

●有機-無機ハイブリッドポリマーの高熱伝導絶縁材料への利用

An Application of Organic-Inorganic Hybrid Material to Electric Insulator with High Thermal Conductivity

岩瀬 賢明
Yoshiaki Iwase

Keywords : Electric Insulation, Organic-Inorganic Hybrid, Power Electronics, Thermal Conductivity, Thermal Stability

1 緒言

近年、電子機器の高効率化や小型・軽量化が進んでいる。小型化した電子機器内でより大きな電力を扱うことは即ち、発熱密度の増大を意味する^{1,2)}。電子機器にとって熱は、パフォーマンス、機器寿命、さらには安全性といったあらゆる面で悪影響を及ぼすものである。そのため、電子機器の構成部材には、より高い放熱性が求められるようになってきた。放熱性を高めることにより、冷却機器の簡略化を見込むこともできるため、機器全体の更なる軽量化にも寄与するものと期待が持たれている。

放熱部材としては、特に樹脂材料が注目されており、高機能化の要求が高まっている。従来セラミックスや金属が使用されていた箇所を有機物の樹脂材料に変更することで、加工性の改善や軽量化、はんだなどの接合層の削減による構成の簡略化が期待できるためである。

一方で、一般的な有機物は、金属やセラミックスに比べて熱伝導率が1~3桁低く³⁾、単体では放熱用途には適さない。加えて、高温下での酸化劣化や熱分解も懸念される。そのため、有機樹脂のマトリックスに放熱性の無機フィラーを機械的に混合するコンポジット化に加え、樹脂自体の高熱伝導・高耐熱化も有効なアプローチと考えられる^{3,4,5)}。

以上の背景から、当社において、樹脂と無機フィラーのコンポジット化による各種放熱材料の開発を進めている。本稿では、その一部について紹介する。

2 開発方針

2.1 樹脂成分の選定

コンポジットのマトリックス成分となる樹脂の選定に際しては、以下の条件を設定した。

- ① 常温で液状であり、望ましくは低粘度であること
- ② 熱などで硬化可能であること
- ③ 重量減少温度が高いこと
- ④ 使用温度域でガラス転移しないこと

①は、無機フィラーの混合のためには必須の要件である。低粘度であるほど、より多くのフィラーを混合することが可能になり、コンポジット全体の熱伝導率向上に有利である。一方で、樹脂が高粘度であれば、内部に空隙が形成され、熱伝導率が低下するおそれがある。

また、高温下での形状・物性の維持の観点から、熱可塑性樹脂の適用は困難と考え、②の条件を設定した。

③、④は耐熱性に関わる因子である。③は高温下での酸化や分解に関わる化学的な耐熱性、④はガラス転移などに関わる物理的な耐熱性を考慮して設定した。特に④について、熱伝導率は、ガラス転移に伴って大幅に低下することが知られている⁶⁾。よって、使用温度域内でガラス転移をしない材料が望ましい。

以上を満たすマトリックス樹脂として、有機-無機ハイブリッド材料に着目した。有機-無機ハイブリッド材料とは、コンポジットとは異なり、有機物と無機物が nm 以下のレベルで複合化した材料を指す^{7,8)}。こうした材料では、成型性などの有機物の長所と、耐熱性などの無機物の長所の両立が期待できる。

本検討では、ケイ素系の有機-無機ハイブリッドポリマー（以下 HyP-2 と略記する）を使用することとした。HyP-2 の外観を図1に、代表的な特性値を表1に、それぞれ示す。なお、表1中の熱硬化物は150℃での加熱により作製した。

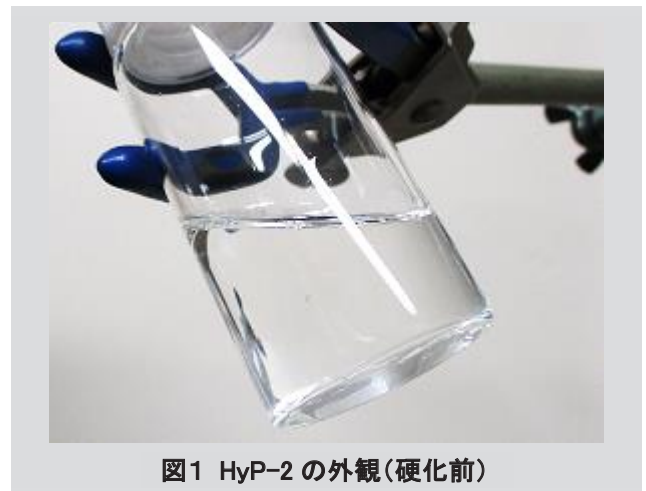


図1 HyP-2 の外観(硬化前)

東亜合成株式会社 R&D総合センター 製品研究所

New Products Research Laboratory, General Center of R&D, Toagosei Co., Ltd.

表1 HyP-2の特徴

	項目	代表値
液	外観	無色透明液体
	粘度 ^{a)}	250 mPa·s
熱硬化物	5%重量減少温度 ^{b)}	350°C
	ガラス転移温度 ^{c)}	—
	熱伝導率 ^{d)}	0.24 W/m·K
	絶縁破壊強度 ^{e)}	60 kV/mm

a) E型粘度計、25°C、b) TGA、大気雰囲気、10°C/min.、
c) DSC、-80°C~250°C、10°C/min.、d) 25°C、
e) 絶縁油中、25°C、JIS C2110-1 (2016)

HyP-2は、先に記載した条件①~④の全てを満たしており、マトリックス樹脂に好適と判断した。

2.2 開発目標の設定

表1に示した通り、HyP-2は高い絶縁性も特徴的である。この特徴を活用するため、パワーモジュール中の絶縁基板(図2)をモデル用途に定め、開発を進めることとした。

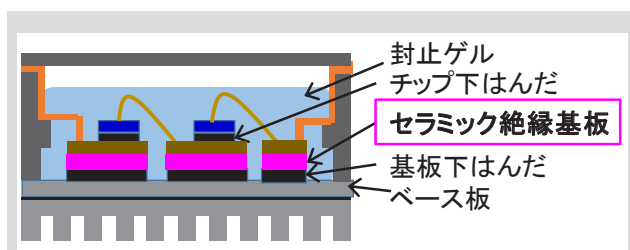


図2 パワーモジュール断面模式図

絶縁基板においても、現行のセラミックス板から有機樹脂と無機フィラーより成る樹脂基板への置き換えにより、加工性やコストの改良検討が進められてきた⁵⁾。特に最近では、耐熱性や熱伝導性などの更なる改善が求められている。

以上を踏まえ、HyP-2の特性を利用することで、耐熱性・放熱性・絶縁性に優れた樹脂基板の作製を目指した。特性としては熱伝導率と高温下での絶縁性に着目し、各種文献調査から具体的な目標値を表2のように設定した。

表2 樹脂基板の目標性能

評価項目	目標値
熱伝導率(25°C)	15 W/m·K
絶縁破壊強度(200°C)	50 kV/mm

3 開発品の概略

3.1 代表的な性能

化学組成及び形状の異なる2種類の無機材料を選定し、それぞれ同じ割合でHyP-2と複合化・加熱硬化することで、2種の板状のサンプルを作製した。上記により作製した開発品EIS-A1、EIS-B1の代表的な特性について、表3に示す。

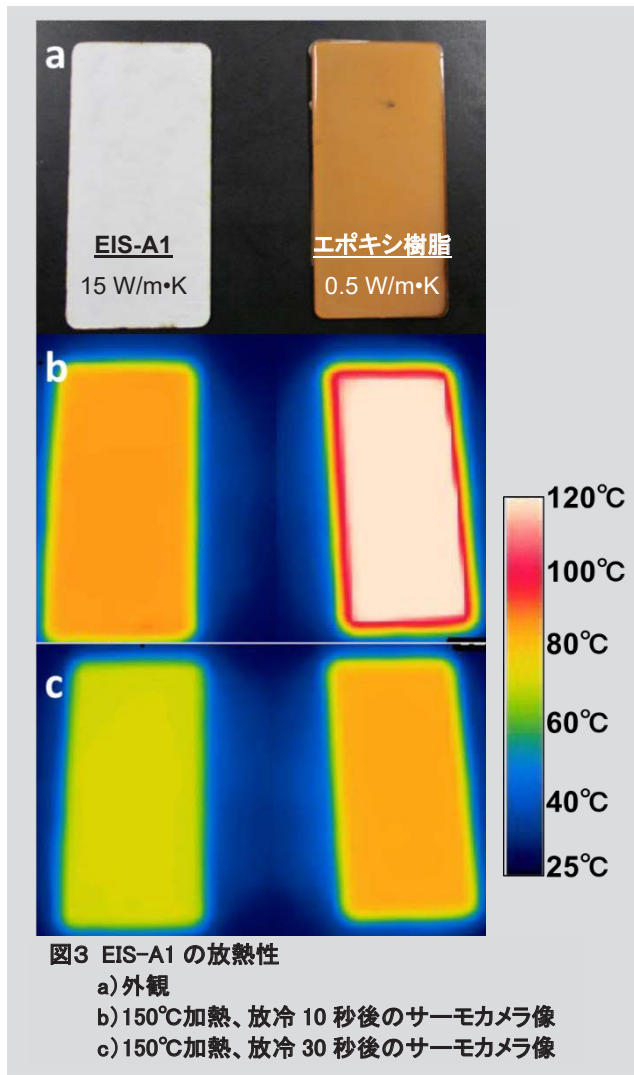
いずれも表2に記載した目標値をほぼ達成するものとなった。これらの特性について、詳細を以下に記載する。

表3 絶縁基板開発品 EIS-A1、B1の主要特性

評価項目	EIS-A1	EIS-B1
熱伝導率 ^{a)}	15 W/m·K	41 W/m·K
絶縁破壊強度 ^{b)} : 25°C	62 kV/mm	55 kV/mm
: 200°C	50 kV/mm	48 kV/mm
比重	1.95	2.57
線膨張係数 ^{c)}	19 $\mu\text{m}/\text{m}\cdot^\circ\text{C}$	13 $\mu\text{m}/\text{m}\cdot^\circ\text{C}$

a) レーザーフラッシュ法、25°C、b) 絶縁油中、JIS C2110-1 (2016)、c) 40°C~250°C、5°C/min.、圧縮モード

3.2 放熱性



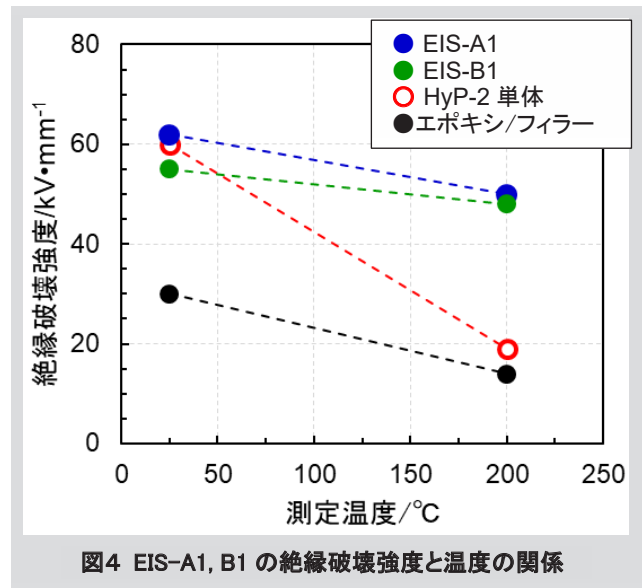
EIS-A1 および B1 のいずれも高い熱伝導率を示し、表 2 で設定した目標値を満たしている。両者の差異に関しては、使用した無機材料の組成や形状の違いに起因したものと考えられる。

図 3 a) には、EIS-A1 と市販のエポキシ樹脂 (25°Cでの熱伝導率 0.5 W/m·K 程度) を銅板上に厚み 200 μm で成膜したものを示した。これらを 150°Cに加熱し、室温下、金属板上で放冷開始から 10 秒後、30 秒後の様子をサーモカメラで撮影した様子を図 3 b、c) に示す。熱伝導率の差が現れにくい条件下での比較にも関わらず、放冷開始 10 秒後の時点で EIS-A1 の方が 40°C以上も表面温度が低下していることが分かった。

3.3 絶縁性

図 4 に、EIS-A1、EIS-B1、HyP-2 単体それぞれの絶縁破壊強度の温度変化を示す。加えて、EIS-A1 と同じ無機フィラーを同比率でエポキシ樹脂に混合した材料 (25°Cでの熱伝導

率 10 W/m·K) についても、同様に評価した結果を比較として併記する。



EIS-A1、B1 は、比較例としたエポキシ樹脂/無機フィラーの系に比べて室温及び高温ともに高い絶縁性を示した。コンポジット内部に絶縁破壊の原因となる大きな空隙が出来ていないことが示唆される。マトリクス樹脂である HyP-2 の高い絶縁性と耐熱性に加え、混合した無機材料に対して高い親和性を有することに起因した結果と考えられる。

また、いずれにおいても測定温度の上昇に伴って絶縁破壊強度の低下が観測された。この挙動は「純熱破壊」に分類されるもので、環境温度と電圧印加時のジュール熱によってマトリクス樹脂中の有機成分が劣化したことが示唆されるものである^{9,10)}。図 4)において、この傾向が HyP-2 単体で顕著に見られる一方、EIS-A1、B1 では強度の低下が抑制されている。理由として、無機材料の混合による有機部位の割合の低減、及び放熱性の向上に伴う内部温度上昇の抑制が挙げられる。

3.4 その他の特性

表 3 に記載した通り、EIS-A1、B1 の比重はいずれも一般的なセラミックスに比べて小さく¹¹⁾、機器軽量化の需要に合致したものと言える。

さらに、線膨張率についても極めて低い値が得られた。この値は、銅やアルミニウムなど、電子機器の構成部材として一般的に使用される金属の線膨張率¹²⁾と非常に近いものである。加えて、原料の HyP-2 のガラス転移点を有さない特徴に起因し、室温から 250°Cまで線膨張率は殆ど一定であった。以上のことから、本開発品は幅広い温度域で金属との良好な密着性を保つことが期待できる。

なお、用いた無機材料の性質や形状の違いに起因して、

EIS-A1 と EIS-B1 の製造法や成形性は大きく異なる。EIS-A1 はサイズや形状を比較的に変更しやすい一方、EIS-B1 は現時点では限定的なサイズの作製に留まっており、今後改良を行う予定である。

4 結論

有機-無機ハイブリッドポリマーと無機材料をコンポジット化することで、高い熱伝導率と耐熱絶縁性を両立する材料が得られた。EIS-A1、B1 については、本稿で一例として紹介したパワーモジュール向け絶縁基板以外にも様々な用途展開を推進中である。現在、本稿に記載した以外の物性データの取得を進めている。

さらに、本検討を通じて得られた知見を活用し、多様な放熱材料や絶縁材料の開発を進める予定である。

5 謝辞

本研究は、名古屋工業大学大学院 生命・応用化学専攻 ケミカルプロセス研究室との共同研究により遂行したものである。実験機器の使用を許可頂き、多大な御指導を頂いた岩本雄二教授、各種実験操作やデータ解析を御指導頂いた大幸裕介准教授、本多沢雄助教、ならびに所属学生諸氏に深く感謝致します。

6 引用文献

- 1) 澤井由美子, 平端清隆, 横田政夫, 岡山昭稔, 澤田雅彦, 萩原啓司, *SEI テクニカルレビュー*, **180**, 73 (2012).
- 2) 畠山友行, *表面技術*, **66**, 232 (2015).
- 3) 赤塚正樹, 竹澤由高, *電学論 A*, **123**, 687 (2003).
- 4) D. A. G. Bruggeman, *Ann. Phys.*, **24**, 636 (1935).
- 5) 三村研史, *ネットワークポリマー*, **35**, 76 (2014).
- 6) 小沢丈夫, 金成克彦, *応用物理*, **40**, 824 (1971).
- 7) 中條善樹, *粉砕*, **50**, 11 (2007).
- 8) 中條善樹 編, “有機-無機ナノハイブリッド材料の新展開”, シーエムシー出版 (2009).
- 9) 家田正之, *電気学会雑誌*, **5**, 361 (1975).
- 10) 大木義路 編, “高分子絶縁材料技術とその実例・評価”, サイエンス&テクノロジー株式会社 (2010).
- 11) 奥田博, *ターボ機械*, **13**, 387 (1985).
- 12) T. Arikawa, A. Ichida, E. Takegoshi, *J. Soc. Mat. Sci. Japan*, **48**, 295 (1999).