

令和元年6月3日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05938

研究課題名(和文) 静電吸着法を用いた放熱コンポジット絶縁材料の創製

研究課題名(英文) Creation of Thermal Conductive Composite Insulating Material Using Electro Adsorption Method

研究代表者

村上 義信 (MURAKAMI, Yoshinobu)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10342495

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)： 静電吸着法を用いてポリメタクリル酸メチル(PMMA)/六方晶窒化ホウ素(hBN)コンポジット絶縁材料を作製した。

hBNの鱗片面が試料の厚さ方向に対して平行方向に配向した(CMP)試料の絶縁破壊の強さはhBNの鱗片面が試料の厚さ方向に対して平行方向に配向した(NV)試料のそれより低下した。一方、熱伝導率は絶縁破壊の強さと逆の関係性を示した。hBNの配向方向とhBNとPMMAの界面方向がこれらに影響を及ぼしていると考えられた。

開発したコンポジット材料の特性はホットプレス時の圧力等のパラメータを変化させることにより容易に制御できる可能性があることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

作製したコンポジット材料は理論的には均一分散の材料であり、それらを前提とした熱伝導率の理論式や熱流シミュレーションなどと比較検討できるため学術的価値は高い。また、各種電力機器の開発は絶縁材料の開発と言っても過言ではなく、放熱の問題は電力機器のみならずあらゆる機器の信頼性に関わる問題のため、簡易な方法な方法で作製でき、かつこれまでにない優れた特性をもつ放熱性コンポジット材料は社会的・工業的意義が極めて大きい。

研究成果の概要(英文)： To develop a thermally conductive and electrically insulating composite material with high thermal conductivity and acceptable breakdown strength, polymethylmethacrylate (PMMA)/hexagonal boron nitride (h-BN) composite materials were produced by electrostatic adsorption method.

The breakdown strength of the composite which the flaky surfaces of h-BN was oriented parallel to the thickness direction, was smaller than that of the composite which the flaky surfaces of h-BN was oriented perpendicular to the thickness direction. On the other hand, the thermal conductivity exhibited the inverse trend to the breakdown strength. The orientation direction of hBN and the orientation direction of the interface between the hBN and PMMA influenced to these properties.

The properties of the composite material can be easily changed as necessary controlled by each factors.

研究分野：誘電・絶縁物性工学、高電圧工学、計測光学

キーワード：静電吸着法 六方晶窒化ホウ素 熱可塑性ポリイミド コンポジット材料 絶縁破壊の強さ 熱伝導率

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

自動車用パワーモジュール等の放熱絶縁板には、現在、高い熱伝導率をもつセラミクス板が使用されているが、低コスト化の観点から材料の厚さは薄くなり、設計電界は材料の本質的な電氣的破壊電界に近づいている。製造上および機械的強度の問題も加わり、セラミクスの更なる薄板化は困難であるため、高分子と充填剤から構成され、高い熱伝導性と許容できる電氣絶縁性を兼ね備えるコンポジット材料の研究開発が各所で進められている。

2. 研究の目的

開発材料の多くは熱硬化性樹脂であるエポキシ樹脂等のベース樹脂と高い熱伝導率を持つアルミナ等の無機充填材の機械的混合を基本としているが、電氣的・機械的弱点部となりやすい充填材粒子の接触、充填剤の粒径によっては充填材粒子の凝集などが問題となることが多い。当該研究ではこれらの問題を一気に解決できる可能性がある静電吸着法を用いて放熱性をもつコンポジット絶縁材料を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

最も要求性能が高い自動車用パワーモジュールに適用可能な放熱コンポジット絶縁材料の創製に向けて、材料の種類、充填剤粒径、ホットプレス圧力等をパラメータとして各種コンポジット絶縁材料を作製し、最も基本的電氣特性または熱伝導特性である絶縁破壊の強さまたは熱伝導率を中心に評価した。これらの結果から目的を達成する可能性が高いコンポジット材料を選定し、各種熱的、電氣的特性等を把握し、材料設計、作製に必要な基本的指針を明らかにした。得られたデータを多角的・総合的に考察し、これまでにない特性(絶縁破壊の強さ:100 kV/mm以上、熱伝導率:10 W/(m・K)以上)をもつ放熱コンポジット絶縁材料を創製した。

4. 研究成果

図1に各種コンポジット材料作製方法を示す。同図(a)に示したようにコンポジット粒子を含むイオン交換水を直径10mmの穴を開けたアクリル製治具に滴下し、50°Cの温度でコンポジット粒子を24時間自然沈殿・乾燥させた。その後コンポジット粒子塊を200°C、50MPa、60minの条件で同図(a)のc軸方向にホットプレスすることにより直径10mm、厚さ約1.7mmの試料(hBP4-NV 試料)を作製した。特に明記しない限りホットプレス条件は同一である。同図(b)は同図(a)で実施した自然沈殿および自然配向を同図(b)のc軸方向に対して遠心力及び機械的圧力を印加することにより強制的にコンポジット粒子の配向を実施し、同方向にホットプレスすることにより直径10mm、厚さ約1.4mmの試料(hBP4-CMV 試料)を作製した。遠心力の条件は室温、3000rpm(1720×g)、10分間であり、機械的圧力の条件は約0.5kPaとし、遠心分離後のコンポジット粒子塊の厚さ2.3mmが2mmとなるまで圧力を印加した。同図(c)に示したようにコンポジット粒子を含むイオン交換水をエチレンプロピレンゴムで作製した40×10×3mm(高さ×幅×厚さ)の空間を持つ治具に滴下し、同図(b)と同様に同図(c)のc軸方向に対して遠心力及び機械的圧力を印加し、強制的にコンポジット粒子を配向させた。遠心力の条件は同図(b)の場合と同様であり、遠心分離後のコンポジット粒子塊の高さ25mmが10mmとなるまで30×10×3mmのアクリル棒を用いて同図(c)のc軸方向に機械的圧力を印加した。h-BNの鱗片面が試料の厚さ方向(同図(c)のc軸方向)に対して平行になるようにホットプレス金型へ設置し、同図(c)のb軸方向にホットプレスすることにより、直径10mm、厚さ約1mmの試料(hBP4-CMP 試料)を作製した。また、機械的圧力を加えない試料(hBP4-CP 試料)も用意した。

図2にそれぞれの条件で作製した材料の破断面におけるSEM画像を示す。同図(a)および(b)に示したように hBP4-NV 試料および hBP4-CMV

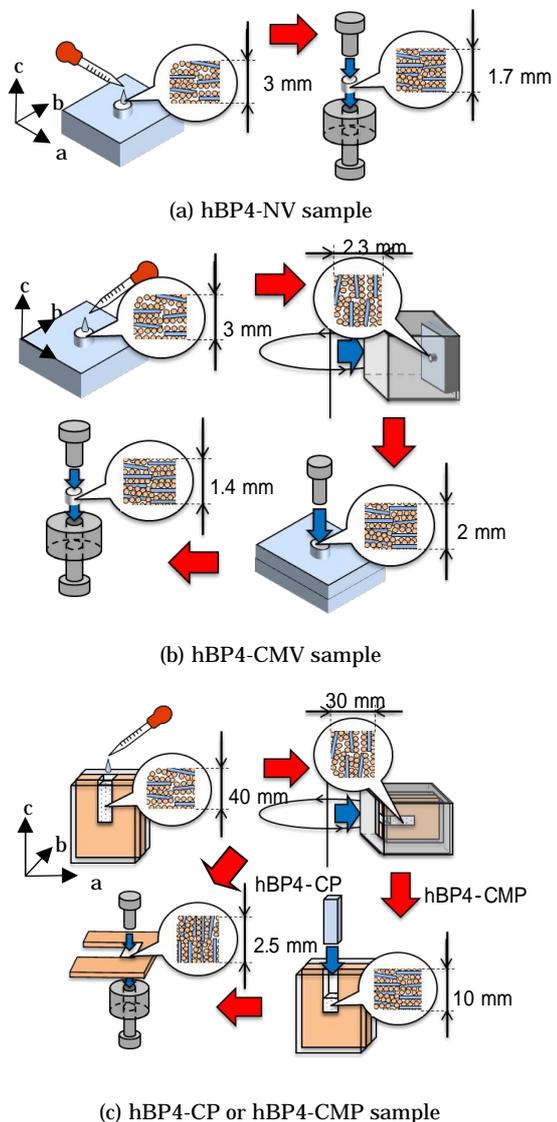


図1 各種コンポジットの作製方法

試料においては h-BN 粒子の鱗片面があまり観測されていないため、h-BN は試料の厚さ方向に対して垂直に配向していると考えられる。一方、同図(c)-(f)に示したように -CP または -CMP 試料においては h-BN 粒子の鱗片面が多く観測されており、h-BN は試料の厚さ方向に対して平行に配向していると考えられる。

図 3 に h-BN 粒子の配向が (a) 直流絶縁破壊の強さ (Fb) および (b) 熱伝導率 () に与える影響を示す。同図中の白抜き丸プロットは個々の試料の絶縁破壊の強さを示し、黒塗りの丸プロットは試料数 4 個の平均値を示している。また、黒塗りの三角プロットは 1 個の試料におけるサンプリング回数 3 回の熱伝導率の平均値を示している。同図に示したように hBP4-CMV 試料の絶縁破壊の強さは hBP4-NV 試料のそれよりも減少した。また、熱伝導率は hBP4-CMV 試料の方が hBP4-NV 試料より高くなっている。よって、hBP4-CMV 試料においては遠心力や機械的圧力により試料密度が高くなり、BN 粒子同士の距離が短くなった、または BN 粒子同士の接触が起り易くなり電気的弱点となる PMMA/BN 界面の連鎖確率が増加した (熱伝導においては熱伝導性のよい h-BN の連鎖確率が増加した)、あるいはその両方のため、hBP4-CMV 試料の絶縁破壊の強さおよび熱伝導率は hBP4-NV 試料のそれらよりそれぞれ減少および増加したと考えられる。

h-BN 粒子の配向方向で比較した場合、h-BN の鱗片面が試料の厚さ方向に対して平行に配向している hBP4-CP 試料および hBP4-CMP 試料の絶縁破壊の強さは h-BN の鱗片面が試料の厚さ方向に対して垂直に配向している hBP4-NV 試料および hBP4-CMV 試料のそれらより低くなった。hBP4-CP 試料および hBP4-CMP 試料においては電気的弱点になると考えられる PMMA と h-BN の界面が電界(厚さ)方向に対して平行になり、絶縁破壊経路が電極間においてより直線的になったためと考えられる。同図に示したように hBP4-CP 試料および hBP4-CMP 試料の熱伝導率は hBP4-NV 試料および hBP4-CMV 試料のそれらより高くなっているが、これも h-BN 粒子の鱗片面が熱伝導率測定(試料の厚さ)方向に対して平行に配向したためと考えられる。h-BN の鱗片面が試料の厚さ方向に対して平行に配向した試料を比較した場合、hBP4-CMP 試料の絶縁破壊の強さは hBP4-CP 試料のそれよりも低下した。hBP4-CMP 試料においては機械的圧力により試料密度が高くなり、h-BN 粒子同士が接触する確率が高くなったためと考えられる。hBP4-CMP 試料の熱伝導率は hBP4-CP 試料のそれよりも高くなっており、上記考察と矛盾しない。

図 4 に各試料における熱伝導率と直流絶縁破壊強度の関係を示す。本研究にて開発した BN 粒子を電界、熱伝導率測定方向(厚さ)方向に配向させた試料は高放熱性および高絶縁性の材料としての目安値、100 kV/mm 以上の絶縁破壊強度および 10 W/mK 以上の耐電圧・熱伝導率を達成した。本材料はこの種の材料で最も使用条件が過酷な自動車用パワーモジュールへの適用も可能と考えられる。静電吸着法においては理論的には高分子の種類・材質、無機フィラーの種類・材質に関わらずコンポジット材料を作製でき、また、それらの粒径、ホットプレス圧力等を変化させることにより様々な特性をもつ放熱性コンポジット絶縁材料の作製が可能であるため、今後の発展が大いに期待される。

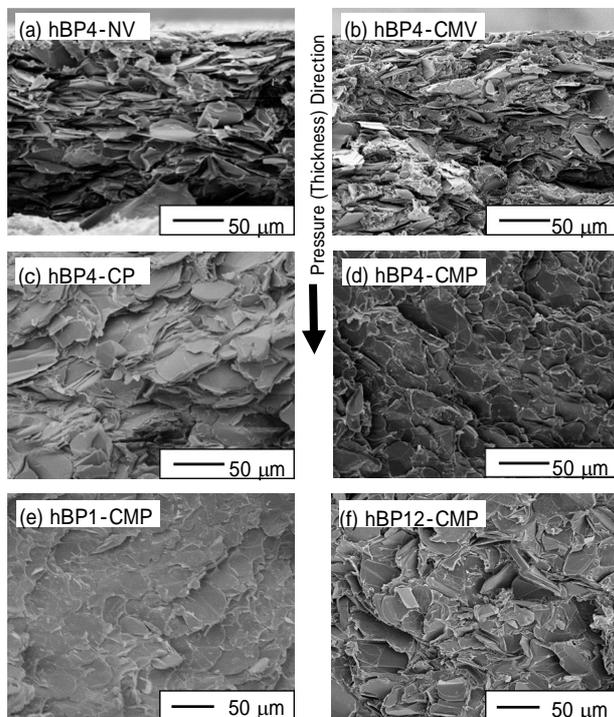


図 2. 各種コンポジット材料の破断面の SEM 画像

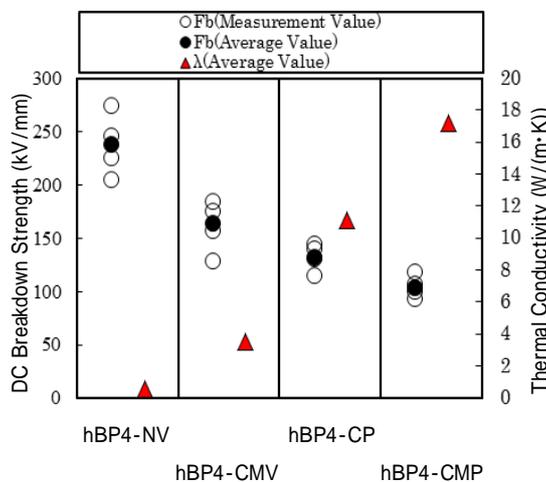
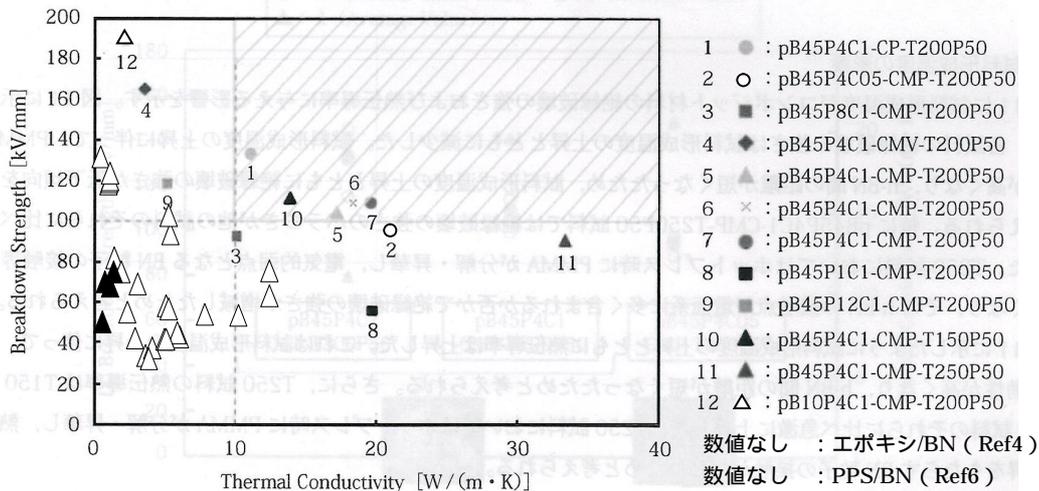


図 3 各種コンポジット材料の直流絶縁破壊の強さと熱伝導率



pBOP C -x-T*P

○ : hBN 粒径、● : PMMA 粒径、▲ : PMMA 被覆率、× : 配向方法、* : 成形温度、P : 成形圧力

配向方法 CMV : 遠心力 + 機械的圧力、BN の鱗片面と厚さ方向が垂直

CMP : 遠心力 + 機械的圧力、BN の鱗片面と厚さ方向が平行

CP : 遠心力、BN の鱗片面と厚さ方向が平行

図 4 当該研究における結果と他機関における結果の比較

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

Norikazu Hamasaki, Shuhei Yamaguchi, Shohei Use, Tomohiro Kawashima, Hiroyuki Muto, Masayuki Nagao, Naohiro Hozumi and Yoshinobu Murakami: "Electrical and Thermal Properties of PMMA/h-BN Composite Material Produced by Electrostatic Adsorption Method", IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.139, No.2, pp.60-65(2019)、査読有、<https://doi.org/10.1541/ieejfms.139.60>

村上義信:「静電吸着法を用いた放熱性コンポジット絶縁材料の開発」、電気評論、No.646、(2017)、査読無(解説記事)

村上義信、宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、長尾雅行:「鱗片状窒化ホウ素の配向が静電吸着法で作製したポリメタクリル酸メチル/窒化ホウ素コンポジット電気絶縁材料の電気特性および熱的特性に与える影響」、電気学会論文誌 A、Vol.137、No.4、pp.202-207(2017)、査読有、<https://doi.org/10.1541/ieejfms.137.202>

宇瀬尚平、村上義信、武藤浩行、川島朋裕、長尾雅行:「静電吸着法を用いた放熱性ポリメタクリル酸メチル/窒化ホウ素コンポジット絶縁材料の作製」、電気学会論文誌 A、Vol.136、No.4、pp.186-192(2016)、査読有、<https://doi.org/10.1541/ieejfms.136.186>

村上義信:「BN 粒子を配向制御した放熱性コンポジット絶縁材料の開発」、プラスチック・エージ、Vol.62、No.10、pp.97-100(2016)、査読無(解説記事)

[学会発表] (計 17 件)

南亮輔、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、村上義信:「静電吸着法を用いた PMMA/h-BN 複合材料の直流絶縁破壊の強さ及び熱伝導率の温度依存性」、平成 31 年電気学会全国大会、2019

南亮輔、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、村上義信:「h-BN の含有率が静電吸着法を用いた PMMA/h-BN コンポジット絶縁材料の体積抵抗率に与える影響」、平成 30 年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2018

山口修平、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、穂積直裕、村上義信:「成形温度が PMMA/h-BN コンポジット絶縁材料の電氣的・熱的特性に与える影響」、平成 30 年電気学会全国大会、2018

山口修平、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、穂積直裕、村上義信:「各種因子が静電吸着法で作製した PMMA/配向 h-BN コンポジット絶縁材料の電氣的・熱的特性に与える影響」、電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料研究会 DEI-17-096 ~ 106、2017

S. Yamaguchi, N. Hamasaki, S. Use, T. Kawashima, H. Muto, M. Nagao, N. Hozumi and Y. Murakami: "Influence of PMMA and h-BN Particles Sizes on Electrical and Thermal Properties of PMMA/h-BN Composite Materials Produced by Electrostatic Adsorption Method", 2017 Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2017

山口修平、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、穂積直裕、村上義信:「印加電圧波形が静電吸着法を用いた PMMA/h-BN コンポジット絶縁材料の絶縁破壊特性に与える影響」、平成 29 年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2017

山口修平、宇瀬尚平、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、村上義信:「PMMA 粒径が静電吸着

法を用いたコンポジット絶縁材料の電気・熱的特性に与える影響」、平成 29 年電気学会全国大会、2017

宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、村上義信：「作製治具の材質が静電吸着法を用いた複合絶縁材料の電氣的・熱的特性に与える影響」、平成 29 年電気学会全国大会、2017

宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、村上義信：「静電吸着法を用いた放熱性コンポジット絶縁材料の開発」、電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料研究会 DEI-16-092・094～106、2016

山口修平、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、長尾雅行、穂積直裕、村上義信：「六方晶 BN の粒径が静電吸着法を用いた PMMA/hBN コンポジット材料の電気・熱的特性に与える影響」、平成 28 年度 電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2016

S. Use, T. Kawashima, M. Nagao and Y. Murakami: "Development of Thermal Conductive PMMA/BN Electric Insulating Composite Material Produced by Electrostatic Adsorption Method", 2016 Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2016

宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、長尾雅行、村上義信：「各種作製条件が静電吸着法により作製した放熱性コンポジット絶縁材料の電気・熱的特性に与える影響」、平成 28 年度 電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2016

宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、穂積直裕、長尾雅行、武藤浩行、村上義信：「鱗片状窒化ホウ素の配向が静電吸着法で作製したポリメタクリル酸メチル/窒化ホウ素コンポジット電気絶縁材料の電気特性および熱的特性に与える影響」、平成 28 年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2016

宇瀬尚平、山口修平、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、長尾雅行、村上義信：「試料形成温度が静電吸着法による放熱性 PMMA/BN コンポジット電気絶縁材料の電氣的・熱的特性に与える影響」、第 47 回電気電子絶縁材料システムシンポジウム、2016

宇瀬尚平、村上義信、川島朋裕、長尾雅行：「静電吸着法による高放熱性コンポジット絶縁材料の開発」、平成 28 年電気学会全国大会、2016

宇瀬尚平、村上義信、武藤浩行、川島朋裕、長尾雅行：「静電吸着法による放熱性 PMMA/BN コンポジット絶縁材料の作製」、平成 27 年度 電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2015

宇瀬尚平、村上義信、武藤浩行、川島朋裕、長尾雅行：「静電吸着法を用いた放熱性 PMMA/BN コンポジット絶縁材料の作製」、平成 27 年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2015

〔図書〕(計 2 件)

伊藤雄三 他、情報技術協会、放熱・高耐熱材料の特性向上と熱対策技術 ～フィラー、封止材料、基板、シート、接着・接合材料～、2017、131-139

和田憲一郎 他、情報技術協会、E V ・ H E V 向け電子部品、電装品開発とその最新事例、2018、195-202

〔産業財産権〕

出願状況 (計 2 件)

名称：複合絶縁板および複合絶縁板の製造方法

発明者：村上義信、長尾雅行、川島朋裕、武藤浩行

権利者：同上

種類：特許

番号：特開 2017-037833 (特願 2015-155609、特願 2016-135561)

出願年：2015、2016

国内外の別：国内

名称：高耐熱機能を付加した放熱性コンポジット絶縁板

発明者：村上義信、菊池暁生

権利者：同上

種類：特許

番号：特願 2018-37228

出願年：2018

国内外の別：国内

取得状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等
<http://dei.ee.tut.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：長尾 雅行

ローマ字氏名：(NAGAO, Masayuki)

研究協力者氏名：川島 朋裕

ローマ字氏名：(KAWASHIMA, Tomohiro)

研究協力者氏名：武藤 浩行

ローマ字氏名：(MUTO, Hiroyuki)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。