

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 15 日現在

機関番号：32689

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2013～2014

課題番号：25889058

研究課題名(和文)ポリマーナノコンポジット材料における絶縁特性の向上メカニズムの解明

研究課題名(英文)Elucidation of the improvement mechanism of insulation characteristic in polymer nanocomposite materials

研究代表者

飯塚 智徳 (IIZUKA, Tomonori)

早稲田大学・理工学術院・助手

研究者番号：20706890

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：ポリマーナノコンポジット材料における絶縁特性の向上と要因を解明するとともに、高熱伝導性を併せ持つハイブリッド型ナノコンポジット材料を開発することを目的とした。ナノフィラー添加による絶縁破壊時間の長寿命化におけるメカニズム解明の一つとして、耐部分放電試験による試料表面への放電侵食劣化深さから抑制効果と機構、さらには試験環境による依存性等について評価・考察を行なった。その結果、ニート試料、マイクロ試料のナノコンポジット化により絶縁特性が顕著に向上する結果と再現性、温度依存性が得られ、絶縁性と熱伝導性という特性の両立を可能にする新たな指標を示すことが得られた。

研究成果の概要(英文)：I elucidated improvement and the factor of insulation properties in polymer nano-composite materials to develop the hybrid model nano-composite materials which had both high thermal conductivity.

Effects of the addition of nano filler particles in the improvement of epoxy resin insulating characteristics were investigated and it has been clarified that surface erosion resulting from partial discharge (PD) could be substantially suppressed by the addition of several percent of nano filler content to epoxy composites. From the above experimental results, it can be concluded that one of the major mechanisms related to improving insulating performance via filler additions was the surface covering provided by filler deposition during the PD. In the case of nano filler composites, the outermost surface was more effectively and densely covered with filler particles during the PD.

研究分野：電気・電子材料

キーワード：ナノコンポジット 絶縁特性 耐部分放電特性 高熱伝導性 温度依存性 放電劣化抑制機構 ナノフィラー粒子析出

## 1. 研究開始当初の背景

パワーエレクトロニクス分野/EV, H-EV (カーエレクトロニクス)等の電力機器には種々の絶縁材料が用いられてきた。中でも、近年、電力機器やエレクトロニクス素子・機器などに用いられる電気絶縁材料としてポリマーナノコンポジットが注目されている。これは、近年における高性能化(電力設備の高電力変換, IGBTにおけるセラミックス基板の代替, EV車の電池, パワーデバイス, 車のエンジンカバーなどの耐熱・放熱化, etc)のニーズに伴い、絶縁材料のさらなる特性の向上(高信頼性, 長寿命化)や付加機能化が求められている。そこで、絶縁・放熱各分野における電力機器の小型化および高信頼性を可能にする、ポリマー系ナノコンポジット絶縁材料の耐電界性向上に関する研究を行ってきた。

このポリマーナノコンポジット材料として、ベースポリマーにはエポキシ樹脂を用い、ナノフィラーとして主に  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を中心とし、その他に  $\text{BN}$ ,  $\text{AlN}$ ,  $\text{SiC}$  等を用い絶縁特性の向上と高熱伝導性を評価した。その結果、ポリマーのナノコンポジット化により、絶縁特性の大幅な向上を可能とすることを明らかにした。代表的な数値としては、フィラー粒径 12 nm のシリカナノフィラーを 3 wt% 添加したナノコンポジット試料では、ナノフィラーを添加していないニート試料と比べ電気トリーイングによる全路破壊時間が印加電圧 10 kVrms 時においては、10 倍(約 30 時間が 300 時間での破壊)となった。さらに、絶縁材料では、トリーが発生すると自復機能がないことから、トリー発生時間を検出することで、トリーイングによる初期破壊の評価を行なった。この結果、トリーイング開始 V-t 特性によるニート試料とナノ試料では、 $\beta$  kVrms 印加時では、ニート試料では 170 時間に対し、ナノコンポジット試料では 66 倍(約 470 日)のトリー開始時間となり、トリーイングによる全路破壊と同様の傾向にあることを確認した。さらに、マイクロフィラーを混合した試料に対しては、ナノ-マイクロコンポジット試料では 300 倍程度(4 時間が 1260 時間)に増大することが判明した[図 2] (文献[10])。また、試料表面の劣化特性の評価として、ニート試料に対し、 $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SiC}$  を 3 wt% 混合した試料では、劣化深さを 1/2 以下(100  $\mu\text{m}$  が 30  $\mu\text{m}$  程度)に抑制することが分かった。さらに、高熱伝導性に関しては、マイクロフィラーとして  $\text{BN}$ ,  $\text{AlN}$  を 80 wt% 添加し、ナノフィラーには  $\text{SiO}_2$  を添加したナノ-マイクロコンポジット試料では、10  $\text{W/m}\cdot\text{K}$  を得ることに成功した。(ニート試料の熱伝導率は 0.24  $\text{W/m}\cdot\text{K}$ )。以上のように、ナノフィラー添加による効果として絶縁特性における破壊時間の長寿命化や表面劣化の抑制効果、高熱伝導性の付加を得ることに成功しているが、ナノコンポジットにおける

絶縁特性の劣化メカニズムは未だ明確には解明されていない。そこで、実用化に向け、絶縁特性と高熱伝導性の両立が必要不可欠と考えられ、フィラー粒子の配合比や粒径選定などの最適化の評価を行なうことで、新たな指標を提案できるものと考えている。

## 2. 研究の目的

ポリマーナノコンポジット材料における絶縁特性の向上と要因を解明するに際し、ナノフィラー添加による絶縁向上メカニズムのモデル化を検討し、実用化に向けた新たな指標を提案する。

(1) 絶縁特性で得られているフィラー粒子の添加効果の定量化(例えば、放電劣化後における試料の最表面状態を EDX などの元素分析を行ない、フィラーの層を分析することで、これが絶縁劣化の抑制メカニズムを解明するものと思われる。)

(2) 熱伝導特性におけるフィラーの最適充填率の検討と評価。

(3) ポリマーナノコンポジット材料における新機能の付与効果

## 3. 研究の方法

ポリマーナノコンポジット材料における絶縁特性の向上と要因を解明するとともに、高熱伝導性を併せ持つハイブリッド型ナノコンポジット材料を開発することを目的とする。

具体的には、(1) 電気トリーイング V-t 特性におけるフィラー添加による絶縁特性向上の解明としてナノコンポジット化におけるフィラー粒子とポリマーマトリックス間との界面制御をカップリング剤付与の有無による試料内部の構造を評価する。(2) 耐部分放電特性における試料表面によるフィラー層の解明として、試料表面における劣化抑制メカニズムを元素分析等により評価する。(3) 高熱伝導性を得るためのフィラー粒子の粒径と添加率の最適化を行ない、絶縁特性と熱伝導性の両立を目指した新たなナノコンポジット材料を開発し、実用化に向けた新たな指標を提案する。

## 4. 研究成果

ポリマーナノコンポジット材料における絶縁特性の向上と要因を解明するとともに、高熱伝導性を併せ持つハイブリッド型ナノコンポジット材料を開発することを目的とした。ナノフィラー添加による絶縁破壊時間の長寿命化におけるメカニズム解明の一つとして、耐部分放電試験による試料表面への放電侵食劣化深さから抑制効果と機構について評価・考察を行なった。その結果、ニート試料、マイクロコンポジット試料に対し、ナノフィラー粒子を添加混合しナノコンポ

ジット化することにより絶縁特性が顕著に向上する同様の結果が得られ再現性も得られた。さらにナノ粒子による試料表面への堆積とナノオーダでの試料最表面への被覆による劣化抑制層の形成による効果が絶縁劣化抑制機構と考察できた。また、絶縁特性を解明する上で、高温試験環境下での影響も評価を行なった。その結果、試験環境温度を30、60、110とした場合、試料表面への放電侵食劣化深さが30と110では約2倍もの劣化深さとなり、温度依存性があることが新たに判明した。さらには、熱伝導率向上に向けては、これまでに熱伝導率を向上させるためにマイクロフィラー粒子を60~80 vol%という高充填であったものを40 wt%での低充填化による試料でもニート試料に比べ2.7倍の熱伝導率向上が得られ、さらには、ナノフィラー3 wt%単体でも1.3倍の向上が得られた。これは、フィラー粒子とポリマーマトリックスとの界面による結合力に依存していることが分かった。

以上これらの結果による絶縁性と熱伝導性という特性の両立を可能にする新たな指標を示すことが得られた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

“Electrical Properties of Epoxy/POSS Composites with Homogeneous Nanostructure”  
Xingyi Huang, Yong Li, Fei Liu, Pingkai Jiang<sup>1</sup>, and Tomonori Iizuka, Kohei Tatsumi and Toshikatsu Tanaka.  
IEEE Trans, Vol.21, No.4, pp.1516-1528 (2014)

[学会発表](計7件)

1. “Surface Analysis of Epoxy Nanocomposite Insulator Materials Eroded by Partial Discharge”  
Tomonori IIZUKA, Yuqing ZHOU, Tomoaki MAEKAWA, Toshikatsu TANAKA, Kohei TATSUMI.  
IEEE CEIDP, No.8A-10, pp703-706 (2014)

2. “How Different Fillers Affect the Thermal Conductivity of Epoxy Composites”  
I.A. Tsekmes, R. Kochetov, P.H.F. Morshuis, J.J. Smit, T. Iizuka, K. Tatsumi, T. Tanaka.  
IEEE CEIDP, No.7-2, pp.647-650 (2014)

3. “The Effect of Nanosilica on the DC Breakdown Strength of Epoxy-Based Nanocomposites”

R. Kochetov, I.A. Tsekmes, L.A. Chmura, P.H.F. Morshuis, T. Iizuka, K. Tatsumi, T. Tanaka.  
IEEE CEIDP, No.8A-13, pp.715-718 (2014)

4. “Dielectric Properties and Thermal Conductivity of Epoxy/AlN Composites with Several Kinds of Filler-Matrix Interfaces”  
T. Tanaka, T. Iizuka, and Y. Ohki, X. Huang and P. Jiang.  
IEEE ICSD, pp.377-380 (2013)

5. “エレクトロニクス実装用 コンポジット材料の部分放電試験における温度依存性”  
飯塚智徳, 林紀全, 田中祀捷, 巽宏平.  
JPCA, AP-27, pp.1-4 (2014)

6. “エポキシ/シリカコンポジットの耐部分放電特性に及ぼすナノフィラー添加効果と劣化抑制機構”  
周玉清, 飯塚智徳, 田中祀捷, 巽宏平.  
IEEJ 誘電研究会, No.DEI-14-36, pp.35-40 (2014)

7. “エポキシ/アルミナコンポジットの部分放電試験における温度依存性”  
林紀全, 飯塚智徳, 田中祀捷, 巽宏平.  
IEEJ 誘電研究会, No.DEI-14-38, pp.47-51 (2014)

[図書](計 件)

[産業財産権]  
出願状況(計 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
取得年月日:  
国内外の別:

[その他]  
ホームページ等

6. 研究組織  
(1)研究代表者

飯塚 智徳 (IIZUKA Tomonori)  
早稲田大学 理工学術院 助手  
研究者番号：20706890

(2)研究分担者  
( )

研究者番号：

(3)連携研究者  
( )

研究者番号：