

# 15 BNフィラーの放熱性樹脂用材料としての特性と BN配合放熱性エポキシ樹脂の作成方法

花ヶ崎 裕洋, 大橋 俊彦, 越田 孝久\*, 末永 博義\*\*

The properties of BN filler as materials of heat releasing resin and method of making heat releasing epoxy resin mixed with BN filler

HANAGASAKI Hiromi, OHASHI Toshihiko, KOSHIDA Takahisa\* and SUENAGA Hiroyoshi\*\*

To research on the properties of the trial BN powder as high heat releasing resin filler, it has been evaluated that thermal conductivity of the epoxy resin and silicon resin with BN filler and peel strength of the epoxy resin with BN filler from copperplate. And it was understood that it was important to make the uniform resin mixed with BN filler by operating the forming condition and to improve on the BN filler to rise the peel strength from copperplate.

In this research, it was performed that improvement on BN filler and investigation of making the uniform epoxy resin with BN filler by operating the forming condition. And the result is reported in this paper as the result was gained that it was raised that the peel strength of the resin mixed with the new trial BN filler.

キーワード：BNフィラー, エポキシ樹脂, 放熱性, 熱伝導率

## 1 緒 言

BNフィラーの放熱性樹脂用材料としての特性について調査するため、表面処理したBNフィラーをエポキシ樹脂およびシリコン樹脂と複合化したBN配合樹脂の熱伝導率、そしてBNフィラーを配合したエポキシ樹脂の銅箔との最大はく離強さを求める研究を行ってきた。前回の報告後<sup>1)</sup>、BN配合樹脂の密度が求められ、BNフィラーを配合した樹脂は密度が大きいほど、熱伝導率が大きくなる傾向にあることがわかったが、その値はばらつきが大きいという結果も得られた。

樹脂を成形する際の様々な要因により、試料に差が生じるため、相対的に正確な密度や熱伝導率の値を得ることが困難であると考えられる。また、成形したBN配合エポキシ樹脂の熱伝導率や接着力の向上が求められるが、その目標を達成するため、BN粉末の改良や樹脂の成形条件の最適化を行うことが必要である。

今回の研究では、密度、熱伝導率のばらつきが小さい試料の作成および熱伝導率が高く、接着力の強いBN配合樹脂を作成するため、BN粉末の改良やBN配合エポキシ樹脂を作成する条件について検討を行った。その結果を以下に報告する。

## 2 試料と実験方法

### 2.1 試料

#### 2.1.1 BN粉末

JFEテクノリサーチ株式会社にて試作し、前回の調査で使用した5種類のBN粉末とはく離強度の向上を目的に新たに試作された6種類のBN粉末を実験に用いた。

表1に前回使用したBN粉末の名称とTypeを、表2に新しく試作されたBN粉末の名称とTypeを示す。

表1 BN粉末の名称とType

BN粉末	Type
HP-1	分散型
HP-40	凝集型
HP-40処理品	凝集型・シリコン処理
HP-50	凝集型・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系
HP-60	凝集型・AlN系

表2 新たに試作されたBN粉末の名称とType

BN粉末	Type
HP-40-2	凝集型
HP-50-2	凝集型・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系
HP-50-5	凝集型・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系
HP-50-5-50	凝集型・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系
HP-60-2	凝集型・AlN系
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	凝集型

#### 2.1.2 樹脂

BN粉末の配合量を多くするため、粘度の低いビスフェノールF型のエポキシ樹脂を使用した。

表3にエポキシ樹脂および硬化剤の型番とメーカー名を示す。

\*水島合金鉄(株) \*\* (株)JFEテクノリサーチ

表3 エポキシ樹脂および硬化剤

	型番	メーカー
エポキシ樹脂	エポコート807	ジャパンエポキシレジン(株)
硬化剤	エピキュア-113	ジャパンエポキシレジン(株)

### 2.1.3 溶剤

メチルセロソルブを溶剤として用いた。溶剤は樹脂との親和性が良いこと、また成形時に残存して樹脂の熱硬化を妨害し、物性に悪影響を及ぼすことのない適切な沸点を有することの二つを基準に選定した。

## 2.2 実験方法

### 2.2.1 熱プレス成形による試料の作成

メチルセロソルブ40gに、エポキシ樹脂20g(所定量の硬化剤を含む)と、溶剤を除いた全重量に対して65%の重量濃度でBNフィラーを加え、回転型ボールミルで60分混練した。

BN粉末配合エポキシ樹脂を、膜厚が200 $\mu$ mとなるハンドコーターを使用して、ポリイミドフィルム上に塗布した。乾燥後、樹脂面を合わせて2枚重ね、熱プレス成形した。乾燥条件および成形条件を表4に示す。

成形したフィルム状樹脂から1cmの円盤状試験片を切り出し、密度および熱伝導率測定用試料とした。熱伝導率はレーザーフラッシュ法装置を使用し、測定した。

BN粉末を配合した樹脂の接着力を調べるため、ポリイミドフィルムの代わりに銅箔を用いて同様の成形作業を行い、銅箔とエポキシ樹脂のはく離強さ測定用試料とした。

### 2.2.4 BN配合エポキシ樹脂と銅箔のはく離強さ

熱プレス成形により作成したはく離強さ測定用試料を、縦1.5cm、横1cmに銅箔ごと切断し、はく離強さ測定用試験片を作成した。片方の銅箔を折り返し、180度はく離試験を行い、最大はく離強さを求めた。はく離試験の測定は各3回行い、各測定の最大値を求め、その平均を最大剥離強さの値とした。

### 2.2.5 最適な配合用BN粉末の選定

他のBN粉末に比べ、エポキシ樹脂に配合した際、最大はく離強度や熱伝導率の値が大きかったHP-40-

2とHP-50-5-50のBN粉末について、乾燥条件および成形条件を変え、同様にして熱プレス成形を行った。得られた試料を用いて、同様にして最大はく離強度、密度、熱伝導率の値を求めた。熱プレス成形を行う際の圧力は80kgf/cm<sup>2</sup>で一定とした。

## 3 実験結果と考察

### 3.1 BN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率

前回の調査で作製したBN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率の関係を図1に示す。

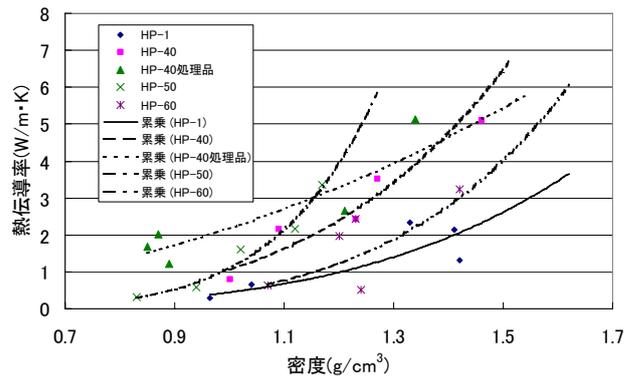


図1 BN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率の関係

全体的な傾向としては、密度が大きくなるほど熱伝導率の値も大きくなる傾向にあるが、密度、熱伝導率ともにばらつきの大きな値となった。

配合量が少なかった分散型であるHP-1のBN粉末を用いた樹脂の熱伝導率の値が小さく、配合量が多かった凝集型である他のBN粉末を用いた樹脂の熱伝導率の値が大きかった。

### 3.2 BN配合エポキシ樹脂の最大はく離強度

新しく試作したBN粉末を配合したエポキシ樹脂の最大はく離強度の値を図2に示す。BN粉末 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は密度が大きく、65wt%の濃度で配合した樹脂は液状で粘度が低かったため、塗布した際、厚みがなく成形することが出来なかった。

表4 試料作成の乾燥条件および成形条件

乾燥条件		成形条件		
温度 (°C)	時間 (分)	温度 (°C)	時間 (分)	圧力 (kgf/cm <sup>2</sup> )
130	10	170	30	80
130	8	170	30	80
130	6	170	30	80
100	10	170	30	80

表5 BN配合エポキシ樹脂の乾燥条件と成形体密度 (g/cm<sup>3</sup>)

乾燥条件	HP-40-2	HP-50-2	HP-50-5	HP-50-5-50	HP-60-2
130℃ 10分	1.35	1.21	1.10	0.96	1.34
130℃ 8分	1.29	1.07	1.33	1.50	1.09
130℃ 6分	1.39	1.43	1.21	1.60	1.40
100℃ 10分	1.62	1.60	1.75	1.60	1.35

表6 BN配合エポキシ樹脂の乾燥条件と熱伝導率 (W/(m・K))

乾燥条件	HP-40-2	HP-50-2	HP-50-5	HP-50-5-50	HP-60-2
130℃ 10分	1.91	2.96	*	4.28	1.51
130℃ 8分	3.32	3.10	*	2.16	*
130℃ 6分	3.92	0.93	2.84	3.81	2.97
100℃ 10分	6.19	3.89	3.87	4.20	*

\* 作製した試料の表面状態が悪いため測定不可能

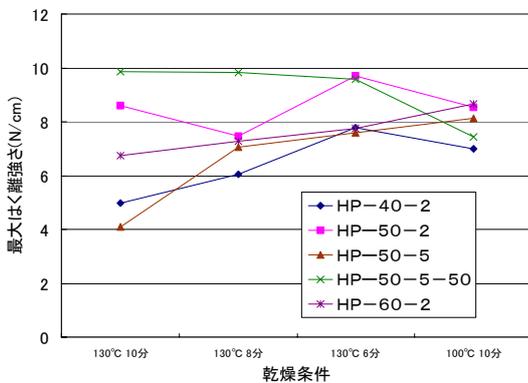


図2 BN配合エポキシ樹脂と銅箔との最大はく離強度

はく離強さの向上が目的で新しく試作されたBN粉末を配合したエポキシ樹脂は、前回の研究で使用したBN粉末を配合したエポキシ樹脂に比べ、銅箔との最大はく離強さの値が大きかった。

BN粉末の種類で比べてみると、HP-50-2とHP-50-5-50のBN粉末を配合したエポキシ樹脂の最大はく離強さの値が、他のBN粉末を配合したエポキシ樹脂の値よりも大きかった。

乾燥条件で比べてみると、乾燥温度が130℃で同じ場合、乾燥時間が短くなるほどBNフィラーの違いによる最大はく離強さの値の差は小さくなった。また100℃、10分で乾燥させたBN配合エポキシ樹脂の最大はく離強さの値は、他の乾燥条件で作製した樹脂よりも、BN粉末の種類による最大はく離強さの値の差が小さかった。

### 3.3 BN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率

新しく試作したBN粉末を配合したエポキシ樹脂の乾燥条件と成形体密度を表5に、乾燥条件と熱伝導率の値を表6に示す。

各BN粉末、または各乾燥条件で分類すると、成形体密度が大きくなるほど熱伝導率の値が大きくなるという

傾向は見られなかった。これは、データ点が少ないために、作製した試料の個体差の影響が強くと出たことによると考えられる。

図3に各BN粉末、または各乾燥条件で平均したBN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率の関係を示す。

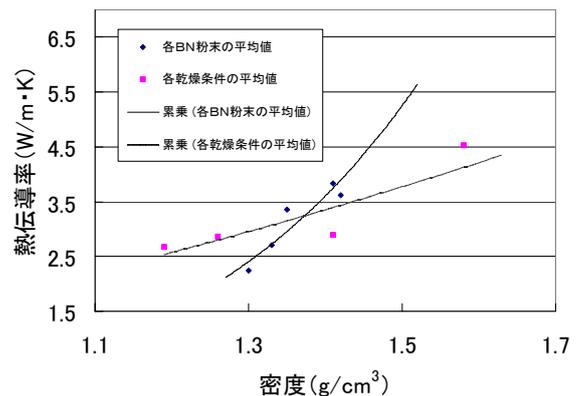


図3 BN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率の平均値

各BN粉末、または各乾燥条件ごとに平均した密度と熱伝導率の値は、密度が大きくなるほど熱伝導率の値が大きくなる傾向が見られた。

BN粉末の種類で比べてみると、成形体密度は、BN粉末HP-50-5-50を配合した樹脂の値が最も大きく、BN粉末HP-40-2を配合した樹脂の値が最も均一であった。また熱伝導率は、BN粉末HP-40-2を配合した樹脂の値が最も大きく、BN粉末HP-50-5-50を配合した樹脂の値が最も均一であった。

乾燥条件の中では、100℃、10分で乾燥を行った複合化樹脂の密度と熱伝導率が、共に最も大きな値となった。次いで、130℃、6分で乾燥を行った複合化樹脂が、他の乾燥条件で成形した樹脂よりも、密度、熱伝導率、共に大きくなった。

表7 BN配合エポキシ樹脂の乾燥・成形条件と得られた結果

	乾燥条件	成形条件	最大はく離強度(N/cm)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	熱伝導率(W/(m・K))
HP-40-2	100℃ 8分	170℃ 30分	5.6	1.38	3.25
	100℃ 10分	170℃ 60分	5.6	1.39	4.24
	130℃ 6分	170℃ 60分	5.6	1.47	4.93
	130℃ 6分	200℃ 30分	7.7	1.30	4.06
	130℃ 6分	200℃ 60分	6.5	1.23	1.63
HP-50-5-50	100℃ 8分	170℃ 30分	7.8	1.58	3.07
	100℃ 10分	170℃ 60分	8.5	1.65	3.10
	130℃ 6分	170℃ 60分	7.8	1.30	3.46
	130℃ 6分	200℃ 30分	8.0	1.62	3.37
	130℃ 6分	200℃ 60分	7.8	1.59	3.28

### 3.4 最適な配合用BN粉末の選定

BN粉末HP-40-2とHP-50-5-50を配合したエポキシ樹脂の乾燥条件と成形条件、そして得られた最大はく離強度、密度、熱伝導率の値を表7に示す。

BN粉末HP-40-2を配合したエポキシ樹脂より、HP-50-5-50を配合した樹脂の方が最大はく離強度の値は常に大きかった。熱伝導率の値は、HP-50-5-50よりもHP-40-2を加えた樹脂の方が平均すると大きかった。

## 4 結 言

密度、熱伝導率のばらつきが小さい均一なBN配合エポキシ樹脂の試料作成および熱伝導率が高く、接着力の強いBN配合樹脂を作成するため、BN粉末の改良やBN配合エポキシ樹脂の作成方法について調査研究を行った。得られた結果は以下の通りである。

- (1) BN粉末を分散させ硬化したエポキシ樹脂は、密度が大きいほど熱伝導率の値が大きくなる傾向にあるが、その値はばらつきが大きかった。また、同程度の密度において、分散型のBN粉末よりも凝集型であるBN粉末を用いた樹脂の方が熱伝導率の値が大きくなった。
- (2) 新しく試作されたBN粉末の中では、HP-50-2とHP-50-5-50のBN粉末を配合したエポキシ樹脂の最大はく離強度の値が、他のBN粉末を配合したエポキシ樹脂の値よりも大きかった。
- (3) 乾燥条件では、乾燥温度が130℃で同じ場合、乾燥時間が短くなるほどBN粉末の違いによる複合化樹脂の最大はく離強度の値の差は小さくなった。また100℃、10分で乾燥させたBN配合エポキシ樹脂の最大はく離強度の値は、他の乾燥条件で作製した樹脂よりも、BN粉末の種類による最大は

く離強度の値の差が小さかった。

- (4) 各BN粉末、または各乾燥条件で分類すると、成形体密度が大きくなるほど熱伝導率の値が大きくなるという傾向は見られなかった。各BN粉末、あるいは各乾燥条件ごとに平均したBN配合エポキシ樹脂の密度と熱伝導率の関係は、密度が大きくなるほど熱伝導率の値が大きくなる傾向にあった。
- (5) BN配合エポキシ樹脂の成形体密度はBN粉末HP-50-5-50を配合した樹脂の値が最も大きく、熱伝導率の平均値はBN粉末HP-40-2を配合した樹脂の値が最も大きかった。また乾燥条件の中では、100℃、10分で乾燥を行った複合化樹脂が、他の乾燥条件で作製した樹脂よりも、密度、熱伝導率、共に最も大きな値となった。
- (6) BN粉末HP-40-2を配合したエポキシ樹脂より、HP-50-5-50を配合した樹脂の方が最大はく離強度の値は大きかった。またHP-50-5-50よりもHP-40-2を加えた樹脂の方が、熱伝導率の平均値は大きかった。

## 文 献

- 1) 花ヶ崎, 大橋, 末永: 広島県立西部工業技術センター研究報告, 49(2006), 70
- 2) 大勝靖一: 高分子添加剤の開発技術, シーエムシー, 1998
- 3) 相馬, 永田, 野村: 初歩から学ぶフィラー活用技術 二十一世紀の素材を創る, 工業調査会, 2003
- 4) 大蔵, 福田, 香川: 材料テクノロジー17 複合材料, 東京大学出版会, 1984
- 5) MULIAWAN Edward B : Polymer Engineering & Science, 45(2005), 669-677