデル構築におけるご協力を、日東分析センターの佐藤 大介氏には FIB-SEM 観察におけるご協力を頂きました。厚く御礼申し上げます。

最後に、筆者の研究活動を支えてくれた家族に感謝いたします。

以上