

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	エポキシ樹脂硬化物の構造と接着特性に関する研究
Title(English)	Studies on Structure and Adhesion Property of Epoxy Thermosetting Resin Composite
著者(和文)	市川 功
Author(English)	Isao Ichikawa
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9963号, 授与年月日:2015年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:浅井 茂雄,扇澤 敏明,安藤 慎治,佐藤 満,塩谷 正俊
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9963号, Conferred date:2015/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

# 論文要旨

## THESIS SUMMARY

専攻： Department of	物質科学	専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 （工学）
学生氏名： Student's Name	市川 功		指導教員（主）： Academic Advisor(main)	浅井 茂雄
			指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	

### 要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

本論文は「Studies on Structure and Adhesion Property of Epoxy Thermosetting Resin Composite」（エポキシ樹脂硬化物の構造と接着特性に関する研究）と題し、6 章より成る。

第 1 章「General Introduction」（序論）では、高分子材料製品開発における設計および解析技術動向と課題を説明するとともに、本論文の目的及び意義を記した。

第 2 章「Structure and mechanical properties of epoxy resin composite introducing mesogenic framework」（メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂の構造と力学特性）では、メソゲンの一つであるビフェニル骨格をエポキシ樹脂のマトリックスに導入した時の力学特性について検討した。修飾基を持たないビフェノール分子を組成物として用いることで、ゴム領域での弾性率が低く、且つ線膨張の小さい硬化物が得られることを見出し、さらにこれを応用し、優れた接着性を発現する半導体封止材料を設計するに至った。平面構造を有し、液晶性を発現するビフェニル骨格の構造に起因し、熱膨張係数が小さくなり金属材料との接着界面で発生する熱応力の抑制につながっていると結論づけた。

第 3 章「Phase structure and adhesive property of epoxy resin composite introducing mesogenic framework」（メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂の相構造と接着特性）では、第 2 章において得られた高い接着特性を示すエポキシ硬化材料の相構造について検討した。本材料系が、ビフェノール分子の含有量の異なる二相のドメインが分布するポリドメイン構造をとり、混練条件を変えることによりドメインの大きさが変化することを明らかにした。さらに、ドメインの小さい構造を形成するものは線膨張が小さく、金属被着体に対してさらに高い接着性を示すことを見出した。ビフェノール分子含有量が高く線膨張の小さいドメインが隣接するドメインの膨張を抑制するため、ドメインの比表面積が大きいとき、バルクの線膨張が小さくなると考察した。

第 4 章「Quantitative analysis of phase-separated structure and mechanical properties of acrylic copolymer/epoxy thermosetting resin composite」（アクリル共重合体/エポキシ混合系材料の相分離構造の定量的評価と力学特性）では、エポキシ材料とアクリル共重合体の混合物が示す相分離構造を画像解析法により評価し、構造及び機械的強度の発現機構を検討した。エポキシ成分リッチな島相の粒径分布解析により、構造形成過程が微細に分離したドメインを基にこれらが集積して成長する比例効果則により説明される。また、設計値から期待される値を大きく下回る島相の面積割合が、海相に残存するエポキシ成分の存在を示し、これが硬化物の破壊過程に影響を与えることを明らかにした。すなわち、島相の面積割合の小さなものは、両相の物性的差異が小さいため、引張強度測定において破壊が相境界を貫き、より大きな外力を必要とするため、高い強度を示す結果が得られたと結論づけた。

第 5 章「Phase-separated structure and adhesion properties of acrylic copolymer/epoxy thermosetting resin composite」（アクリル共重合体/エポキシ混合系材料の相分離構造と接着特性）では、4 章で検討した混合材料を基本組成とした半導体用接着フィルムについて、相分離形態を分類することを提案するとともに構造の大きさを定量化し、破壊モードの異なる 2 種の測定での強度及び破断面形状との関係を検討した。破壊じん性測定では、相関長が長いほど破断面粗度が大きいものの、強度は相関長に依存しないことを明らかにした。せん断強度試験では、破断面粗度及び強度は相分離形態に大きく依存し、「共連続構造」、「境界の曖昧な海島構造」、「明瞭な海島構造」の順に高い値を示し、分類した相形態の中で相関長に依存する傾向を示すことを明らかにした。さらにこれを応用し、共連続構造を示し、且つ相関長の大きい構造を有することにより、半導体内部の接着界面において主に発生するせん断方向の応力に対して高い耐性を示す優れた半導体用接着フィルムを設計するに至った。

第 6 章「Conclusion」（結論）では、本研究で得られた結果を総括した。

以上を要するに、本論文は、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂、及びアクリル共重合体/エポキシ混合系材料の相構造と力学特性、接着特性との関係を明らかにし、接着特性に優れた半導体封止材料及び半導体用接着フィルムの開発に結びつけたものである。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

## 論文要旨

### THESIS SUMMARY

専攻：物質科学 専攻  
Department of  
学生氏名：市川 功  
Student's Name

申請学位(専攻分野)：博士 (工学)  
Academic Degree Requested Doctor of  
指導教員(主)：浅井 茂雄  
Academic Advisor(main)  
指導教員(副)：  
Academic Advisor(sub)

要旨(英文 300 語程度)  
Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis is entitled "Studies on Structure and Adhesion Property of Epoxy Thermosetting Resin Composite", and is formed with 6 chapters.

**In Chapter 1** "General Introduction", the purpose and the significance of this thesis were described.

**In Chapter 2** "Structure and mechanical properties of epoxy resin composite introducing mesogenic framework", the effects of introducing the mesogenic moieties like the biphenyl type on the mechanical property of cured epoxy thermosetting resin were evaluated. Introducing the biphenyl moieties effected on the structure of epoxy resin network, resulting the low elastic modulus and low thermal expansion coincidentally.

**In Chapter 3** "Phase structure and adhesive property of epoxy resin composite introducing mesogenic framework", the effects of the phase structure of the epoxy thermosetting resins using biphenyl molecule on the adhesion property were evaluated. This resin system formed poly-domain structure after curing and its aspect was affected by mixing process. Their thermal expansion was suppressed with small domain size.

**In Chapter 4** "Quantitative analysis of phase-separated structure and mechanical properties of acrylic copolymer/epoxy thermosetting resin composite", the effect of thermal curing reactivity on phase structures of acrylic copolymer/epoxy thermosetting resin composite was investigated with the samples containing various accelerator amounts. These composites exhibited a sea-island structure, for which the island size decreased as increasing the amount of accelerator. The island diameter distribution was represented by a lognormal plot. Thus, the island formation was explained by the law of proportionate effect. As observed during the last stage of phase separation via spinodal decomposition, fine island domains were generated before growing and coalescing.

**In Chapter 5** "Phase-separated structure and adhesion properties of acrylic copolymer/epoxy thermosetting resin composite", the influence of phase separated structure aspects on the mechanical properties of adhesive materials was investigated. The samples had co-continuous structure provided rougher fracture surface and the larger share strength depending on the correlation length.

**In Chapter 6** "Conclusion", each study was summarized and the general conclusion was provided.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。  
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).