【論文】

フィラー添加高分子材料における 短時間絶縁破壊の破壊電圧予測

Prediction of Instantaneous Dielectric Breakdown Voltage of Filler Dispersed Polymer Composites

曽我宏輔* 齊藤卓志* 石川和紀** 川口達也* 佐藤勲*

Kosuke Soga*, Takushi Saito*, Kazunori Ishikawa**, Tatsuya Kawaguchi* and Isao Satoh*

セラミックスフィラー添加高分子複合材料はその熱伝導率の高さと電気絶縁性からパワーデバイス周りで使用されている。しかし、熱伝導率を上げるためにフィラー含有率を増加させると絶縁破壊電圧が低下する傾向がある。よって、この材料の絶縁破壊特性を把握することは、より性能の高い材料設計に必須である。そこで本研究では、セラミックスフィラー添加高分子複合材料の絶縁破壊特性を数値シミュレーションにより求め、実験により得られた窒化ホウ素およびボイドを含むフィルム状の複合材料の絶縁破壊電圧との比較を行った。数値シミュレーションでは実際の材料の断面を SEM により観察した二次元画像を用い、実験と同様に試料の厚さ方向にわたる絶縁破壊現象をモデル化することで、材料中に含まれるボイドが絶縁破壊の起点となる様子が示された。得られた結果より、本研究で想定した材料では、試料厚さ方向のボイド率が絶縁破壊電圧に最も大きな影響を与える要素であると示唆された。

Composite polymer material containing ceramic filler is often used for an electric power device because it has high thermal conductivity and good electric insulation simultaneously. However, the dielectric breakdown voltage of the composite material tends to be lowered by increasing the volume ratio of the ceramic fillers so as to improve the thermal conductivity. Therefore, understanding of the phenomena of dielectric breakdown in the composite material is important to obtain the knowledge for better material design. In this study, the dielectric breakdown voltage of the filler containing composite polymer material was numerically simulated and the obtained results were compared with the data of the sample containing Boron-Nitride and voids (inevitability included during the sample preparation). Microstructure of the composite material was analyzed by SEM and the obtained two dimensional images were used for the numerical simulation of the dielectric breakdown. The dielectric breakdown phenomena of the composite polymer film were successfully performed, and the propagation phenomena of the breakdown in the film thickness direction was simulated. The results showed that the voids in the composite was the initiation point of the breakdown. From the obtained results, it was indicated that the most influential factor of the dielectric breakdown in the used system was the void ratio in the thickness direction.

[Keywords: Composite material, Dielectric breakdown, Numerical simulation]

1. 緒言

セラミックスフィラーを含んだ樹脂材料は樹脂単体と比較して熱伝導率が高く、電気絶縁性が高い熱伝導率の両立が求められるパワーデバイス周りへの利用が期待されている。しかしフィラーとして用いられる窒化ホウ素やアルミナなどの熱伝導率は樹脂材料に比べ非常に高いものの、その絶縁破壊電圧はポリイミドやポリアミドといったエンジニアリングプラスチックに比べると低い。このため、熱伝導率向上を狙ってフィラー含有量を増加

* 東京工業大学 工学院機械系,
〒152-8552 東京都目黒区大岡山 2-12-1.
School of Engineering Department of Mechanical Engineering,
Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ookayama, Meguro-ku,
Tokyo. 152-8552
FAX: +81-3-5734-3917 E-mail: tsaito@mep.titech.ac.jp

** 日本化薬株式会社,
〒100-0005 東京都千代田区丸の内 2-1-1
Nippon Kayaku Co., Ltd., 2-1-1, Marunouchi, Chiyoda-ku,
Tokyo. 100-0005.
FAX: 03-3237-5431
E-mail: kazunori.ishikawa@nipponkayaku.co.jp

させると耐電圧の低下が生じる懸念がある[1, 2]. つまり、耐電圧の低下を抑制しつつ熱伝導率の向上を図るためには、適切な物性予測が重要となる。

フィラー添加高分子材料の絶縁破壊電圧や熱伝導率は、フィラーや樹脂単体での物性、フィラー含有率のみにより決まるものではなく、フィラーの形状や配置にも大きく影響される。熱伝導率については物性の予測式として Bruggeman モデル[3]や Hatta-Taya モデル[4, 5]が利用できる。しかし、これらの手法ではフィラーの空間干渉を考慮しておらず、特に高充填の場合に実際の熱伝導率に比べ低く見積もられる傾向にある。そこで、数値シミュレーションにより熱伝導率を求める試みがなされておりフィラー配置の影響も考慮した熱伝導率が予測可能となりつつある[6, 7]. 一方、絶縁破壊のシミュレーションについては、長時間高電圧下にさらされた高分子材料に発生するトリリー形状の局所絶縁破壊の進展を対象とした報告[8]は存在するが、フィラー添加高分子材料において生じる瞬時的な絶縁破壊の予測を行っている研究は著者の知る限り存在しない。絶縁破壊は材料中の一点で起こる現象であるため、耐電圧は局所的な材料分布に大きく影響される。樹脂中に分散されているフィラーの力学的特性は樹脂のそれと大きく異なり、また光を通さないため、超音波や光を用いた検査手法では、非破壊で材料分布を得ることは難しい。フィラー含有率と絶縁破壊電圧の関係を実験的に求める[2, 9]ことは可能であるが、絶縁破壊箇所では通電によるジュール発熱により、樹脂が炭化・蒸発するため絶縁破壊箇所の特徴を後から解析することは困難である。

そこで、本研究では数値シミュレーションにより直流電圧下におけるフィラー添加高分子材料の絶縁破壊における破壊電圧の予測を行うとともに、フィラー添加による破壊電圧低下のメカニズムについて考察した。実験によりフィラー添加高分子材料の絶縁破壊電圧を取得した後、その試料の断面画像よりフィラー配置のモデル化を行った。得られたモデルに対し数値シミュレーションに

より絶縁破壊電圧を予測し、実験結果との比較を行った。なお本研究では、絶縁破壊強度超過箇所ではその材料の破壊強度を維持すると仮定した。また、解析手法の妥当性を検証するために予めき裂を与えた高分子フィルムの絶縁破壊電圧と、き裂深さの関係の比較を行ったので併せて報告する。

2. 計算モデル

長時間かけて起こるトリリーの成長のような絶縁破壊シミュレーションでは破壊強度超過箇所の誘電率を高く設定し（例えば 1000 倍など）、その箇所における電界強度を低下させる手法がとられている [8-11]. しかし、短時間のうちに生じる絶縁破壊現象にこのモデルを導入すると、破壊電圧が低く見積もられる懸念がある。これは誘電率差により破壊強度超過箇所周辺で非常に高い電界が生じ、絶縁破壊強度超過箇所が雪崩的に拡大するためである。そこで、本研究では絶縁破壊強度超過箇所では、その材料の絶縁破壊強度 E_{bd} が維持されると仮定した。例えば導電性クラックの先端における電界強度分布並びに誘電率分布をそれぞれ図 1 に示す。図中縦軸はそれぞれ電界強度及び誘電率を表しており、材料の絶縁破壊強度を考えない場合、誘電率のミスマッチにより図中点線のようにき裂先端において電界強度は無限に高くなる。一方、提案手法では黒線のように電界強度を維持させるため、誘電率は高くなるように設定している。

この局所絶縁破壊強度超過箇所が電極間を連続的につながった時を絶縁破壊と仮定し、その時点での電位差を絶縁破壊電圧とした。よって、一定の電圧印加時における破壊強度超過箇所を定常的に解き、印加電圧を逐次増加させることで疑似的に短時間破壊をシミュレーションした。定常状態における電界分布 ϕ は式(1)を有限差分法により離散化し求め、誘電率 ϵ は、提案手法に基づいて局所の電界強度のスカラー値を式(2, 3)により求め、これに対する誘電率を式(4)で与えた。

Fig. 1 Schematic image of the electric field intensity and the permittivity around the tip of conductive crack

$$0 = \epsilon \nabla^2 \phi \quad (1)$$

$$\begin{aligned} E_x &= \frac{\partial \phi}{\partial x} \\ E_y &= \frac{\partial \phi}{\partial y} \end{aligned} \quad (2)$$

$$E = (E_x^2 + E_y^2)^{1/2} \quad (3)$$

$$\varepsilon_{new} = \begin{cases} \varepsilon_0 & (E < E_{bd}) \\ \varepsilon_{old} \left(\frac{9E_{bd} + E}{10E_{bd}} \right) & (E > E_{bd}) \end{cases} \quad (4)$$

ここで、 E は電界強度であり、 ε_0 は初期の誘電率であり、 ε_{old} 、 ε_{new} はそれぞれ現在および次の計算ステップでの誘電率となる。局所的な誘電率の変化については、求められた電界分布に基づいて誘電率を更新する作業を電界および誘電率の値が収束するまで行う。印加電圧を 50 V ずつ上昇させながら、これを繰り返すことで、絶縁破壊に至る電圧をシミュレーションにより推定した。

3. き裂を有する高分子フィルムの絶縁破壊

3.1 実験方法

フィラー添加高分子材料では母材となる樹脂とフィラーに加え、製造工程で不可避にボイドが混入するため、電界分布や破壊経路が複雑となる。そこで、提案手法を検証するため、き裂を有する高分子フィルムの絶縁破壊シミュレーションを実験結果と比較した。実験では優れた絶縁性能、力学特性を持つため、電子機器のフレキシブル基板として利用されているポリイミドフィルム（東レ・デュポン社製カプトンフィルム）を供試材料とした。フィルム厚さは 50 μm であり、沿面放電を防ぐために試料は 100 mm×100 mm の大ききで作成した。なお、このポリイミドフィルムの絶縁破壊強度は 400 kV/mm である。図 2 (a)、(b) に示すように、試料には剃刀を用いて予め深さの異なるき裂を与えた。与えたき裂の深さは絶縁破壊試験後に光学顕微鏡を使った断面観察により求めた。電極は直径 30 mm のステンレス棒とし、き裂を挟むように試料の上下に配置した(図 3(a))。なお、電極端部は紙やすりで研磨し、図 3(b)に示すような良好な接触を保証した。

電源として、高電圧直流電源(松定プレジジョン製 HAR-20N15)を用い、0 ~ 20 kV の直流電圧を印加した。実験では 0 V から 1000 V/s で電位差を増大させ、絶縁性能が失われた際の電位差を破壊電圧として記録した。

3.2 解析条件

実験結果との比較のため図 4 に示すように上下を電極で挟まれた高分子に対して、き裂に相当する空気層を挿入し、絶縁破壊電圧に与えるき裂深さの影響を計算によ

り求めた。計算領域は厚さ 50 μm 、幅 50 μm の二次元とした。き裂は厚さ方向に与え、深さは 5~45 μm とした。計算に用いた物性値を表 1 に示す。

Fig. 2 Schematic and microscopic image of the crack given to the polymer film, (a) Cross section image of the film, (b) surface image of the film

Fig. 3 Schematic image of electrode arrangement, (a) surface image and (b) cross section image of cylindrical electrode

Fig. 4 Schematic image of simulation model for crack depth effect on the dielectric breakdown voltage

Table 1 Electric properties of dielectric breakdown simulation of crack inserted polymer film

	Initial relative permittivity ε_0	Dielectric breakdown strength (kV/mm)
Crack (air)	1.0	3.0
Polyimide	4.0	400

3.3 実験及び解析結果

図 5 にき裂の断面画像の一例を示す。挿入したき裂は斜めに入っているが、き裂深さは試料表面からの y 軸方向の長さとして定義した。実験で挿入したき裂の深さは $5\sim 45\ \mu\text{m}$ である。図 6 にき裂深さ $10\ \mu\text{m}$ におけるシミュレーション結果を示す。図中には、各電位差において絶縁破壊強度超過箇所が赤色で示されている。電位差の増加により絶縁破壊強度超過箇所は拡大し、 $17.3\ \text{kV}$ 印加時に全路破壊に至った。図 7 に実験結果とシミュレーションにより求めた、き裂深さと絶縁破壊電圧の関係を示す。実験結果および計算結果はよく一致しており、直流電圧下における絶縁破壊電圧の推定に対し、提案手法によるシミュレーションは適切であると考えられた。

Fig. 5 Microscopic cross section image on the crack

Fig. 6 Propagation of the dielectric breakdown inside of polyimide with a crack, the crack depth was $10\ \mu\text{m}$, blue, green and red colors are polymer, void and partial discharge area, respectively.

Fig. 7 Comparison of the simulated and experimental results of the breakdown voltage at different crack depth

4. フィラー添加高分子材料の絶縁破壊

4.1 実験方法

実験に用いた試料は樹脂に窒化ホウ素のフィラーを分散させた複合材料である。絶縁破壊電圧は材料内の局所的なフィラーやボイドの配置により大きく変化する。そのため、同一の試料内であっても場所によって破壊電圧に大きな差が生じる。この材料分布の偏りは試料調製時に生じる樹脂流動が原因として考えられる。今回使用した試料はもともと $200\ \text{mm}$ 角、厚さ $150\ \mu\text{m}$ のシート状であり、試料中心部は端部に比較し破壊電圧が高くなる傾向が見られた。そこで、同一の試料より異なる箇所の試験片を切り出し、絶縁破壊試験を実施した。なお、絶縁破壊試験は前節で述べたポリイミドフィルムの絶縁破壊電圧測定と同様で行うが、き裂は与えなかった。また、破壊箇所を限定するため、図 8 に示すとおり、試料との電圧印加体積が小さくなる点接触電極を上部電極に用いた。なお、下部電極は、前節と同じ直径 $30\ \text{mm}$ の円柱電極とした。

破壊試験後に各破壊箇所近傍で、CP(クロスセクションポリッシャ)処理を実施し、SEM を用いた断面観察を行った。また、取得した断面画像を輝度値により樹脂、フィラー、ボイド(空気)の三相に分類し、数値シミュレーションにおける対象モデルとした。

4.2 計算条件

実験によって得た破壊電圧と断面画像に基づいてシミュレーション予測した破壊電圧の比較を行った。実験によって得た断面画像の一例を図 9(a)に、数値シミュレーションのために三値化した材料分布を図 9(b)に示す。三値化した画像は図 10 に示すように y 方向に厚さ $150\ \mu\text{m}$ 、 x 方向に幅 $400\ \mu\text{m}$ とし、図中 y 方向に電位差を与えた。表 2 に計算に用いた物性を示す。

Fig. 8 Side view of point contact electrode

4.3 結果と考察

図 11 に三値化した断面画像（図 11(a), (b)）およびシミュレーションにより求めた全路絶縁破壊時の絶縁破壊強度超過箇所の分布（図 11(c), (d)）を示す。ここで(a)と(c), (b)と(d)はそれぞれ対応しており，初期状態と絶縁破壊時の状態を表す。図中の青は樹脂，白はフィラー，緑はボイド，赤は絶縁破壊強度超過箇所を示している。図 11(a), (c)は試料端部の破壊電圧が低い部分から取得した試験片であり，17 kV/mm の電界強度で絶縁破壊した。一方，図 11(b), (d)に示される試料中心付近の試験片については，42 kV/mm という高い値になった。図 11(c), (d)の比較により，ボイド率が低く絶縁破壊強度が高い試料(図 11(d))では全領域にわたって絶縁破壊が生じたことが示された。つまり，材料が本来有していた絶縁破壊強度を最大限利用した結果と

いえる。図 12 に絶縁破壊電圧が低かった試料における全路絶縁破壊箇所の拡大図を示す。なお，図 12 において絶縁破壊は黒枠内で起きており，ボイドの周辺を黄線で縁取っている。絶縁破壊電圧は，樹脂，フィラー，ボイドの順に高く，ボイドから先に絶縁破壊強度を迎える。厚さ方向に多くのボイドがある箇所ではボイドが絶縁破壊強度に達し，樹脂層とフィラーが受け持つべき電界強度が上昇したため，樹脂及びフィラーは他の箇所より早く絶縁破壊強度を迎えた。しかし，厚さ方向にボイドが少ない箇所では絶縁破壊強度に達していないことから同一試料内で絶縁破壊電圧に差が出る主要因はボイドであり，ボイド分率が厚さ方向に高い箇所ほど絶縁破壊が早く生じる様子をシミュレーション出来たと言える。

フィラー添加高分子材料における絶縁破壊電圧の実験結果と計算結果の比較を図 13 に示す。絶縁破壊電圧の計算結果は実験結果よりやや高い値となるが，破壊電圧の

Fig. 9 Cross section image of filler-dispersed composite (a) SEM (b) trinary image of material distribution, blue, white and green colors are polymer, filler and void, respectively.

Fig. 10 Schematic image of simulation model for dielectric breakdown of composite

Table 2 Electric properties for dielectric breakdown simulation of filler dispersed polymer composites

	Relative permittivity	Dielectric breakdown strength (kV/mm)
Polymer	4.0	160
Ceramics Filler	4.0	30
Void (air)	1.0	3.0

Fig. 11 Microscopic image of the composite material overlapped with the partial discharge region: (a) and (b) show initial state, in where white, blue and green are filler, polymer and void, respectively (c) and (d) show the over breakdown strength area: red color is the over breakdown strength area.

傾向は一致している。今回のシミュレーションでは断面画像をもとに破壊電圧を推定したため、全路破壊の経路は断面画像内の二次元空間に限られている。しかし、実際の全路破壊は三次元的に形成され、今回のシミュレーションでは発見できなかった、より低い電圧で全路破壊を起こす経路の存在が予想される。そのため、シミュレーションにより予測した破壊電圧は高くなったと考えられる。

5. 結言

本研究では、実験及び数値シミュレーションの比較により、フィラー添加高分子材料における絶縁破壊電圧低下の要因を検討した。局所的な絶縁破壊強度超過箇所ではその破壊強度を維持し続けるとした計算手法を開発し、き裂を有する高分子フィルム材料に適用することで、提案手法の妥当性を検証した。この手法を用いてフィラー添加高分子材料の断面画像に基づいて絶縁破壊にいたる状況を数値シミュレーションし、ポイドを起点として絶縁破壊強度超過箇所が拡大することで、全路破壊に至る様子を再現した。また、フィルム厚さ方向におけるポイド

Fig. 12 Magnified image of the fully discharged region, in where white, blue and red colors are filler, polymer and PD area of polymer and filler, respectively. The yellow lines indicate shape of voids.

Fig. 13 Comparison of the simulated and experimental results of the breakdown voltage

含有率が絶縁破壊電圧に大きく影響することを指摘した。

参考文献

- [1] C. P. Wong, R. S. Bollampally; "Thermal conductivity, Elastic Modulus and Coefficient of Thermal Expansion of Polymer Composites Filled with Ceramic Particles for Electronic Packaging", JAPS, **74** (1999) 3396-3403.
- [2] H. Li, G. Liu, B. Lou, W. Chen, S. Chen; "Dielectric properties of Polyimide/ Al_2O_3 hybrids synthesized by in-situ Polymerization", Materials Letters **61** (2007) 1507-1511.
- [3] D.A.G Bruggeman; "Calculation of various physical constants of heterogeneous substances", I. Dielectric constants and conductivities of the mixed body of isotropic substances, Ann. Phys., (Leipzig) **24** (1935) 636-791.
- [4] H. Hatta, M. Taya; "Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite", J. Appl. Phys. **58** (7) (1985) 2478-2486.
- [5] H. Hatta, M. Taya; "Equivalent inclusion method for steady state heat conduction in composites", Int. J. Eng. Sci., **24** (7) (1986) 1159-1172.
- [6] R.F. Hill, P.H. Supanic; "Thermal conductivity of platelet-filled polymer composites", J. Am. Ceram. Soc., **95** (4) (2002) 851-857.
- [7] D. Kumlutas, I.H. Tavman; "A numerical and experimental study on thermal conductivity of particle filled polymer composites", J. Thermoplast. Compos. Mater. **19** (2006) 441-455.
- [8] K. C. Pitike, W. Hong; "Phase-field method for dielectric breakdown in solids", J. Appl. Phys., **115**, 044101(2014)
- [9] Z. Whang, T. Iizuka, M. Kozako, Y. Ohki, T. Tanaka; "Development of epoxy/BN composites with high thermal conductivity and sufficient dielectric breakdown strength part II- breakdown strength", IEEE TDEI, **18**, No.6(2011) 1973-1983.
- [10] K.Wu, Y. Suzuoki, T.Mizutani, H.Xie; "A novel physical model for partial discharge in narrow channels", IEEE, TDEI, vol.6, no. 2, (1999) 181-190.
- [11] C. Gao, N. Noda, T. Zhang; "Dielectric breakdown model for a conductive crack and electrode in piezoelectric materials", Int. J. Eng. Sci., **55**(2006) 256-272.

[Received May 2, 2017, Accepted Jun.19, 2017]