

Title	高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料
Author(s)	三村, 研史; 中村, 由利絵; 正木, 元基 他
Citation	電気材料技術雑誌. 2020, 29, p. 7-17
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/77720">https://doi.org/10.18910/77720</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## 高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料

三村研史、中村由利絵、正木元基、西村隆

三菱電機株式会社 先端技術総合研究所 兵庫県尼崎市塚口本町8丁目1-1

### High Heat Resistance and High Thermal Conduction Resin Composite Material

Kenji Mimura, Yurie Nakamura, Motoki Masaki and Takashi Nishimura

ADVANCED TECHNOLOGY R&D CENTER, MITSUBISHI ELECTRIC Corp. 8-1-1 Tsukaguchi-Honmachi, Amagasaki, Hyogo, 661-8661, JAPAN

In the power module products, insulated materials are asked for high heat dissipation along with achievement of downsizing and high efficiency of the electronic equipment. In order to give high thermal conductivity to the thermosetting resin like the epoxy resin, composite with high heat conduction ceramic, such as boron nitride (BN), is investigated. The orientation control of BN particle by blending the aggregated BN filler realized the high thermal conductivity more than  $18\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ . In addition, the adhesion strength with copper was greatly improved while maintaining the high heat resistance by adding flexible resin in high heat-resistant cyanate ester resin. By a combination in these techniques, the high heat resistance and high thermal conduction resin composite material was developed.

キーワード：窒化ホウ素粒子、高熱伝導、高耐熱、絶縁材料

#### 1. 緒言

世界的な環境保護意識の高まりにより、化石燃料消費削減やCO<sub>2</sub>ガス排出削減などの環境保全活動が拡大している。このような活動に対し、資源とエネルギーを有効活用するパワーエレクトロニクスとそのキーパーツであるパワーデバイスは、鉄道や自動車、産業用機器、一般の家電製品にいたる様々な分野に適用され、年々その需要が高まっている。

近年、パワーエレクトロニクスの中心となるパワーモジュール製品の高性能化・コンパクト化が著しく進展し、モジュールを構成するデバイス内部から発生する熱が増大の一途をたどっている。そのため、発生した熱を効率よくデバイス外部に放熱することが重要な課題であり、従来にも増して熱対策の重要性が増している<sup>1-3)</sup>。

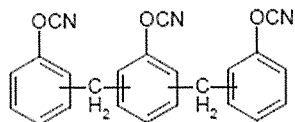
パワーデバイスを実装する絶縁基板には、銅な

ど金属との接着性に優れ、加工性も良く比較的安価である樹脂絶縁材料の適用が検討されている。しかしながら、熱硬化性樹脂をベースとした樹脂絶縁材料を絶縁基板に適用するにあたっては、樹脂材料の弱点である熱伝導性や耐熱性の改善が必須となっている。近年、この樹脂絶縁材料の放熱性や耐熱性を改善するため、エポキシ樹脂などの樹脂材料に電気絶縁性で高熱伝導性を有する無機フィラーを充填する有機/無機複合化が検討されている。そこで本報では、絶縁性で高熱伝導を有するBN粒子を配合した樹脂複合材料を絶縁基板に適用するため、放熱性や耐熱性に優れ、銅などの接着性を改善した高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料について検討した。

## 2. 実験

### 2.1 試料

高熱伝導化検討のマトリクス樹脂には、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (jER828US、三菱ケミカル製) を用いた。また、高耐熱化検討のマトリクス樹脂として、ノボラック型シアネートエステル樹脂 (XU-371: ハンツマン・ジャパン製)、柔軟性付与剤として可とう性骨格型フェノキシ樹脂 (YL7178BH40: 三菱ケミカル製) を用いた。ノボラック型シアネートエステル樹脂に配合する可とう性骨格型フェノキシ樹脂の割合は 10~75wt%まで変化させた。高熱伝導フィラーとして鱗片 BN 粒子や凝集 BN 粒子を用いた。BN 粉末をマトリクス樹脂に充填率が 50~75vol%となるように配合し、9.8~19.6MPa の成形圧力で 150°C/30 分+230°C/1 時間成形することで評価用シート状サンプルを作製した。



シアネートエステル樹脂

### 2.2 特性評価

樹脂複合材料の熱伝導率の測定は、両面 105  $\mu$  m 銅箔を貼りつけた 200  $\mu$  m から 800  $\mu$  m までの厚みの異なる 4 種のシート状サンプルを作製し、各試料の厚み方向の熱抵抗を定常法で測定し、試料厚みに対する熱抵抗をプロットした傾きから熱伝導率 (厚み方向) を求めた。

シート中の BN 粒子の配向は、X 線回折 (RINT2500: リガク製) を用いて評価した。BN 充填シートに X 線を照射し、h-BN 結晶面方向の (002) 面と層方向の (100) 面の回折ピーク強度比から下式により定量化した。

$$[\text{配向度}] = I_{(002)\text{面}} / I_{(100)\text{面}} \quad (I \text{ は X 線回折強度})$$

樹脂及び樹脂複合材料の動的粘弾性の測定は、強制振動型粘弾性測定装置 (DMS) を用い、引張モードで行った。測定温度は室温から 450°C、周波数は 1Hz として測定した。

接着ピール強度の測定は、両面 105  $\mu$  m 銅箔を貼りつけた厚さ 150  $\mu$  m (銅箔部分除く) の樹脂

複合材料を 10mm 幅に切断し、引張試験機 (オートグラフ AG-5000D: 島津製作所製) を用い、引張速度 50mm/min で測定した。

樹脂複合材料の絶縁破壊電圧の測定は、絶縁耐圧試験装置 (コロナフリー式交流試験用電源装置 D509: 三菱電線製) にて測定した。測定は、1 分ごとに 0.5kV ずつステップ昇圧させる方法で実施した。

樹脂複合材料の半田リフロー処理は、絶縁シートを 260°C~300°C の半田浴に 10 分間浸した。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 高熱伝導化

はじめに高熱伝導を有する BN フィラーによる樹脂複合材料の高熱伝導化について検討した。図 1 にエポキシ樹脂をマトリクスに用い、高熱伝導性フィラーとして鱗片形状をした六方晶 BN を充填した樹脂複合材料のフィラー充填量と厚み方向の熱伝導率の関係を示す。鱗片 BN を 50vol% 充填した樹脂複合材料の熱伝導率は 6W/(m·K) である。複合材料の熱伝導率は鱗片 BN の充填量の増加に伴い向上し、充填量 67vol% のときに 10W/(m·K) を示した。しかし、それ以上 BN 充填量を増やすと熱伝導率は低下した。図 2 に鱗片 BN を充填した樹脂複合材料の断面 SEM 観察写真を示す。上下方向が厚み方向であり、鱗片形状の BN 粒子が (水平) 面方向に配向しているのがわかる。これは、樹脂複合材料の厚み方向の熱伝導率の向上を阻害する要因になる。BN 粒子の結晶は六方晶構造を形成するために熱伝導率に異方性を示し、結晶の面方向の熱伝導率は厚さ方向の数倍から数十倍と言われている<sup>4)</sup>。従って、BN 粒子が面方向に配向すると厚み方向の熱伝導率が十分に得られない。

そこで、熱伝導率に異方性を持つ鱗片状 BN 粒子の面方向への配向を抑制するため、鱗片状 BN 粒子を凝集させた球状に近い凝集粒子 (BN 凝集体) の配合を試みた<sup>5-9)</sup>。この BN 凝集体は、図 3 に示すように様々な方向を向いた鱗片状の BN 一次粒子が凝集して数十  $\mu$  m の凝集体を形成しており、凝集体の熱伝導率は等方性を示すものと推察

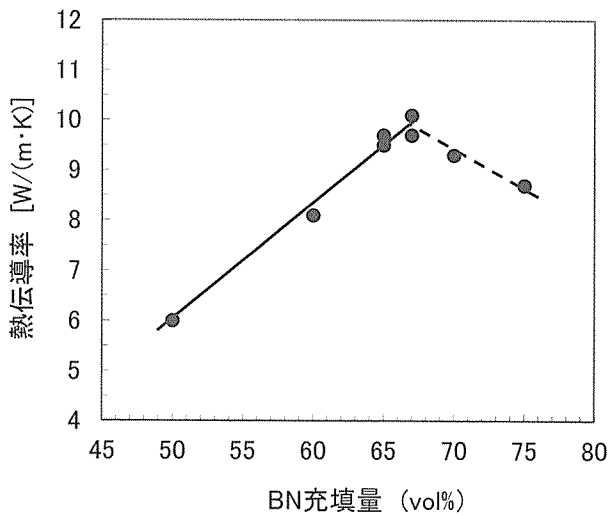


図 1. 樹脂複合材料における BN 充填量と熱伝導率の関係  
Fig.1 Relationship between flake-like BN filler content and thermal conductivity.

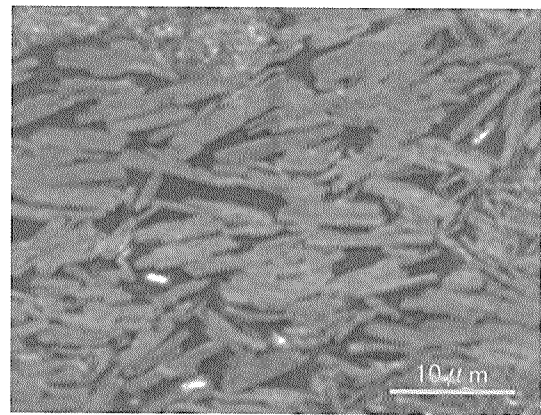


図 2. 鱗片状 BN を充填した樹脂複合材料の断面 SEM 写真

Fig.2 SEM micrograph of insulated layer in the resin composite material filled with flake-like BN particles.

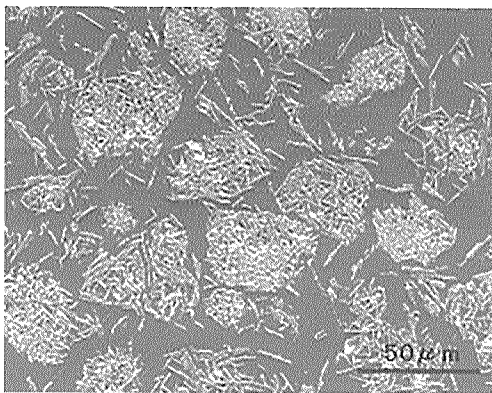
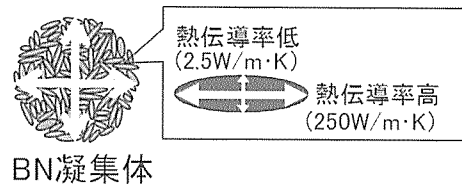


図 3. BN 凝集体の断面 SEM 写真

Fig.3 SEM micrograph of the aggregated BN particles.



される。この BN 凝集体をエポキシ樹脂に充填した樹脂複合材料を成形すると、材料中の BN 粒子の面方向の配向を抑制することができ、厚み方向の熱伝導率を向上できる。

図 4 には BN 粒子の凝集体を配合した樹脂複合材料の断面を SEM で観察した結果を示す。BN 凝集体を充填した系では個々の BN 粒子が一定方向に配向することなく種々の方向を向いているのが分かる。このように BN 凝集体を配合すると BN 粒子の面方向の配向を抑制するのに効果的であることが確認された。そこで、BN 凝集体をエポキシ樹脂に充填して得られた樹脂複合材料の熱伝導率や BN 粒子の配向について評価した。

図 5 には樹脂複合材料の厚み方向の熱伝導率と

X 線回折における結晶面方向と層方向の回折ピークの強度比より算出した配向度を示した。BN の充填率を 50vol% に固定し、BN 凝集体の配合割合を変えることで複合材料中の BN 粒子の配向度を振り、それぞれの配向度における熱伝導率をプロットしている。比較として、鱗片 BN を異なる充填率 (50vol%、60vol%、70vol%) で単独充填した系についても示した (図 5 中の△◇○)。鱗片状 BN 粒子を単独で充填した系では、充填量 50vol% から 70vol% へと増加しても、BN 粒子の配向が進むだけで厚み方向の熱伝導率の大きな向上が得られない。これに対し、BN 凝集体を配合した樹脂複合材料は BN 充填量が 50vol% と一定であっても、BN 凝集体を配合して面方向への配向を

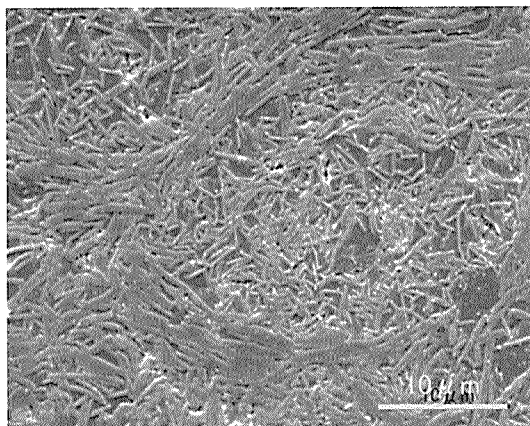


図4. 鱗片状BNを充填した樹脂複合材料の断面SEM写真

Fig.4 SEM micrograph of insulated layer in the resin composite material filled with aggregated BN particles.

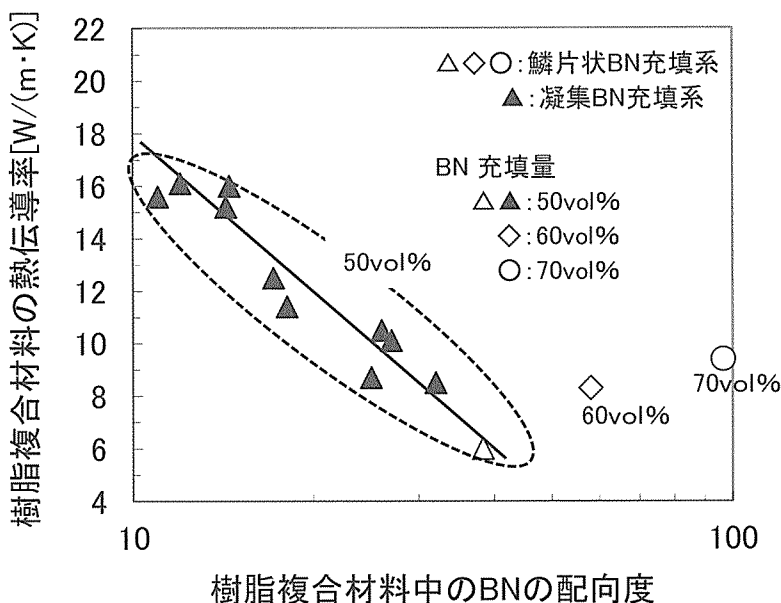


図5. 樹脂複合材料中のBN配向度と熱伝導率（厚み方向）の関係

Fig.5 Relationship between orientation and thermal conductivity of the resin composite materials filled with aggregated BN particles.

抑制すると、すなわち配向度を小さくすると、樹脂複合材料の厚み方向の熱伝導率は大きく向上し、 $16\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上と高い熱伝導率が得られた。このように、熱伝導率に異方性を示すBN粒子の面方向への配向を制御することで、樹脂複合材料の厚み方向の熱伝導率を飛躍的に向上できる。また、図6に従来の鱗片BN粒子配合系と凝集BN粒子配合系のBN充填量と厚み方向の熱伝導率の関係を示したが、凝集BN粒子を配合して充填量を増すと、 $18\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上とセラミック材料並みの高い熱伝導率が得られた。

これら凝集BNフィラーを充填した樹脂複合材料の電気絶縁性について評価を行った。図7にBN充填率と破壊電界の関係を示す。これらBN充填した複合材料の破壊電界は鱗片や凝集などBN形状や充填率にかかわらず $50\text{kV}/\text{mm}$ と安定な値を示す。これらは、フィラー種毎に充填性を考慮したポイドレス設計を行うことにより、絶縁性を確保できるものと考えられる。

以上、熱伝導率の異方性を示すBN粒子の配向を制御することによって低充填量で熱伝導率を大きく向上することができ、アルミナなどのセラミ

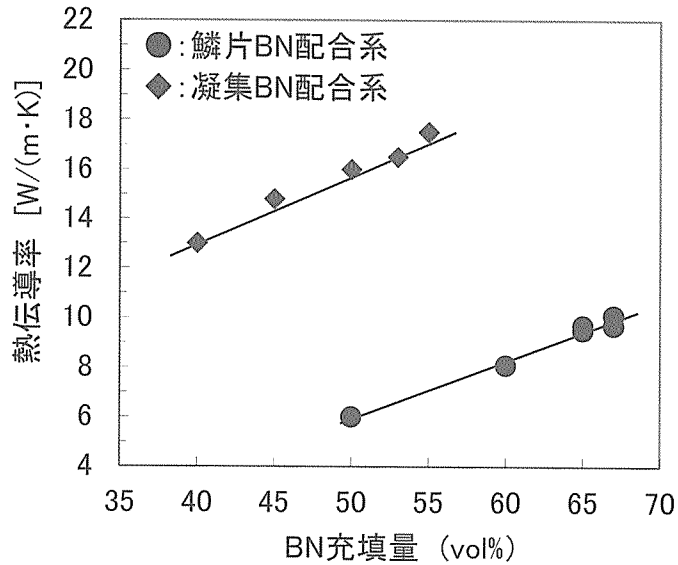


図6. BN フィラーを配合した系の充填量と熱伝導率の関係

Fig.6 Relationship between BN content and thermal conductivity of the resin composite materials.

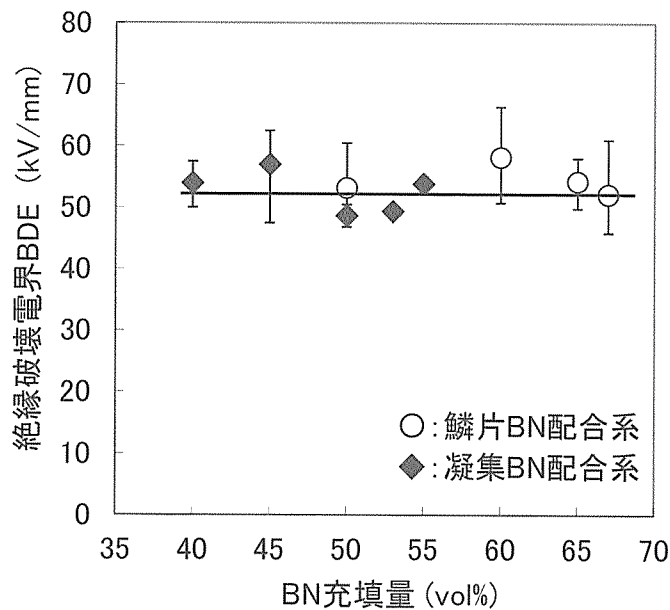


図7. BN 配合系の充填量と破壊電界との関係

Fig.7 Relationship between BN content and breakdown electric field of the resin composite materials.

ック材料に匹敵する熱伝導率を有し、成形性が容易な樹脂複合材料を得ることができる。

### 3.2 高耐熱化

樹脂複合材料をパワーモジュールの絶縁基板に適用するにあたっては、はんだリフローにおける高温雰囲気下で電気絶縁性が低下しないような耐熱性や銅など金属基材との接着性が求められる。樹脂複合材料の耐熱性は、マトリクス樹脂の構造

が支配的である。一方、接着性については、マトリクス樹脂、フィラーの種類、形状、被着体の材質、その表面状態など種々の要因がある。高熱伝導化が実現できる BN フィラーは離型潤滑剤として使用され接着性は低い。そのため、BN フィラー充填した樹脂複合材料に如何に接着性を付与できるかが耐はんだリフロー性向上には重要である。

耐熱性の高いマトリクス樹脂として、300℃以上のガラス転移温度 (Tg) を示す高耐熱樹脂のひとつ

つであるシアネートエステル樹脂がある。シアネートエステル樹脂は、シアネート基が加熱により付加重合反応（環化三量化反応）し、剛直なトリアジン構造を生成するために耐熱性に優れる。そこで、シアネートエステル樹脂の中でも特に耐熱性に優れるノボラック型シアネートエステル樹脂をマトリクス樹脂に選定し、凝集 BN を配合して熱伝導率 18W/(m・K) 以上の高熱伝導性を確保する BN フィラー高充填（62vol%）した樹脂複合材料で検討した<sup>9)</sup>。

シアネートエステル樹脂に BN フィラーを高充填した樹脂複合材料の動的粘弾性を図 8 に示す。測定温度 380°C 付近まで、弾性率は  $10^{10}$ Pa と高い値を示し、Tan  $\delta$  も 350°C 近くまで平坦で、402°C に Tg に基づくピークが見られることから、ノボラック型シアネートエステル樹脂をベースにした樹脂複合材料は非常に高い耐熱性を示すことがわかる。

また、この樹脂複合材料の熱伝導率（厚み方向）は、表 1 に示すように 18W/(m・K) 以上の高い熱伝導性を有する。一方、樹脂複合材料の 90° ピールにて測定した接着ピール強度は 2.6N/cm と低い値であった。そのため BN 粒子を充填して高熱伝導を有する樹脂複合材料を絶縁基板に適用するためには銅など金属との接着性を向上する必要がある。

図 9 にシアネートエステル樹脂単独の樹脂複合材料の接着ピール試験後の試験片の断面写真を示した。銅箔側に BN 粒子を含んだ絶縁層が付着しており、接着ピール強度測定試験による破壊は BN フィラーと樹脂の界面で破壊が進行していることがわかる。したがって、ノボラック型シアネートエステル樹脂を適用した樹脂複合材料の接着性を向上させるためには、BN フィラーと樹脂の界面の接着性を向上させることが重要と考えられる。一般的に、無機フィラーと樹脂の界面の接着

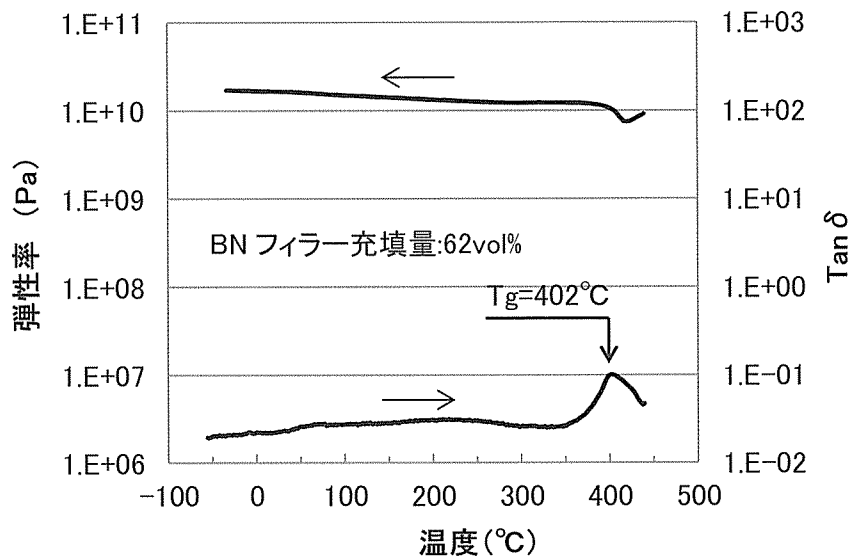


図 8. シアネートエステル樹脂単独の複合材料の動的粘弾性

Fig.8 Dynamic mechanical analysis of the material composited with only novolac type cyanate ester resin.

表 1. シアネートエステル樹脂単独の複合材料の特性

Table1 The various properties of the material composited with only novolac type cyanate ester resin.

		特性
熱伝導率	W/(m・K)	18.3
接着ピール強度	N/cm	2.6
ガラス転移温度	°C	402

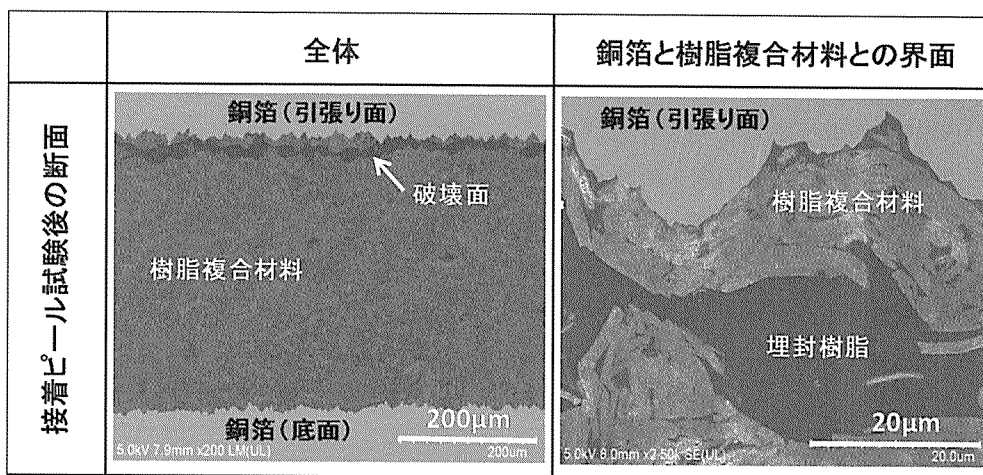


図9. シアネートエステル樹脂単独の複合材料の接着ピール試験後の断面 SEM 写真

Fig.9 SEM micrograph of the adhesion peel examination sample in the material composited with only novolac type cyanate ester resin.

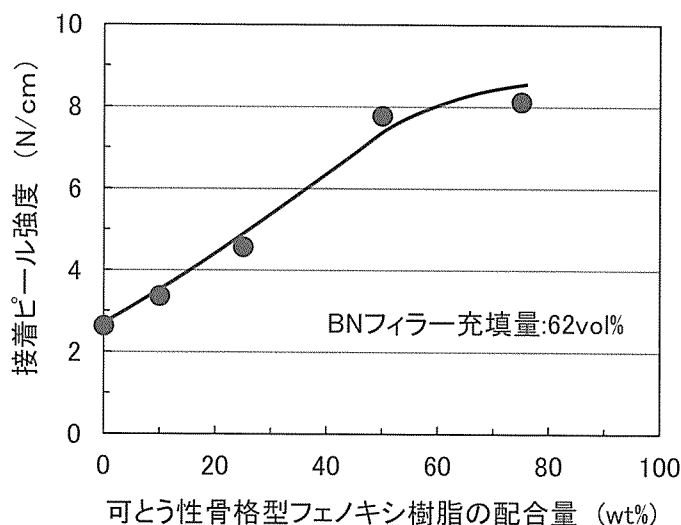


図10. シアネートエステル樹脂にフェノキシ樹脂を配合した樹脂複合材料の接着ピール強度

Fig.10 Influence of blending the flexible phenoxy resin to cyanate ester resin composite materials affects adhesion peel strength.

性を向上させる手法として、無機フィラーのカップリング処理が考えられるが、BN フィラーの表面には官能基が少ないため、カップリング処理による効果は小さい。

樹脂の特性改善の手法のひとつとして、複数のポリマーを組み合わせるポリマーアロイがあり<sup>10)</sup>、シアネートエステル樹脂複合材料の接着強度向上にもこの手法を適用した。ノボラック型シアネートエステル樹脂に柔軟性に富む可とう性骨格型フェノキシ樹脂を配合した。図10には、ノボラック型シアネートエステル樹脂に可とう性骨格型フェノキシ樹脂を配合した樹脂複合材料のフェノキシ樹脂配合量と接着ピール強度の関係を示した。樹

脂複合材料の接着強度は、フェノキシ樹脂配合量の増加に伴って向上し、フェノキシ樹脂を25wt%配合すると接着強度はシアネートエステル樹脂単独系に比べて約1.8倍、さらに50wt%配合した場合は約3倍まで向上した。これら樹脂複合材料の接着強度測定後の破断面(図11)は、先の図9で示したシアネートエステル樹脂単独系と同様に、BN フィラーと樹脂の界面で破壊が進行していた。このことから、フェノキシ樹脂を配合することにより、BN フィラーと樹脂との相互作用が強くなり接着ピール強度が向上したものと推察できる。このようにシアネートエステル樹脂と可とう性骨格型フェノキシ樹脂のポリマーアロイ化は、



BN フィラーを充填した樹脂複合材料の接着性の向上に有効である。

シアネートエステル樹脂に可とう性骨格型フェノキシ樹脂をブレンドしたときの硬化物構造を解明するために、フィラー未配合の樹脂単独の硬化物について検証した。フェノキシ樹脂の配合量 0wt%と 50wt%の樹脂硬化物の断面を SEM で観察

した結果を図 12 に示す。なお、SEM 観察の前に予め断面を MEK (methyl ethyl ketone) でエッチングすることによりフェノキシ樹脂を取り除いた。図 12(a) 及び (c) には低倍率で硬化物の全体を観察した結果を、図 12(b) 及び (d) には相構造を高倍率で観察した結果を示している。なお、図 12(d) は図 12(c) の線で囲んだマトリクス部分を

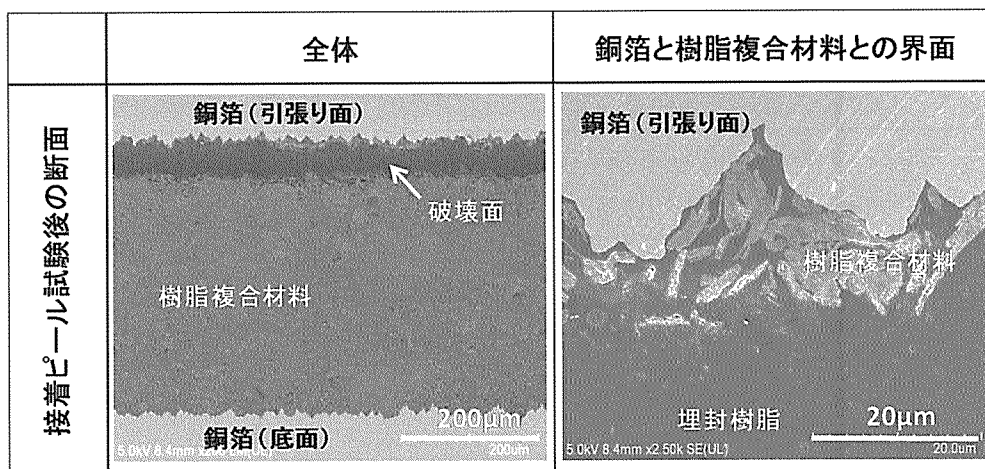


図 11. 可とう性骨格型フェノキシ樹脂を 50%配合したシアネートエステル樹脂複合材料の接着ピール試験後の断面 SEM 写真

Fig.11 SEM micrograph of the adhesion peel examination sample in the cyanate ester resin composite material blended with the flexible phenoxy resin.

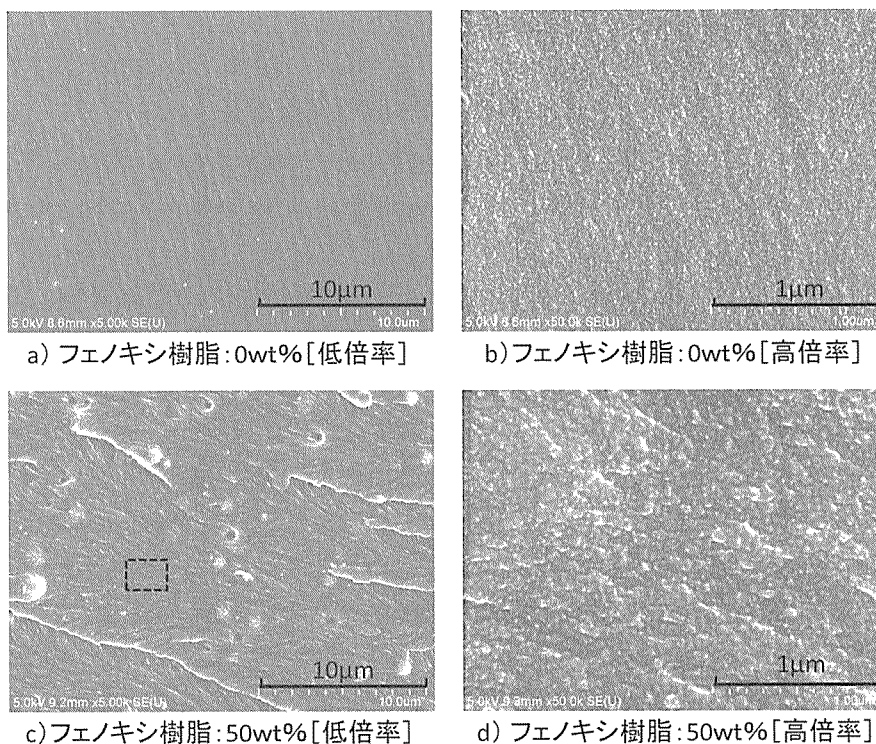


図 12. 可とう性フェノキシ樹脂を配合したシアネートエステル樹脂硬化物の断面 SEM 写真  
 Fig.12 SEM micrograph of the cyanate ester resin blended with the flexible phenoxy resin.

高倍率で観察している。フェノキシ樹脂を配合していないシアネートエステル樹脂単独硬化物の断面は均一であるのに対し（図 12(a)、(b)）、フェノキシ樹脂を 50wt% 配合した硬化物では、シアネートエステル樹脂マトリクス中に直径約  $1\mu\text{m}$  程度のフェノキシ樹脂相が分散する海島構造を形成していることが観察された（図 12(c)）。さらに、図 12(d) のマトリクスを詳細に観察すると、表面の凹凸が大きくなっているのがわかる。図 13 には、ノボラック型シアネートエステル樹脂と可とう性骨格型フェノキシ樹脂を 50wt% 配合した樹脂硬化物（BN フィラー未充填）の動的粘弾性挙動をシアネートエステル樹脂単独及びフェノキシ樹脂単独硬化物の粘弾性挙動と併せて示した。シアネートエステル樹脂単独硬化物の粘弾性は、先の図 8 で示した BN フィラーを充填した樹脂複合材料と同様の挙動を示した。シアネートエステル樹脂単独硬化物の  $\text{Tan } \delta$  ピークは  $391^\circ\text{C}$  と  $400^\circ\text{C}$  近くであった。一方、可とう性骨格型フェノキシ樹脂単独の  $\text{Tan } \delta$  ピークは  $21^\circ\text{C}$  に見られる。フェノキシ樹脂を 50wt% 配合した系では、 $50^\circ\text{C}$  付近から弾性率が一段低下し、 $300^\circ\text{C}$  を過ぎると弾性率は再び低下した。この硬化物の  $\text{Tan } \delta$  は  $100^\circ\text{C}$  と  $300^\circ\text{C}$  付近に 2 つのピークを持つ。これら弾性率、 $\text{Tan } \delta$  挙

動からもシアネートエステル樹脂とフェノキシ樹脂は相分離していることが確認できる。しかし、これら弾性率の低下する温度は、可とう性骨格型フェノキシ樹脂 ( $T_g=21^\circ\text{C}$ )、シアネートエステル樹脂 ( $T_g=391^\circ\text{C}$ ) に比べて、フェノキシ樹脂に基づく弾性率低下温度は高温側に、シアネートエステル樹脂に基づく弾性率の低下は低温側にそれぞれシフトしている。これは、シアネートエステル樹脂及びフェノキシ樹脂は互いに相溶しながら相分離していることを示す。今回ベース樹脂として用いたシアネートエステル樹脂の硬化反応は、環化三量化反応により強固な網目構造を形成する。フェノキシ樹脂は長い分子鎖を持ち、両末端にエポキシ基を有するものの反応性は低く、シアネートエステル樹脂との化学結合はあまり起こらない。そのため、フェノキシ樹脂を配合したシアネートエステル樹脂硬化物では、環化架橋したシアネートエステル樹脂の網目構造に柔軟で分子鎖の長いフェノキシ樹脂が物理的に密に絡まった semi-IPN (Interpenetrating Polymer Networks) 構造を形成しているものと考えられる。

このように耐熱性の高いノボラック型シアネートエステル樹脂に、柔軟性の高い可とう性骨格型フェノキシ樹脂を配合して相溶させると、互いの

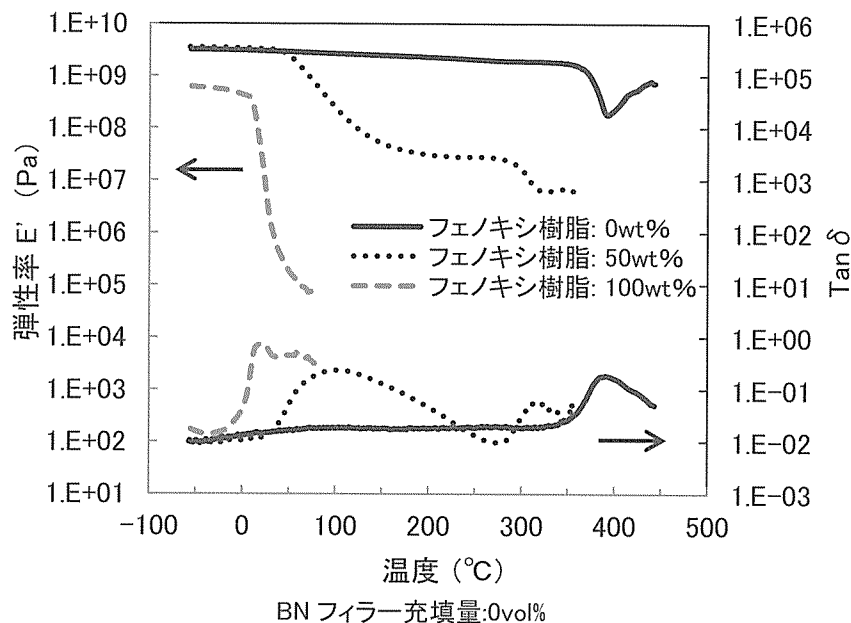


図 13. 可とう性骨格型フェノキシ樹脂を配合したシアネートエステル樹脂硬化物の動的粘弾性測定解析  
Fig.13 Dynamic mechanical analysis of the cyanate ester resins blended with the flexible phenoxy resin.

分子鎖が絡み合った semi-IPN 構造を形成し、樹脂マトリクスと凝集 BN との凝集力が強化されて接着ピール強度が向上したものと推察される。

### 3.3 高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料

耐熱性の高いノボラック型シアネートエステル樹脂に柔軟性の高いフェノキシ樹脂を配合し、BN フィラーを高充填した高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料を開発し、その特性を表 2 に示した。この樹脂複合材料の熱伝導率は、 $19\text{W}/(\text{m}\cdot\text{k})$  とセラミックス材料並の高い熱伝導率を示すとともに、接着ピール強度は  $8.0\text{N}/\text{cm}$  と高い接着性を示した。また、この樹脂複合材料は、成形後の初期の破壊電界が平均  $58\text{kV}/\text{mm}$  と絶縁性にも優れている。長期信頼性として樹脂複合材料を  $280^\circ\text{C}$  のはんだ浴に曝した後に、 $85^\circ\text{C}/85\%$  の高温高湿環境下で電圧  $1\text{kV}$  を印加して絶縁寿命を測る高温高湿バイアス試験についても、 $1500$  時間以上絶縁破壊は起こらず、長期信頼性にも優れることが確認できた。

さらに、図 14 に示すように、この樹脂複合材料をはんだ浴に曝した後の絶縁破壊電界 (BDE) は、はんだ浴に曝していないプレス成形直後の BDE とほぼ同等の高い値を保持しており、はんだリフロー温度  $300^\circ\text{C}$  までの範囲においてはリフロー後の BDE はほぼ低下せず高い絶縁特性を確保できた。

このように、BN 粒子の配向を抑えるために凝集 BN 粒子を高充填し、マトリクス樹脂にはシアネートエステル樹脂と可とう性骨格型フェノキシ樹脂をポリマーアロイ化することで、高い熱伝導率を保持しながら耐熱性と絶縁性に優れた樹脂複合材料を得ることができた。

### 4. 結論

熱硬化性樹脂をベースに高熱伝導を有する BN フィラーを配合した有機/無機複合材料をパワーモジュールに用いる樹脂絶縁基板への適用を目指し、高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料の開発を行った。その結果、以下の知見が得られた。

表 2. 高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料の特性

Table 2 The various properties of the high heat resistance and high thermal conduction resin composite material.

熱伝導率	$\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	19.0
接着ピール強度	$\text{N}/\text{cm}$	8.0
絶縁破壊電界 BDE	$\text{kV}/\text{mm}$	58
高温高湿バイアス試験 ( $85^\circ\text{C}/85\%$ at $1\text{kV}$ )	hr	>1500

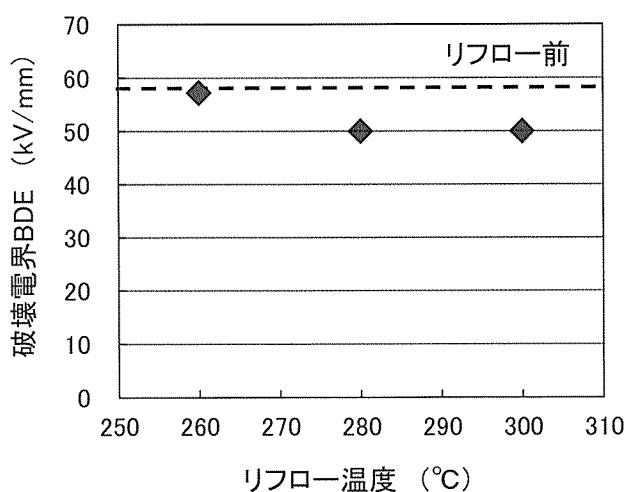


図 14. 高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料の絶縁破壊電界

Fig.14 Breakdown electric field of the high heat resistance and high thermal conduction resin composite materials.

- (1) 鱗片 BN を充填した樹脂複合材料では BN 粒子の面方向への配向が進み、充填量を増やしても熱伝導率は  $10\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  が限界であったが、BN 凝集体を配合して BN 粒子の配向を抑えることにより低充填量においても  $18\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  以上の高熱伝導率を得ることができた。
- (2) マトリクス樹脂として耐熱性の高いノボラック型シアネートエステル樹脂に柔軟性に富む可とう性骨格型フェノキシ樹脂をポリマーアロイ化することにより、高い耐熱性を保持しながら接着ピール強度を約 3 倍に向上することができた。これは、ノボラック型シアネートエステル樹脂に可とう性のフェノキシ樹脂の分子鎖が物理的に絡まった semi-IPN 構造を形成し、マトリクス樹脂の凝集力が向上したためと考えられる。
- (3) 上記 (1) (2) を組合せ、熱伝導率  $19\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  と高い熱伝導率を保持しながら耐熱性と絶縁性に優れた高耐熱・高熱伝導樹脂複合材料を開発することができた。開発した樹脂複合材料は、 $300^\circ\text{C}$  までの範囲において半田浴に曝したリフロー後の BDE の低下は抑えられ、優れた半田リフロー耐性を示すことが分かった。

## 参考文献

- 1) 西村隆, 三村研史, 平松星紀, 塩田裕基, 上田哲也, 三菱電機技報, 4, 219 (2010)
- 2) 西村隆, MATERIAL STAGE, 11, 4, 52 (2011)
- 3) T. Ueda, N. Yoshimatsu, N. Kimoto, D. Nakajima, M. Kikuchi, and T. Shinohara, Proceeding of 22nd ISPSD, 47 (2010)
- 4) E.K.Sichel, R.E.Miller, M.S.Abrahams, and C.J.Buiocchi, Phys. Rev. B, vol.13, pp.4607-4611, 1976
- 5) 三村研史, 正木元基, 中村由利絵, 西村隆, 電子情報通信学会論文誌, 2012/11 Vol.J95-C No.11

- 6) 三村研史, ネットワークポリマー, Vol.35, No.2, pp.76-82 (2014)
- 7) K. Mimura, Y. Nakamura, M. Masaki and T. Nishimura, Journal of Photopolymer Science and Technology, Vol.28 (2), pp.169-173 (2015)
- 8) T. Nishimura, K. Mimura, K. Yamamoto, S. Idaka and T. Shinohara, CIPS 2016, March,8-10, 2016, Nuremberg Germany
- 9) 中村由利絵, 三村研史, エレクトロニクス実装学会誌, 19 (6), pp.451-457 (2016)
- 10) K. Mimura, H. Ito, H. Fujioka, Polymer, 41, 4451 (2000)

(2020年5月20日 受理)

## 著者略歴



三村 研史

1993 関西大学大学院工学研究科修士課程了。同年4月三菱電機(株)入社。先端技術総合研究所において、主として絶縁材料の開発に従事。博士(工学)。高分子学会会員。



中村 由利絵

2005 神戸大学大学院自然科学研究科修士課程修了。2010年三菱電機(株)入社。先端技術総合研究所において、主として絶縁材料の開発に従事。



正木 元基

2002 東京大学大学院工学系研究科修士課程修了。同年4月 TDK (株)入社。2007年4月三菱電機(株)入社。先端技術総合研究所において、主として機能性セラミック材料の開発に従事。日本セラミックス協会会員



西村 隆

1984 名古屋工業大学工学部卒業、同年4月三菱電機(株)入社。先端技術総合研究所において、主として電池材料、絶縁材料の開発に従事。日本セラミック協会会員