< 綜 説 >

(受理:平成14年11月25日)

導電性接着剤
Conductive Adhesive小日向 茂^{*}・石川 治男^{*}・志賀 大樹^{*}・大山千鶴子^{*}
Shigeru KOHINATA, Haruo ISHIKAWA, Daiki SHIGA
and Chizuko OOOYAMA

はじめに

近年、電子機器の小型化・軽量化及び高機能化には目覚ましいものがある。特に携帯電話をはじめとするモバイル機器では、部品をより高密度にしかも効率良く実装することが必要となっている。この技術を支える上で接合材料についても新しい試みが始まっている。従来から使用されているPb(鉛)はんだはPbの環境・人体への問題から使用が敬遠されており、代わってPbフリーはんだが既に実用化されているが、更に進めて導電性接着剤による素子接続方法がポストソルダリング技術として注目を浴びてきている。導電性接着剤は既に半導体集積回路(IC)を基板に接合する場合に広く使用されているが、この機能を更に発展させ接合力・電気的接続性・熱伝導性等ではんだに匹敵する特性の開発が進められている。導電性接着剤の使用は、安全性のみならず省エネ・リサイクルの容易性・低温接続性・使いやすさ等の利点もある。

本稿では導電性接着剤の組成・特性の概要と新たに高機能化が求められている用途への接合性・熱伝導性・周波数特性について最近の動向を概説する。

1. 導電性接着剤の概要

電子・電気用途に導電性接着剤が使用され始めて40数年が経つといわれている。初期の導電性接着剤は基板上のリード線や挿入部品の固定などに僅かに使用されて

いた。現在のようにICの接合に使用されたのは、'70年代に米国でミサイルのコントロール部に搭載されたものが最初とされている。この時の接着剤は軍の依頼を受けたMITの研究所により開発されたものであった。既に、この時点で一液加熱硬化型のバインダー(エポキシ樹脂+潜在性硬化剤)に導電性金属微粉末を分散させた現在の導電性接着剤の基本形は出来上がっている。この導電性接着剤が従来の金を含む共晶系の接合材に比較し安価で、かつ使用可能な耐熱耐湿性及び接合性を持つことも確認されている。更に、接合機構が従来の金属間結合から有機結合主体となることで、接合後のICチップにかかる熱的・機械的な応力の緩和が可能なることから、集積度増加によるICチップの大型化への対応策として認知されるようになった。しかし、その後、導電性接着剤で接合されたICの一部に恒温恒湿条件下で誤動作するものが認められた。この原因は、IC表面に付着した水分がバインダー中のNa, Cl, K等の不純物をイオン化し、それによるIC表面の微細デバイス(AI配線)の腐食やショートであることが日本の研究者により突き止められた。程なく国内において対策が講じられその後類似の誤動作が激減したことから、IC用導電性接着剤の使用が一気に拡大した。このことが日本のメーカーの品質と信用を高め、現在に至っている。

近年、環境問題に端を発したPbフリー化、リサイクル性、安全性、省エネ等の観点から、これらを満足できる導電性接着剤の新用途展開へ期待が高まってきている。図1に導電性接着剤の特性・性状の概要と、特許動向を示す。

2. 導電性替接着剤の組成・特性

導電性接着剤(一液加熱硬化型/高粘稠液体)は、樹脂・潜在性硬化剤・添加剤の混合物であるバインダーと

^{*}住友金属鉱山(株)電子事業本部事業開発センター
東京都青梅市末広1-6-1 〒198-8601
Sumitomo Metal Mining Co., Ltd
Electronics Division Business Promotion Center
6-1, Suehiro-cho, 1-chome Ome-shi, Tokyo 198-8601
Japan

図1 (1) 導電性接着剤の特性・性状

図1 (2) 導電性接着剤関連特許の出願件数(特許庁調べ)

図1 (3) 導電性接着剤の出願人国別出願比率
(1978~98/11: 公開/特許庁調べ)

導電性を有する金属粉末、及び粘度調整用の希釈剤を適宜混合しロールミル等で強制分散させることにより作られる。このような導電性接着剤は、非導電性接着剤や導電性インキと異なり非ニュートン流体の粘性区分に入る。これは、導電性接着剤が液状樹脂に固体微粒子(金属粉末・硬化剤・分散剤)を懸濁させた高分散系溶液となっているため、液中の固体微粒子間の凝集力により液体でありながら液内部を微視的に見れば固体的な凝集構造をつくり、外部から加わるストレス(荷重)により固体的な凝集構造から液体領域まで見かけ変化する流体構造のためである。この変化を利用することで微小かつ精密でグレの少ない形状塗布やファインライン印刷を可能にし

ている。図2・表1に代表的な導電性接着剤の組成・特性を示す。これらの特性を満たす為に、組成や原材料には工夫がされている。

バインダーに使用される樹脂は、硬化物の耐熱・耐湿・耐電気特性・接着力等でバランスが取れているエポキシ樹脂が主に用いられている。このエポキシ樹脂は前出のAl配線腐食やソフトエラー(金属イオンの付着によりデバイス表面のショート、電位変動が生じ正常な作動が妨げられる)を生じさせないようにNa, K, Cl等の不純物イオンの含有率が極めて低く抑えられており、その分子構造・分子量・製造方法の規定や分子蒸留等の操作、更には高温加圧水による不純物の抽出試験等が荷せられた高純度品となっている。なお

構成物	形態・特性	役割
添加剤	分散剤	充填剤の分散性向上 凝集防止
	カップリング剤	接着性、皮膜物性の改善
希釈剤	反応性希釈剤	粘度調整(硬化性、接着性に影響)
	非反応性希釈剤	粘度調整 (硬化課程で蒸発)
硬化剤	潜在性硬化剤	樹脂の硬化(一液性)
	促進剤	硬化反応促進・短時間硬化
樹脂	エポキシ樹脂	バインダーの骨格
充填剤	Ag, Au, SiO ₂ , Al ₂ O ₃	電気伝導性・熱伝導性

図2 導電性接着剤の組成概要

潜在性硬化剤との組み合わせや作業性・粘性の見地から、用いられるエポキシ樹脂は限定される。潜在性硬化剤は常温では硬化反応が進行し難いように変性されたアミン、アミド、フェノール樹脂等が用いられている。これらは微細粉末化され樹脂に混合される。広く知られているDICY(ジシアンジアミド)はCO₂やアンモニアガスを発生させるとの理由で近年使用が控えられており、無水フタル酸等の酸無水物硬化剤も硬化後の吸湿において遊離酸を発生するという理由から使用されていない。BF₃のようなルイス酸硬化剤もソフトエラーの原因となると言われ現在では使用されていない。代表的な樹脂と潜在性硬化剤の例を表2に表す。添加剤は、導電性接着剤の

表1 導電性 (はんだ代替用) 接着剤の特性概要

項目		単位	代表値	測定方法
外観		—	銀色ペースト状	目視
粘度 (25℃)		Pa・s	65	HBT 粘度計 (50rpm)
チクソ性		—	0.6	10/50rpm
不揮発分		wt%	98	200℃×2h
銀含有量		wt%	78	滴定分析
体積抵抗率		Ω・cm	7×10^{-4}	四端子法
ガラス転位温度		℃	140	TMA 法
接着強度		kgf	10	Si (1.5mm チップ), 室温
熱間強度		gf	300	Si (1.5mm チップ), 350℃・20sec
接触電気抵抗	チップ抵抗器	外部電極 Ag/Pd	mΩ	3216R, 加重 1g
		市販品	mΩ	
接着強度	チップ抵抗器	外部電極 Ag/Pd	kgf	3216R, 加重 1g, 水平剥離強度 加重速度 0.5mm/s
		市販品	kgf	
	チップ抵抗器	外部電極 Ag/Pd	kgf	3216R, 加重 1g, 引っ張り強度 (スルーホールからの突き上げ剥離強度)
		市販品	kgf	

(* 住友金属鉱山 (株) 試作品)

表2 バインダーの樹脂・潜在性硬化剤の例

エポキシ樹脂	潜在性硬化剤・促進剤
芳香族系 ビスフェノール-A (BA) 型 ノボラック型 ジフェニルメタン (DDM) 型 ビフェニル型 脂肪族系 水溶性ビスフェノール-A型 ポリプロピレングリコール型	(XY: CH ₃ , NO ₂ 等, R: アルキル基, アリール基等)

特性向上や改質の目的で微量混合される。

導電粉末は、Ag 微細粉が多く用いられている。電気的に面接触が取り易いフレーク状（鱗片状）が主体であるが、流動性・作業性・充填密度等の向上のため球状の微細粉末を適宜混合することが多い。Ag の他に Au, Cu, Ag, Pd (合金) の粉末も一部で使用されている。更に Ag コート Cu 粉や Au メッキされた微細樹脂ポー

ルなどの使用もある。これらの金属粉末はバインダー中で、凝集・分離・沈降を防ぐため粉末表面にステアリン酸等の極薄い脂肪酸のコーティングが施されている。この脂肪酸の種類とバインダー成分の相互作用により同一の金属粉末を用いても抵抗値・接合強度・保存安定性等に影響を及ぼすことが知られている。

希釈剤は導電性接着剤の粘性を調整し、印刷やディス

表3 希釈剤の特徴

導電性接着剤中の希釈剤種類	利点	欠点
反応性希釈剤 (無溶剤タイプ)	<ul style="list-style-type: none"> * 硬化時の脱ガス、ボイドが少ない * タックフリータイムが比較的長い * 硬化時の重量減少が少ない * 硬化収縮を小さくできる 	<ul style="list-style-type: none"> * 希釈効率が低いものが多い * 加水分解性塩素等の不純物の含有がある * 硬化剤・促進剤との組み合わせが必要で選択範囲が狭い
非反応性希釈剤 (溶剤タイプ)	<ul style="list-style-type: none"> * 希釈効率が低いものが多い * 希釈剤の選択範囲が広い * 作業性をコントロールし易い * 不純物低減・人体への安全性が高い 	<ul style="list-style-type: none"> * 硬化時の脱ガス、ボイドが多い * タックフリータイムが比較的短い * 硬化時の重量減少・硬化収縮が大きい

ペンス時の塗布を可能とするために用いられる。

この用途には、潜在性硬化剤と硬化反応が可能で接着剤硬化物中に取り込まれる反応性希釈剤、潜在性硬化剤と硬化反応をせず、硬化時の加熱により分解飛散する非反応性希釈剤に分けられる。導電性接着剤中に前者の希釈剤を含んだものを無溶剤型、後者の希釈剤を含んだものを溶剤型と呼ぶ。表3に夫々の特徴を示す。

3. 高機能導電性接着剤の動向・特性

3.1 Sn(錫)との接合安定性

導電性接着剤を用いて部品を基板へ接合する場合、その接合強度は重要な特性の一つである。ICチップの接合における導電性接着剤はチップ下面(全面)と基板側(Au, Ag, Cu, Ag, Pd)の相関接合に限られていた。しかし、近年のPbフリー化に伴い実装部品の電極や基板電極材料にはSnやSnを含む金属が多用されてきており、また、はんだ代替用途に使用される場合はチップ部品(チップ抵抗、チップコンデンサ等)の両端の電極部やモールド部品の外部リードのみを介して基板に接合されることから、端面電極と基板電極との両界面での低接触電気抵抗と高接合力が求められている。更にSnを含むいくつかの電極面に対しては、導電性接着剤の接合特性が安定しないという問題も起きている。図3に電極面がSnとAg, Pdの場合における導電性接着剤の室温での接続抵抗と接合強度(チップの水平剥離強度)の変化を示す。尚、試験には32-16サイズのジャンパーチップ抵抗(抵抗値0Ω/端面電極は夫々Sn及びAg, Pd)を用い電極を挟んで

図3 Sn, Ag/Pd電極に対する導電性接着剤*の特性
(3216ジャンパーチップ/Cu配線ガラエポ基板)

*住友金属鉱山(株)

ガラエポ基板のCu配線上に導電性接着剤で接合した。硬化は150℃・30分(オープン)とした。

Sn電極に対し、導電性接着剤の電気抵抗や接合強度が劣化する理由は、Snの酸化膨張によりSnと導電性接着剤の界面で剥離又はマイクロクラックが生じることが要因とされている。この対策としてSn表面の酸化防

止処理を行うことで接合安定性を確保する試みも行われている。しかし、図3の結果からSn面に空气中で高温のみを与え酸化を促進した場合は接続電気抵抗や接合強度の変化が少ないこと、断面のSEM（示差走査型電子顕微鏡）、TEM（透過型電子顕微鏡）観察においてSn面と導電性接着剤との剥離が認められにないにも関わらず接続電気抵抗や接合強度が劣化しているものがあること、適当な恒温恒湿条件（85℃、85%）を与えることで比較的短期間で不具合が観察されることから、必ずしもSn面の酸化のみでは無いと考えられる。実際に、不具合を生じた試料についてSn面と導電性接着剤の界面を詳細にEPMA（電子線マイクロアナライザー）で調べてみるとSnが接着剤層の中から検出されており、Snイオンが導電性接着剤層へ拡散していることもうかがえる（図4）。これがどのように不具合の要因となるか詳しいメカニズムは未だ明らかではないが、Snイオンが

エポキシ樹脂硬化物に化学的影響を及ぼすと思われる幾つかの要因も見出され、この対策を試みることにより、恒温恒湿の長時間暴露を経てもSn電極に対し安定した特性維持が可能な導電性接着剤が開発されている（図5）。

図4 チップ剥離部の導電性接着剤断面のEPMA測定結果

図5 (1) 導電性接着剤 (Sn 対応) の接触電気抵抗の変化

図5 (2) 導電性接着剤 (Sn 対応) の接着強度の変化

この接着剤は 150~180℃、15~30 分でオープン硬化出来、更にホットプレート等のより効率的な加熱方法を使用した場合は 200~250℃、40~120 秒の短時間硬化が可能である。また硬化物は、はんだと異なり熱に対し不可逆な為、硬化温度以上でも特性を保持できる利点も注目されている。

3.2 高熱伝導対応導電性接着剤

3.2.1 熱伝導率の測定

熱伝導率の測定にはレーザーフラッシュ法により熱拡散率を測定し、(1)式から熱伝導率を求めることが広く行われている。

$$\kappa = \alpha \cdot C_p \cdot \rho \quad (1)$$

(κ :熱伝導率, α :熱拡散率, C_p :比熱, ρ :密度)

レーザーフラッシュ法により測定された、導電性接着剤の熱伝導率を表 4 に示す。測定には通常、10mm ϕ ×2mm 厚程度の円柱ブロック状の硬化物サンプルを用いる。しかし、導電性接着剤で、当該ブロック状の硬化物を作るためには、自己発熱による発泡や熱収縮によるクラックを防ぐ必要があり、長時間かつ段階的に硬化させることが避けられず、実際の硬化条件やそれに付随して生じる特性からは乖離している(硬化後の構造や架橋密度が異なる)。更に、実際に使用されている導電性接着剤の接着剤層は薄い(~100 μ m 程度)ため、この接着剤層の熱伝導を正確に模しているとは限らない。

この点を考慮し、アルミナ・シリコン・等方性黒鉛などの均質性・安定性・普遍性の有る材料を選び、熱伝導率・熱拡散率・密度などの温度依存性を予め測定した基材部と、この基材部上に導電性接着剤を実使用と同様に塗布・硬化し薄膜の硬化物を作り込み基材部ごと測定した後、基材部のデータを相殺するという方法や、特殊なサーマル IC チップを実使用条件で接着しモールドを施した後、サーマルチップの発熱量と温度上昇を測定することで熱抵抗を求め、接着剤の熱抵抗・熱伝導率を推算する方法も行われている。しかし、前者はレーザー光源のパルス調整等の条件設定、後者はサーマルチップの入

手とその後のパッケージも含めた熱解析が出来ることが必要で、これが難点となっている。これらの方法に代わってポリイミド(以下 PI) フィルム上に、薄膜(10mm 角、厚さ 10~20 μ m)で作成した導電性接着剤を ac カロリメトリ法(Model: PIT-1/アルバック理工(株))を用い熱拡散率を測定する試みが行われている。この方法は実使用と同様にサンプルが作成でき比較的容易でかつ再現性があることから検討が進められている。以下に測定原理を概説する。

厚さ d , 熱拡散率 a の平板試料の一部に振幅 Q , 周波数 ω の交流熱流 $Q_{exp}(i\omega t)$ を与える場合を考え、サンプルの厚さが次式を満たすとき交流温度はサンプルに沿って一次元的に伝播する。

$$kd \leq 0.5 \quad (2)$$

ここで k は次式で表され

$$k = \sqrt{\omega/2a} \quad (3)$$

サンプルから外界への熱損失が充分小さいとき、熱電対で検出する交流温度は

$$T(-t) = T_0 \exp[-(1+i)kt] \quad (4)$$

となり、熱流の中心点から熱電対までの距離 t の関数として表すことができる。ここでは T_0 は t に依らない係数である。このような測定系において、温度検出位置と熱流の中心までの距離をずらしたときの振幅の減衰率及び位相の変化率を測定し、それから k を得ることができる。

さらに(3)式から熱拡散率 a が求められる。一方、熱損失効果やエッジ効果の影響があるときには、振幅の減衰率及び位相の変化率からは、みかけの熱拡散率 a_a 及び a_p が得られる。それらを用いて真の熱拡散率 a を求めることができる。ac カロリメトリ法熱定数測定装置のブロック・ダイアグラムを図 6 に示す。

3.2.2 高熱伝導用導電性接着剤

金属間結合を有する Au/Sn 等の共晶はんだ、Pb はんだ、Pb フリーはんだに比べ微細金属粉末の相互接触と低熱伝導率を有するバインダーの硬化物からなる導電

表 4 導電性接着剤の熱伝導率(レーザーフラッシュ法)

サンプル	密度(g/cm ³)	α (cm ² /sec)	C_p (J/g·K)	熱伝導率 λ (W/m·K)
導電性接着剤 A	5.751	0.00621	0.7108	2.536
導電性接着剤 B	6.260	0.01480	0.4396	4.073
導電性接着剤 C	4.785	0.00733	0.4788	1.679
はんだ代替接着剤 A*	5.522	0.13930	0.3416	26.275
はんだ代替接着剤 B*	6.783	0.32710	0.2965	65.787
はんだ代替接着剤 C*	5.411	0.07530	0.3363	13.703

(*住友金属鉱山(株)試作品)

図6 acカロリメトリ法熱伝導率測定装置のブロック・ダイアグラム

性接着剤は、熱伝導率を向上させることが難しいとされてきた。しかし、acカロリメトリ法などの新しい評価方法を導入することで、実使用により近い状態での評価を行い、これをもとに、はんだに匹敵する熱伝導性を導電性接着剤で可能にしようという試みが行われている。この組成は高い熱伝導を確保するために、高T_g（ガラス転移点）・低粘度を有するバインダーを作成し微細導電性粒子を高細密充填している。多くは最近のAg, Cu等のナノ粒子を利用し加熱硬化時にバインダー中でナノ粒子相互の低温での焼結反応（金属間結合）を利用している。硬化前の接着剤中でナノ粒子どうしの凝集・分離を防ぐため、ナノ粒子をマイクロカプセルに閉じ込めて安定化する技術やナノ粒子表面に金属石鹸・有機物を付着させ表面エネルギーをコントロールする技術等が開発されている。これらの接着剤は250℃・30分程度/大気中で硬化可能である。

3.3 導電性接着剤の高周波数特性

3.3.1 高周波数特性の測定

導電性接着剤の高周波数特性については、その組成からミクロ的にみると多数の金属粉体間の接触抵抗と容量、電流経路に付随するインダクタンスとで構成されると考えられる。従って3次元的に相互接続された電流回路とこれに起因する複雑な信号伝送形態が予想される。特に高周波数領域の信号伝送に導電性接着剤を適用するには、その導電性能の抑制・安定と共に周波数特性の評価方法

も検討する必要がある。今まで高周波数領域での信号伝送用の材料としては、数MHzまでの伝送領域の評価に留まっていた。しかし、最近の高容量・高速のデータ伝送の要求に伴い高周波回路やその周辺部品の接合にも導電性接着剤の使用が検討され始めたことから、MHz～GHz領域での特性を評価する必要がでてきた。コブレナ構造を基本とした線路を作成し、導電性接着剤の高周波数特性を評価した例を示す。

回路の作成：ポリイミド（以下PI）フィルム上にCu箔（約20μm厚/メッキ）で形成したコブレナ線路（信号線路幅W：約250, 500, 650μm）と、同一構造で信号線のみを、高周波数対応導電性接着剤、IC用導電性接着剤とした試料を作成した。両端の電極部を除く線路部の長さ l は、5, 10, 20mmとした。コブレナ構造のパターンと断面構造を図7に示す。誘電体層下面のCu層と誘電体層上面のパターンとの間には、厚さ50μmのPI（比誘電率 ϵ ：3.0）と接着剤（比誘電率 ϵ ：3.8）を交互に積層して誘電体層全体の厚さ t を100, 200, 300μmにした。幅250μmの線路には厚さ t を100μm、幅500μmには厚さ200μm、幅650μmには厚さ300μmを組み合わせて特性インピーダンスの整合を図った。

測定：測定には下記の機器を使用した。

Sパラメータ：8510B Network Analyser, 8517A S-Parameter Test Set, 83651A Synthesized Sweeper (Hewlett Packard社製)

図7 アルミナ上に形成したマイクロストリップ線路の模式図

コプレナ型線用/テストプローブ・WPH-001-650, WPH-002-650 (Cascade Microtec 社製)

膜厚: 接触式膜厚計 Dektak II (Sloan 社製)

評価: Sパラメータ S_{11} (透過) と S_{21} (反射) の測定値を用いて (5) 式から伝搬定数 γ を計算した。

$$\gamma = \log \left[\frac{1 - S_{11}^2 + S_{21}^2}{2S_{21}} \pm \sqrt{\left(\frac{1 - S_{11}^2 + S_{21}^2}{2S_{21}} \right)^2 - 1} \right] \quad (5)$$

線路長: l [m]。伝搬定数: $\gamma = \alpha + j\beta$ は、減衰定数 α [Np/m] と位相定数 β [rad/m] で表される。 α は [dB/cm] に換算した。

結果: 高周波数対応の導電性接着剤 (Ag エポキシ 1), IC 用導電性接着剤 (Ag エポキシ 2) 及び Cu 導体ラインの 3 種類について 45MHz~18GHz までの結果を図 8 示す。

3.3.2 高周波対応導電性接着剤

前出結果より高周波対応の導電性接着剤は 20GHz 程度までなら Cu メッキ配線とはほぼ同程度の周波数特性を維持することが可能と思われる。またバインダーの Tg 未満では、この特性は殆ど変化しないことも確認されている。高周波数用途の導電性接着剤は、粉末の形態、バインダー・希釈剤の構造等に特徴を持つ。これらの組み合わせにより硬化物中のフィラーの配向抑制やフィラー相互の安定接触の確保がより効果的に保たれ、結果的に

図8 減衰特性の材料依存性

表皮効果が高周波数領域の信号伝達を可能にしているとも考えられる。しかし、シート抵抗値(直流抵抗)が低い導電性接着剤が必ずしも高周波数特性が良好とは限らず高周波数伝達が可能な要因及び、そのメカニズムについては今後の研究・評価が待たれる。この導電性接着剤は、モバイル機器の内蔵アンテナ回路やその周辺部品に導入が検討されている。

おわりに

軽薄短小に加え高機能を追求する電子用途において、重要性を増している導電性接着剤の基礎と高性能化について一端を紹介した。環境・省エネ・健康と人や地球にやさしい材料が求められている今日、従来のはんだを含む金属接合に比べ、より安全性・リサイクル性の高い機能性接着剤の役割は大きい。今後、ナノテクノロジーや高分子材料の発展とも相まって新機能・新用途への導電性接着剤の展開が一層加速していくものと思われる。

参考文献

- 1) 鈴木, 石坂, 小日向, “ファイン印刷用はんだ代替導電性接着剤の開発” Mate1998 論文
- 2) 高橋, “ac カロリメトリ法” 熱物性 Vol. 15 No. 2
- 3) 木村, 石川, 大山, 小日向, “導電性樹脂ベースの高周波領域での伝送特性測定と評価” 2002 第 16 回エレクトロニクス実装学術講演大会
- 4) I. Hatta, K. Fujii, A. Sakakibara, F. Takahashi, Y. Hamada, and Y. Kanda: Jpn. J. Appl Phys Vol. 38 No. 5A 1999
- 5) 図解 SMT 接合材料入門, 日刊工業新聞社
- 6) 野中, 接着系結合系の信頼性技術, 日科技連
- 7) 友井, エレクトロニクス実装学会誌 Vol. 4 No. 6
- 8) エレクトロニクス分野における高精度スクリーン印刷技術, 技術情報協会
- 9) 新保, エポキシ樹脂ハンドブック, 日刊工業新聞社
- 10) 中島, 坂井, “ストレスレオメータによる電子材料のレオロジー特性” 1998 マイクロエレクトロニクス論文