

令和 3 年 6 月 28 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01425

研究課題名(和文) 静電吸着法を用いた革新的放熱性コンポジット絶縁材料の開発

研究課題名(英文) Development of innovative thermal conductive composite insulating material using electrostatic 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) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：自動車用パワーモジュールに使用される放熱性コンポジット絶縁板は高い熱伝導性、許容可能な電気絶縁性および熱的安定性などが要求される。本研究では静電吸着法を用いて熱可塑性ポリイミド(tpPI)/六方晶窒化ホウ素(h-BN)コンポジット材料を作製した。tpPI/配向h-BNコンポジット材料の熱分解温度は240を超え、熱伝導率は10 W/mK以上を示した。また、同材料の直流絶縁破壊の強さは150 kV/mm以上を示した。本材料は、高い熱安定性、高い放熱特性および許容可能な電気絶縁性を示したことから次世代のパワーモジュール用コンポジット材料の有力な候補の一つになると考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

静電吸着法は特殊かつ高価な装置を必要としないため、コスト低減に寄与する可能性が多いにあり、簡便な方法のためスケールアップが容易であるという特徴も有する。さらには、静電吸着法は粒子の材質、吸着量を制御することにより任意構造のコンポジット材料を作製することができる。この特徴も生かして当該研究ではコンポジット絶縁材料の熱伝導等のシミュレーションおよび理論的熱伝導率の評価も実施するため、学術的な価値が高い。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、放熱の問題はすべての電力機器の信頼性にかかわる問題であるため、当該研究は学術的・工学的な意義・発展性が大きいにあるものと思われる。

研究成果の概要(英文)：A thermal conductive plate in a device like a power module for an automobile requires materials with a high thermal conductivity, acceptable electric breakdown strength, and high thermal stability. Thermoplastic polyimide (tpPI)/ oriented hexagonal boron nitride (h-BN) composite materials are produced by an electrostatic adsorption method. The tpPI/oriented h-BN composite shows high thermal properties (glass transition temperature of about 240 and thermal conductivity of 10 W/mK or more, etc.) In addition, the DC breakdown strength exceeds 150 kV/mm. It is cleared that the tpPI/oriented h-BN composite exhibits an acceptable breakdown strength, high thermal conductivity, and high thermal stability. This composite using electrostatic adsorption method is considered a strong candidate composite of a thermally conductive composite insulating materials.

研究分野：誘電・絶縁工学

キーワード：静電吸着法 熱可塑性ポリイミド 六方晶窒化ホウ素 放熱性コンポジット絶縁材料 熱特性 電気絶縁性

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、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-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気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高い放熱特性、熱安定性および許容可能な電気絶縁性をもつコンポジット絶縁材料を開発することが目的とした。

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性コンポジット絶縁材料の開発に向けて、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、最も基本的電気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、これまででない特性（絶縁破壊の強さ：100 kV/mm以上、熱伝導率：10 W/(m・K)以上、熱分解温度：773 K）をもつ放熱コンポジット絶縁材料を開発した。

4. 研究成果

図1に静電吸着法の概略図を示す。核となる粒子（粒径が大きい粒子）としては鱗片面の長手方向の平均粒径が45 μm のh-BNを用いた。また、吸着粒子（粒径が小さい粒子）としては粒径20 μm 以下のtpPI粒子を用いた。図1に示したように表面電位を負とする界面活性材であるデオキシコール酸ナトリウム（SDC）またはポリスチレンスルホン酸ナトリウム（PSS）、および表面電位を正とするポリジアリルジメチルアンモニウムクロリド（PDDA）を用いてtpPIの表面電位を相反するよう交互に調整し、最終的にtpPIの表面電位を負とした。同様にh-BNの表面電位を正とした。表面電位を負としたtpPI吸着粒子および表面電位を正としたh-BN核粒子をイオン交換水中で混合し、静電相互作用によりh-BN核粒子表面にtpPI吸着粒子が吸着したコンポジット粒子を作製した。

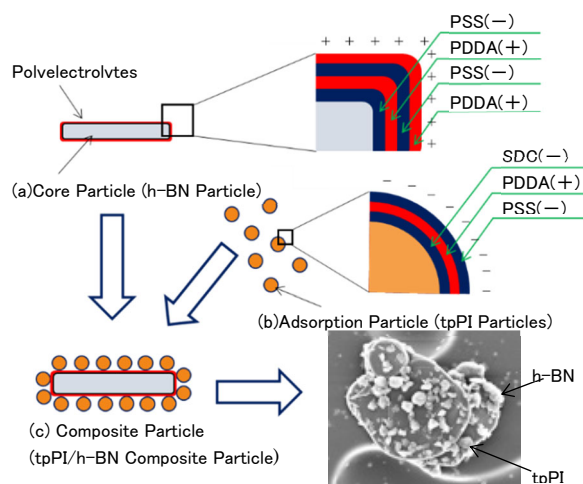


図1 静電吸着法によるコンポジット粒子の作製

図2に各種コンポジット材料作製方法を示す。同図(a)に示したように熱可塑性ポリイミド(tpPI)/六方晶窒化ホウ素(h-BN)からなるコンポジット粒子を含むイオン交換水を直径10 mmの穴を開けたアクリル製治具に滴下した後、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コンポジット粒子を配向させ、c軸方向にホットプレス(50MPa, 60分、673K)することにより直径10 mm、厚さ約1.4 mmの試料(横配向試料)を作製した。遠心力の条件は室温、3000 rpm(1720×g)、10分間であり、機械的圧力の条件は約0.5 kPaとし、遠心分離後のコンポジット粒子塊の厚さ2.3 mmが約2 mmとなるまで圧力を印加した。同図(b)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40×10×3 mm(高さ×幅×厚さ)の空間を持つ治具に滴下し、同図(a)と同様に同図(b)のc軸方向に対して遠心力及び機械的圧力を印加し、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、

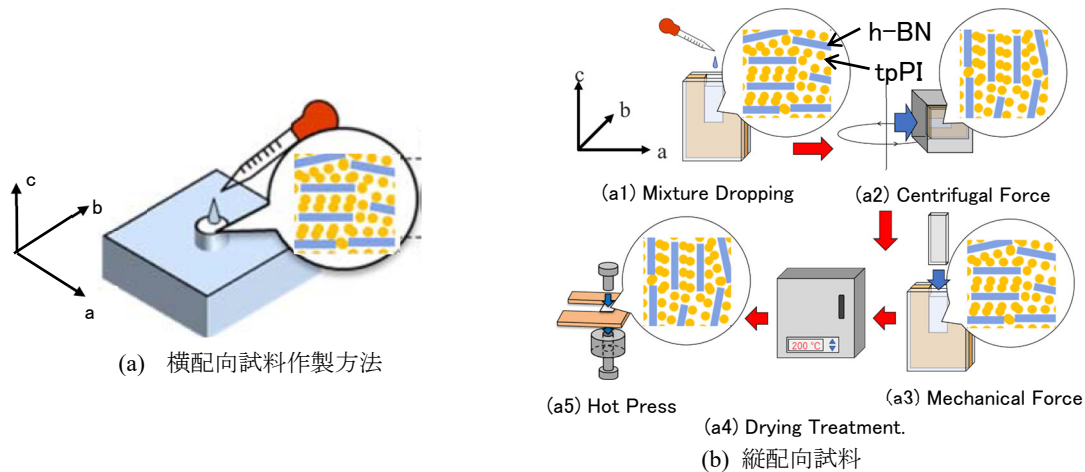


図2 横配向試料と縦配向試料

遠心分離後のコンポジット粒子塊の高さ 25 mm が約 12 mm となるまで 30×10×3 mm のアクリル棒を用いて同図 (b) 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 (b) 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 (b) の b 軸方向にホットプレスすることにより、直径 10 mm、厚さ約 1 mm の試料 (縦配向試料) を作製した。

図 3 に tPI/配向 h-BN コンポジット (縦配向) 試料の破断面における SEM 画像を示す。図 3 に示したように h-BN の鱗片面が観測されていることから、作製した材料の h-BN は厚さ (熱伝導率測定) 方向に対して水平に配向していることが確認された。図 4(a) に tPI/配向 h-BN コンポジット材料の TG-DTA 曲線、同図 (b) に DSC 曲線を示す。図 4(a) に示したように 500° C 付近から TG 曲線が減少し始め、DTA 曲線は増加 (発熱) した。一般的な h-BN の熱分解温度は 2300°C であることを勘案すると、温度 500°C 程度から tPI が熱分解し始めたと考えられる。図 4(b) に示したように DSC 曲線上のラインより評価したクロス点が 240° C 付近であることがわかる。用いた tPI のガラス転移温度は 250°C 付近であることから、tPI/配向 h-BN コンポジット材料のガラス転移点は 240° C 付近と考えられる。このように作製した tPI/配向 h-BN コンポジットは高い熱的安定性を持っていることが分かった。

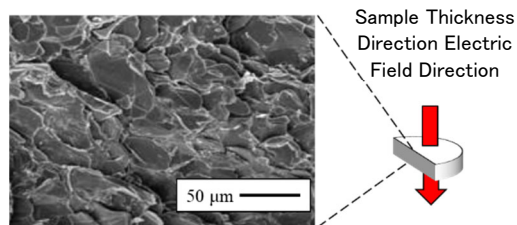
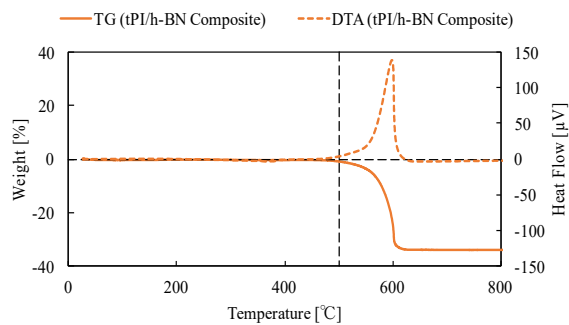
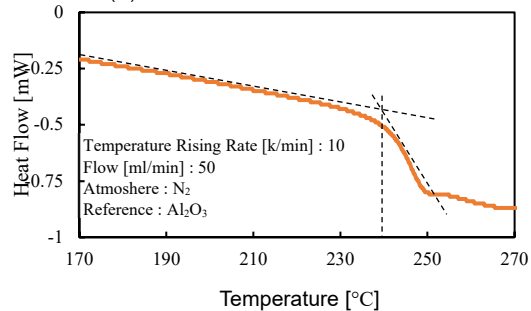


図3 縦配向試料の破断面の SEM 画像



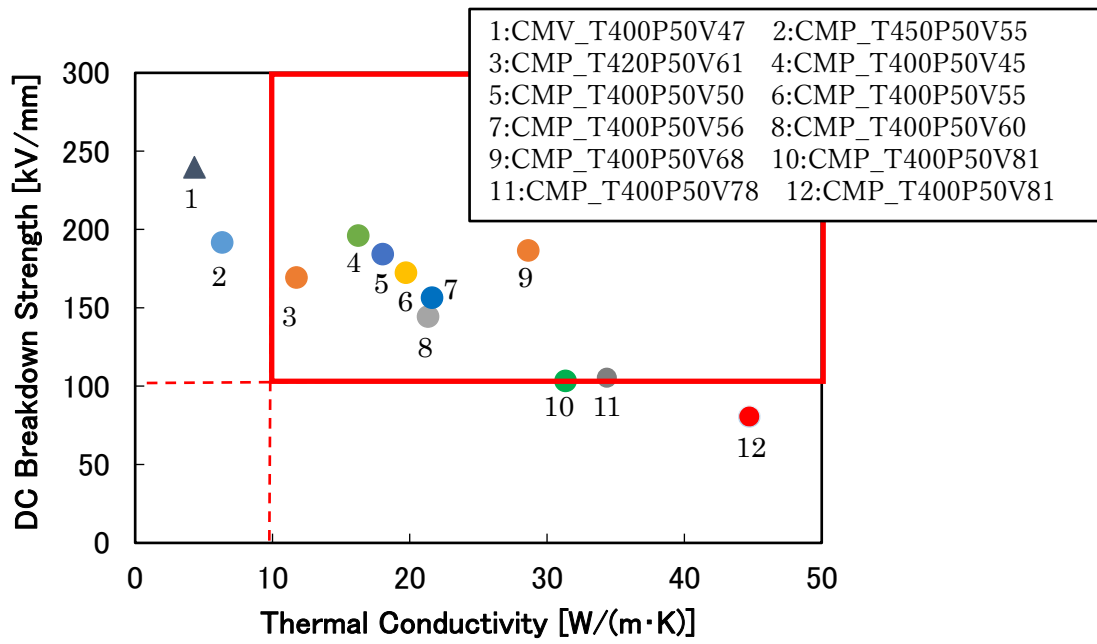
(a) TG-DTA results of tPI/h-BN



(b) DSC results of tPI/h-BN

図4 tPI/h-BN の TG-DTA と DSC 曲線

図 5 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 (縦配向) 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。



CMV：横配向試料、CMP：縦配向試料
 T:ホットプレス温度 (K)、P:ホットプレス圧力(MPa)
 V:h-BN 含有量 (vol%)

図 5 各試料における絶縁性と放熱特性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

| | |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名 村上義信、松原貴幸、川島朋裕、穂積直裕 | 4. 巻 139 |
| 2. 論文標題 中空シリカの添加がエポキシ樹脂の基礎電気特性に与える影響 | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 電気学会論文誌A | 6. 最初と最後の頁 387 ~ 392 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1541/ieejfms.139.387 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Murakami Yoshinobu, Hamasaki Norikazu, Kikuike Akio, Kawashima Tomohiro, Hozumi Naohiro | 4. 巻 15 |
| 2. 論文標題 Development of Thermal Conductive tpPI/Oriented h BN Insulating Composite Material Using the Electrostatic Adsorption Method | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 IEEJ Transactions on Electrical and Electronic Engineering | 6. 最初と最後の頁 1580 ~ 1584 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/tee.23228 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名 Hamasaki Norikazu, Yamaguchi Shuhej, Use Shohei, Kawashima Tomohiro, Muto Hiroyuki, Nagao Masayuki, Hozumi Naohiro, Murakami Yoshinobu | 4. 巻 139 |
| 2. 論文標題 Electrical and Thermal Properties of PMMA/h-BN Composite Material Produced by Electrostatic Adsorption Method | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials | 6. 最初と最後の頁 60 ~ 65 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1541/ieejfms.139.60 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 0件／うち国際学会 2件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 南亮輔、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 静電吸着法を用いた PMMA/h-BN 複合絶縁材料の インパルス絶縁破壊の強さの温度依存性 |
| 3. 学会等名 令和元年度 電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 菊池晃生、濱崎訓和、南亮輔、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 静電吸着法を用いた放熱性 tPI/配向h-BNコンポジット材料開発 |
| 3. 学会等名 電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料 DEI-19-107～116 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 R. Minami, N. Hamasaki, T. Kwashima and Y. Murakami |
| 2. 発表標題 Electrical and Thermal Properties of PMMA/h-BN Composite Insulating Materials Produced by Electrostatic Adsorption Method |
| 3. 学会等名 2019 Annual Report. Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 濱崎訓和、南亮輔、武藤浩行、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 h-BN の含有率が静電吸着法を用いたtpPI/h-BN コンポジット材料の電氣的・熱的性質に与える影響 |
| 3. 学会等名 第49回電気電子絶縁材料システムシンポジウム |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 濱崎訓和、南亮輔、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 各種条件が静電吸着法を用いたtpPI/h-BNコンポジット材料の電氣的・熱的性質に与える影響 |
| 3. 学会等名 電気学会研究会資料 誘電・絶縁材料研究会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 菊池晃生、濱崎訓和、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 h-BN含有量が静電吸着法を用いたtpPI/h-BNコンポジット絶縁材料の電気・熱特性に与える影響 |
| 3. 学会等名 平成31年電気学会全国大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 濱崎訓和、南亮輔、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 試料成形温度が静電吸着法を用いたtPI/h-BN複合絶縁材料の電氣的・熱的特性に与える影響 |
| 3. 学会等名 平成31年電気学会全国大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Takeru Tachibana, Kosei Kikuike, Tomohiro Kawashima, Naohiro Hozumi and Yoshinobu Murakami: |
| 2. 発表標題 Temperature-dependent Electrical and Thermal Characteristics of tpPI/h-BN Composite Insulating Material Using Electrostatic Adsorption Method |
| 3. 学会等名 2020 International Symposium on Electrical Insulating Materials (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 南亮輔、濱崎訓和、川島朋裕、武藤浩行、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 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 |
| 3. 学会等名 平成30年度 電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 南亮輔、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 静電吸着法を用いた PMMA/h-BN 複合絶縁材料の電氣的及び熱的特性 |
| 3. 学会等名 第50回 電気電子絶縁材料システムシンポジウム |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 南亮輔、菊池晃生、川島朋裕、穂積直裕、村上義信、下野耕大、柳田憲史 |
| 2. 発表標題 電極面積が静電吸着法を用いたtPI/配向h-BN複合絶縁材料の交流絶縁破壊強さに与える影 |
| 3. 学会等名 令和2年電気学会全国大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 橘建、穂積直裕、川島朋裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 測定温度が静電吸着法を用いたtPI/h-BNコンポジット絶縁材料の電気・熱的特性に与える影響 |
| 3. 学会等名 令和2年電気学会基礎・材料・共通部門大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 橘建、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 電吸着法を用いた放熱性tpPI/h-BNコンポジット絶縁材料の大面积化 |
| 3. 学会等名 令和3年電気学会全国大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 一場悠仁、川島朋裕、穂積直裕、村上義信 |
| 2. 発表標題 静電吸着法を用いたPMMA/SiO ₂ ナノコンポジット絶縁材料の開発 |
| 3. 学会等名 令和3年電気学会全国大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計1件

| | |
|-------------------------------|-----------------|
| 1. 著者名 岩室憲幸、・・・。村上義信、・・・ 他 | 4. 発行年 2019年 |
| 2. 出版社 エヌ・ティー・エス | 5. 総ページ数 409 |
| 3. 書名 サーマルデバイス | |

〔出願〕 計1件

| | | |
|------------------------------------|------------------|---------------|
| 産業財産権の名称 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、菊池晁生 | 権利者 同左 |
| 産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-37228 | 出願年 2018年 | 国内・外国の別 国内 |

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---|--|----|
| 研究協力者 | 穂積 直裕 (HOZUMI Naohiro) (30314090) | 豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (13904) | |
| 研究協力者 | 武藤 浩行 (MUTO Hiroyuki) (20293756) | 豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (13904) | |

6. 研究組織（つづき）

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---|--|----|
| 研究協力者 | 川島 朋裕 (KAWASHIMA Tomohiro) (70713824) | 豊橋技術科学大学・工学（系）研究科（研究院）・助教 (13904) | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |