

# 放熱材料向け SiC フィラーの開発

古川博樹\*

## Development of SiC filler for heat dissipation materials

Hiroki Furukawa

### 1 はじめに

近年、地球温暖化の原因として二酸化炭素排出量の問題があり、欧米諸国を中心に「カーボンニュートラル」への動きが高まり、二酸化炭素排出量削減に向けての取り組みが活発化している。

具体的な取り組み内容としては、自動車の電動化（EV や HEV の開発）、パワーデバイス・パワーモジュールによる電力制御、5G 等の次世代ネットワーク開発による通信の高速化や省電力が挙げられる。

これらの産業ではパワーエレクトロニクス製品が多用されているが、より高性能化、コンパクト化が進んでおり、製品内部からの発熱量が増大の一途をたどっている。

このため、熱を効率よく機器の外部へ放出することが機器の性能維持や寿命を決定するために不可欠な課題となっており、放熱技術が極めて重要なファクターとなっている。

その放熱技術であるが、窒化アルミニウム（AlN）等の熱伝導率の高い無機材料を焼結したセラミック基板からエポキシ樹脂等の熱硬化樹脂に熱伝導率の高い無機材料フィラーを混ぜた有機・無機複合材料に主流が変わって来ており、放熱材料向けフィラーの開発が材料メーカー各社で盛んとなっている。

当社が取り扱っている炭化ケイ素（以下 SiC）は表 1 に示す様に、熱伝導率が高い一方で熱膨張率が低いと言う優れた熱特性を有しており放熱材料に適した材料である。

また、当社は大正 10 年（1921 年）の創業より長年に亘って SiC 微粉を製造販売しており、その中で粉体の粉碎や分級技術を磨いて来た。

当社は SiC の優れた熱特性と今まで培った微粉製造技術を活かして放熱フィラーを開発し、市場ニーズに対応している。

表 1 各種材料の熱伝導率・熱膨張率

材料名	化学式	熱伝導率 (W/m/K)	熱膨張率 [10 <sup>-6</sup> /°C]
			293K (20°C)
ダイヤモンド	C	2000	1.0
銅	Cu	375	16.5
<b>炭化ケイ素</b>	<b>SiC</b>	<b>270</b>	<b>4.5</b>
窒化アルミニウム	AlN	270	5
アルミニウム	Al	228	23.1
窒化ケイ素	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	155	2~3
六方晶窒化ホウ素	h-BN	150	1.5~3
アルミナ	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	36	6~9
結晶性シリカ	SiO <sub>2</sub>	12	5
熔融性シリカ	SiO <sub>2</sub>	1	0.5~1.4

\* 熱伝導率・熱膨張率は文献調査による<sup>1~4)</sup>

\* 信濃電気製錬(株) 開発部 開発グループ

## 2 開発課題

当社はアチソン法で生成した SiC インゴットを微粉砕し、分級にて粒度調整した SiC 微粉を製造販売しており、JIS R 6002 に定められている番手 #240~#4000 を製品としてラインナップしている。

用途は半導体シリコンや石英のワイヤーソー切断用がメインであるが、近年は放熱材料向けフィラーとして注目されており、各社より樹脂へ混ぜ合わせてみたいと言う問合せが数多く寄せられている。

そこで、独自の機能性を有する SiC 微粉を如何に高充填出来るか検討を進めている。

## 3 高充填化

### 3.1 粒度調整

樹脂への高充填化を狙い最初に取り組んだのは粒度調整である。

これは、大小複数の粒度品を調合することで、樹脂と混ぜ合わせた際に最密充填となり、多数の熱伝達経路が構成されることで熱伝導率を高めようとする試みである。

粒度調整品「X-12」は数種類の破砕 SiC 微粉を調合した開発品であり、幅広いブロードな粒度分布（図 1.）を成している。

この X-12 を樹脂に混ぜ合わせることで、熱伝導率が向上することが確認出来ており、更に検討を進めている。

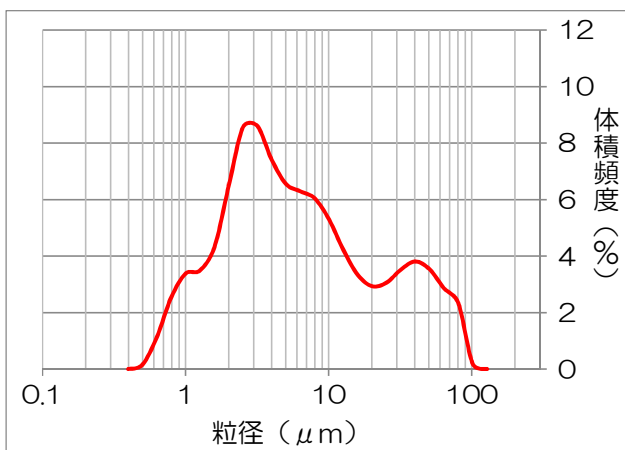


図 1 X-12 粒度分布

### 3.2 球状化

フィラーとなる粒子の形状を球状化することで樹脂との混練性が優れ、樹脂と混ぜ合わせた複合材料の流動性が向上するという特徴がある。

また、どの方向から圧力が掛かっても安定した充填性が得られ、放熱材料の物性が安定する為、放熱フィラーとして使用されるフィラーの形状は球状が最も多い。

当社は約 1~100 μm の球状 SiC フィラー「SSC-A シリーズ」を開発した。

現在、球状 SiC 製品としてラインナップしている SSC-A30 と SSC-A15 の SEM 写真（図 2,3）と粒度分布グラフ（図 4）を示す。

SSC-A30 は平均径 25~33 μm、SSC-A15 は平均径 15~21 μm で両者ともシャープな粒度分布を成している。

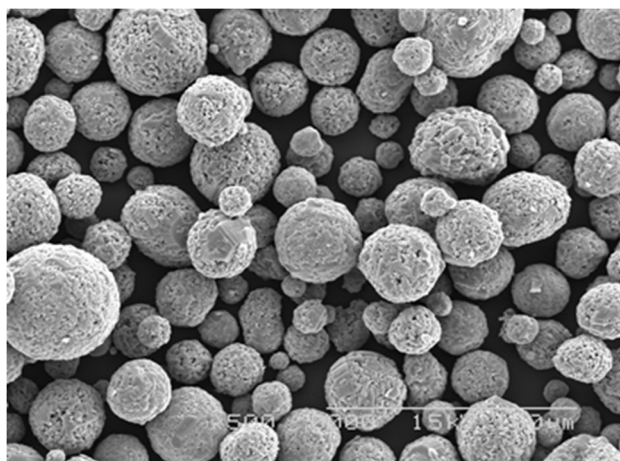


図 2 SSC-A30 SEM 写真（倍率 500 倍）

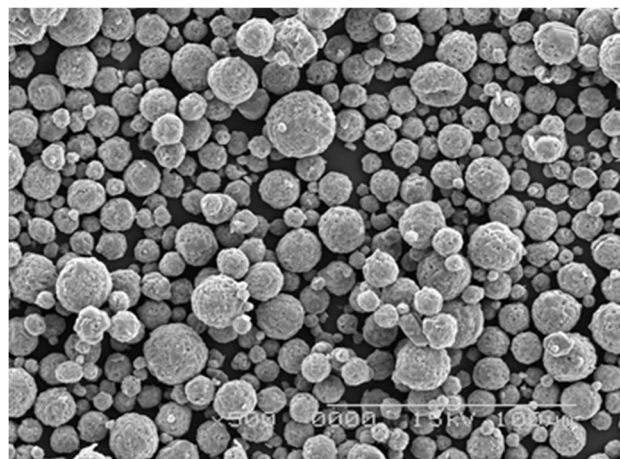


図 3 SSC-A15 SEM 写真（倍率 500 倍）

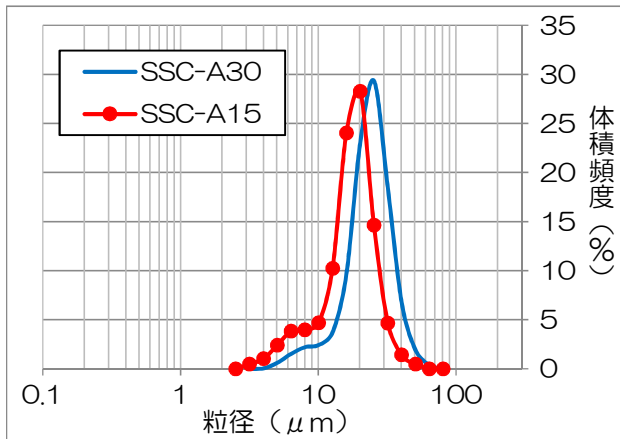


図4 SSC-A30/A15 粒度分布

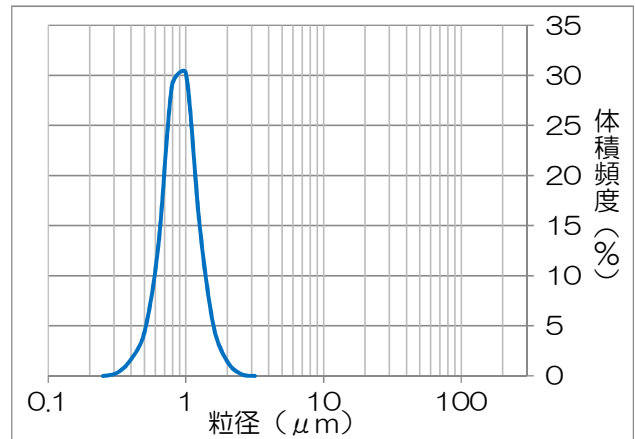


図6 SSC-A01 粒度分布

### 3.3 小粒径化

前節で紹介した球状 SiC フィラーを小粒径化したサブミクロンサイズの球状 SiC フィラーを開発している。

平均径 0.9~1.5 μm の球状 SiC フィラー「SSC-A01」の SEM 写真 (図 5) と粒度分布 (図 6) を示す。

SSC-A01 も前節の SSC-A30/A15 と同様、シャープな粒度分布を成している。

SiC は高硬度な為、混練機等の摩耗が懸念されるが、小粒径化することで摩耗を抑制することが可能となる為、コンタミネーションを重要視している用途への使用が期待される。

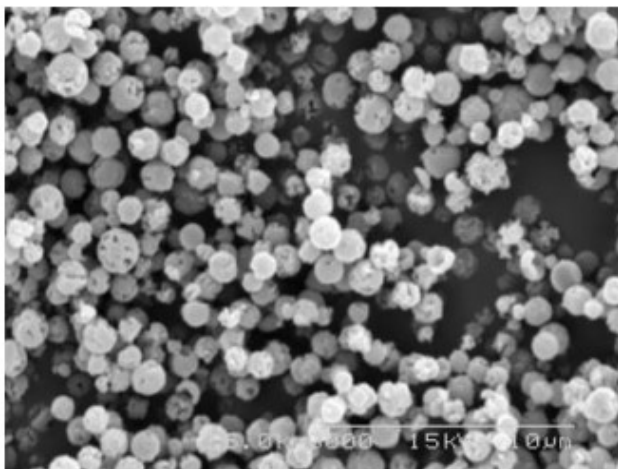


図5 SSC-A01 SEM 写真 (倍率 5000 倍)

### 3.4 窒化ホウ素被覆熱伝導性粒子

(長野県工業技術総合センター共同研究)

SiC と他の無機材料を複合化することで多機能なフィラーを実現させる為、現在長野県工業技術総合センターと共同で「窒化ホウ素被覆 SiC フィラー」を開発している。

SiC は高熱伝導だが、半導性の為、高い絶縁性が求められる電子材料分野には不向きとされている。

一方、窒化ホウ素 (以下 BN) は異方性があるものの、高熱伝導であり、且つ絶縁性に優れた材料である。

これらを複合化することで、高熱伝導性と高絶縁性を併せ持つ機能性フィラーの製品化を目指している。具体的には SiC 粒子の表面を BN 粒子で被覆した複合フィラーである。

用いる SiC と BN の種類は、SiC に関してはこれまでの放熱フィラーの開発経緯から球状 SiC フィラーを、BN に関しては六方晶窒化ホウ素を選択した。

図 7,8 は開発した複合フィラーとその表面の SEM 写真である。SiC 粒子が BN 粒子で均一に被覆されていることが分かる。

図 9 は実際に BN 被覆 SiC フィラーを 60vol% 充填したエポキシ樹脂複合材料の熱伝導率測定の結果である。比較として、BN を被覆していない通常の球状 SiC フィラーと、BN を被覆せずに球状 SiC フィラーと一緒に混ぜ合わせた場合の熱伝導率も評価した。

結果は、BN を被覆していない通常の球状 SiC フィラーが 4.5W/m/K に対し、BN 被覆 SiC フィラーは 5.6W/m/K となり、1.1W/m/K の向上が見られた。(BN を被覆せずに球状 SiC フィラーと一緒に混ぜ合わせた場合は熱伝導率の数値変化は見られなかった。)

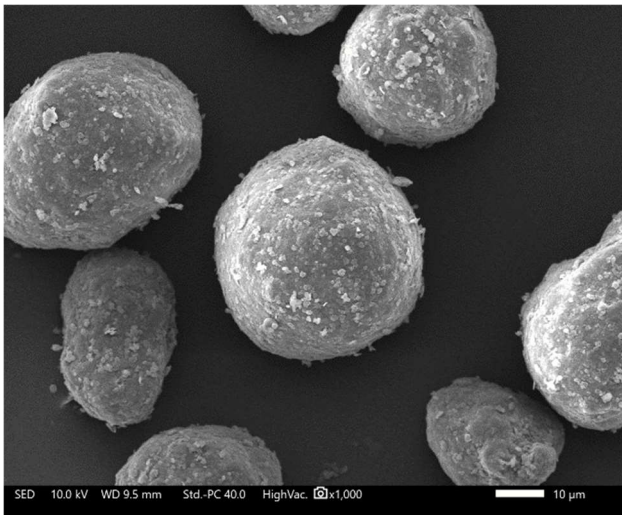


図7 BN 被覆 SiC フィラー SEM 写真 (倍率 1000 倍)

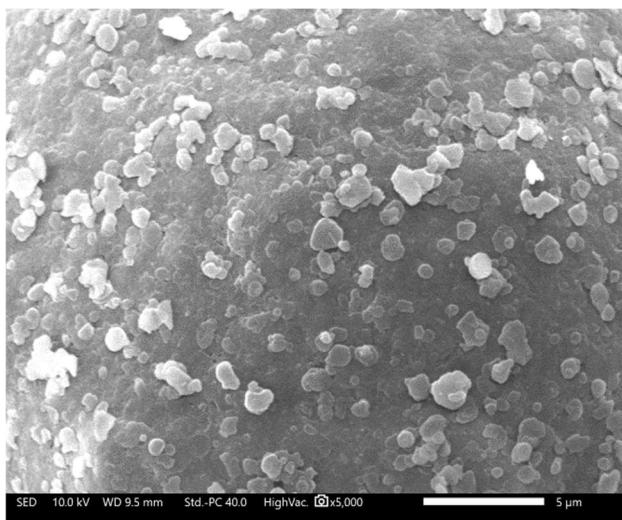


図8 BN 被覆 SiC フィラー表面 SEM 写真 (倍率 5000 倍)

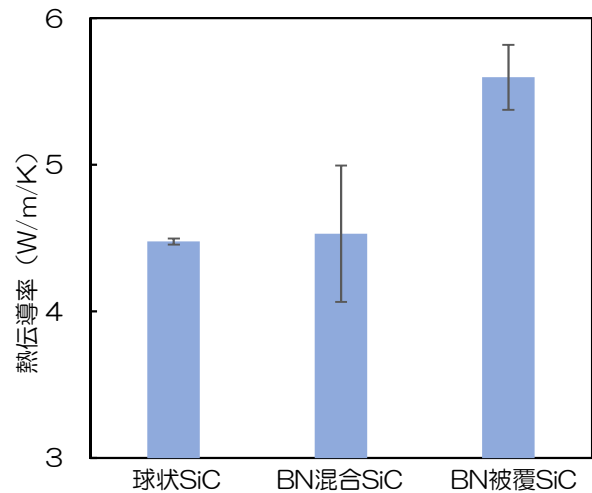


図9 球状 SiC、BN 混合 SiC、BN 被覆 SiC を充填した樹脂複合材料の熱伝導率

図 10 は BN 被覆 SiC を充填した樹脂複合材料の充填構造イメージである。

球状 SiC フィラー表面を鱗片状の粒子形状である六方晶窒化ホウ素で被覆したフィラーを樹脂に混ぜ合わせることで、BN が熱伝導率の高い a 軸方向同士で連続的に接触すること、フィラー同士の接触点が増えること等が要因と考えられる。

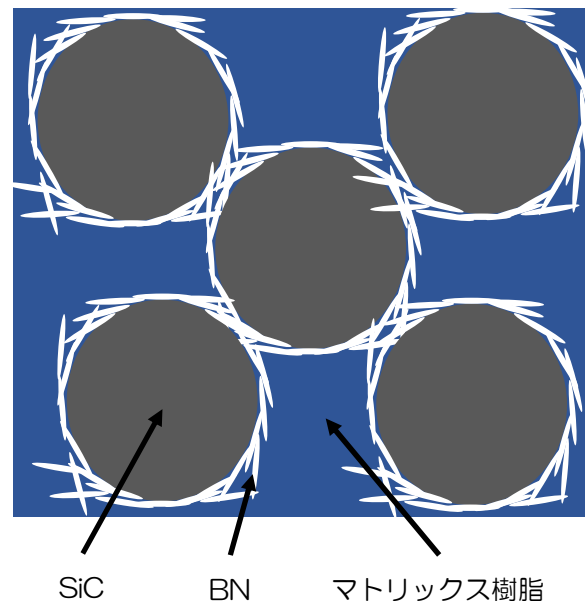


図 10 BN 被覆 SiC を充填した樹脂複合材料の充填構造イメージ

また、熱伝導率測定と同様の充填量でエポキシ樹脂複合材料を作製し、体積抵抗率評価を行った（図 11）。

結果は、BN を被覆していない通常の球状 SiC フィラーが  $1.0 \times 10^{10}$  レベルに対し、BN 被覆 SiC フィラーは  $1.0 \times 10^{15}$  レベルとなり、 $1.0 \times 10^5$  の向上が見られた。（BN を被覆せずに球状 SiC フィラーと一緒に混ぜ合わせた場合は  $1.0 \times 10^{12}$  レベルで BN 被覆 SiC フィラー並みの体積抵抗率にはならなかった。）

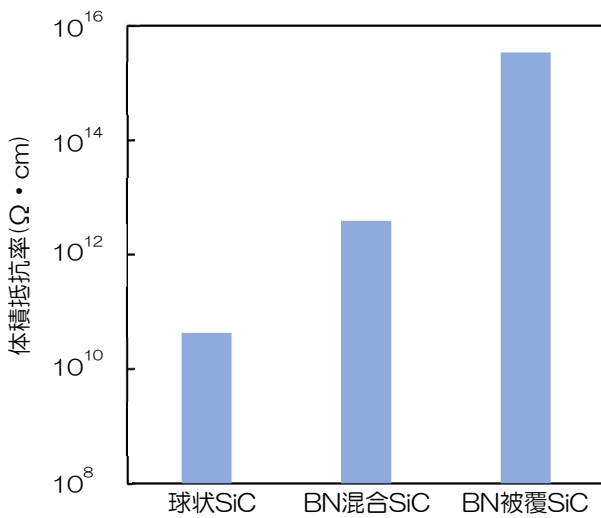


図 11 球状 SiC、BN 混合 SiC、BN 被覆 SiC を充填した樹脂複合材料の体積抵抗率

これらの評価結果より、高熱伝導性と高絶縁性を併せ持つ機能性フィラーとして十分活用できることが確認出来た。

（長野県工業技術総合センターとの共同研究）

#### 4 おわりに

SiC の優れた熱特性を活かした放熱フィラーを開発するにあたり、SiC フィラーを樹脂へ高充填させるという課題が浮上し、様々な改良処方を用いて検討を行って来た。

当初、通常製品である破碎 SiC 微粉を用いて粒度調整による高充填化を図り、更に物理的に安定な形状である球状へ挑戦し、球状 SiC を開発した。

この球状 SiC を開発することにより、従来とは異なる用途への展開が見えて来ており、小粒径化や BN 被覆フィラーの開発に着手することでラインナップの拡充に取り組んでいる。

今後も球状 SiC をベースに機能性フィラーの開発を進めて行く。

#### 文献

- 1) 福島邦彦, 熱伝導率・熱拡散率の制御と測定評価方法, pp76, サイエンス&テクノロジー (2009)
- 2) 日本学術振興会 高温セラミック材料 第 124 委員会編, SiC 系セラミック新材料—最近の展開—, pp344, 内田老鶴圃 (2001)
- 3) 柳田博明・菱田俊一, セラミックス基板材料データ集, サイエンスフォーラム (1985)
- 4) 国立天文台編, 理科年表 2022, pp425, 丸善出版 (2021)