

# アルミナの微細組織制御とその特性に関する研究

2011 年

西村 芳孝

# 目次

第1章 自然エネルギーへの転換とパワーモジュールデバイスの果たす	
役割	1
1.1 研究背景	1
1.2 研究の目的と概要	3
参考文献	4
第2章 パワーモジュールデバイスとそのセラミックス基板に求められる性質	5
2.1 緒言	5
2.2 IGBT モジュールの構造	6
2.3 実験方法	9
2.3.1 放熱特性の評価	9
2.3.2 熱膨張係数測定	10
2.3.3 信頼性評価試験	10
2.4 結果と考察	11
2.4.1 放熱特性評価	11
2.4.2 信頼性評価	16
2.5 まとめ	19
参考文献	20
第3章 微細組織制御による高機能アルミナ基材の開発	22
3.1 緒言	22
3.2 ナノ粒子分散アルミナ強化機構	23
3.3 粒子配向制御強化機構	26

3.4 絶縁耐圧と機械強度特性の関係	28
3.5 まとめ	29
参考文献	30
第4章 Ni ナノ粒子分散アルミナ基板の作製と特性評価	32
4.1 緒言	32
4.2 実験方法	33
4.2.1 原料の調整	33
4.2.2 微細組織観察	34
4.2.3 相対密度の測定および機械特性評価	34
4.2.4 熱特性の評価	35
4.2.5 絶縁耐圧の評価	36
4.3 結果と考察	36
4.3.1 Ni の存在箇所を変化させたアルミナ基ナノ複合材料の作製	36
4.3.2 機械特性評価	42
4.3.3 微細組織	44
4.3.4 熱特性	45
4.3.5 絶縁特性	52
4.4 まとめ	54
参考文献	55
第5章 粒子配向制御による高機能アルミナの作製と特性評価	57
5.1 緒言	57
5.2 実験方法	58
5.2.1 試料の作製	58
5.2.2 粒子径および配向度の測定	59

5.2.3 絶縁耐圧の調査	60
5.2.4 機械特性	61
5.2.5 熱伝導率測定	61
5.3 結果と考察	62
5.3.1 微細組織	62
5.3.2 熱特性	65
5.3.3 機械特性	67
5.3.4 絶縁特性	71
5.3.5 絶縁特性と熱特性の関係	73
5.4 まとめ	75
参考文献	75
第6章 総括	77
著者発表の研究論文	80
謝辞	81

# 第 1 章 自然エネルギーへの転換とパワーモジュールデバイスの果たす 役割

## 1.1 研究背景

近年、地球温暖化は最も大きな環境問題であり、その原因としては CO<sub>2</sub> 等温室効果ガスの排出が考えられている。世界規模での地球温暖化による異常気象を防止する為、1997 年に気候変動枠組条約第 3 回締約国会議（COP3、京都会議）において温室効果ガス削減の取り組みが議決された。日本国温室効果ガスインベントリ報告書<sup>1)</sup>をもとに作成した京都議定書の排出基準に対する年度毎の排出量の割合を図 1 に示す。2012 年度に 1990 年度排出量に対し-6%という京都議定書の目標に対し、実際の排出量は増加傾向にある。日本においてはオイルショック以降、1990 年までに既に省エネ活動を続けており、他国より厳しい目標値になっているとも言われているが、今後排出量を減少に転じ大幅な排出削減を行うためには抜本的な対策が必要となる。

各国で温暖化対策が進まない中、2008 年後半にリーマンショックを発端とする世界的経済危機が発生した。その中で米国ではオバマ政権下のグリーンニューディール政策として、環境対応をキーワードにした経済対策（再生可能エネルギー利用と省エネルギーの推進）を実施している。一方日本では、鳩山首相が 09 年の気象変動首脳会合で温暖化排出ガスの削減を 2020 年までに 1990 年度に対し 25%実施することを表明した。それに従い自然を利用した再生可能エネルギーを 2020 年度までに一次エネルギー全供給量の 10%に到達させることを閣議決定した<sup>2)</sup>。

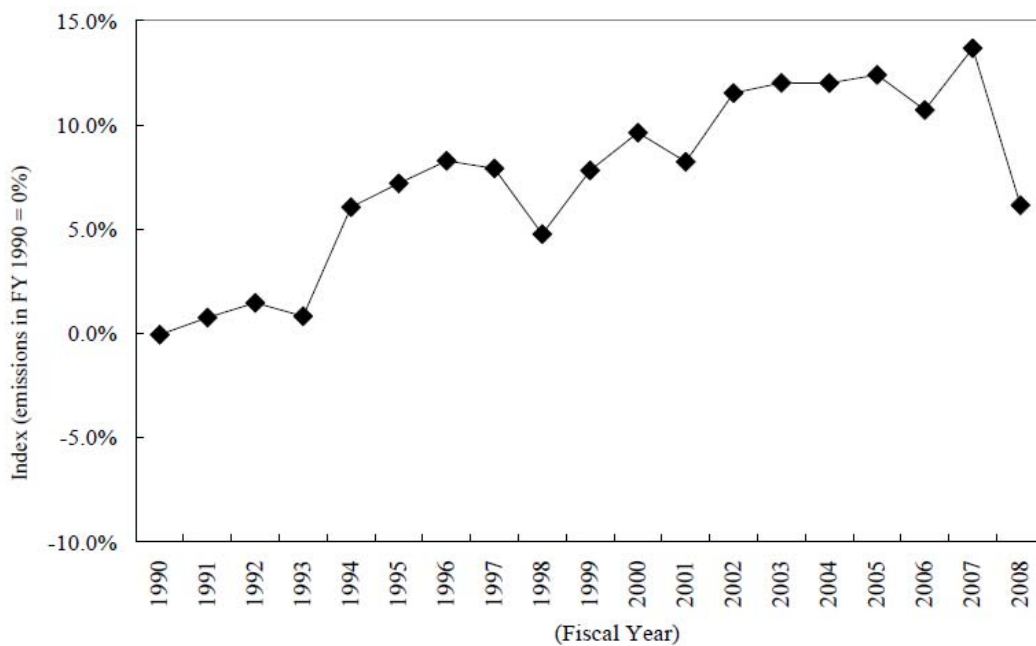


Fig.1-1 Trends in Greenhouse gases emissions in Japan

この動きにより、従来の化石燃料に変わり風力発電や太陽光などの自然エネルギーが注目されるようになってきた。ところで風力発電や太陽光発電により発電された電気エネルギーは、必要とされる電流、電圧、および周波数にパワーエレクトロニクス技術を用いて変換されている。このパワーエレクトロニクスは、エレクトロニクス制御による電気エネルギーのコントロールや変換、加えて他のエネルギー形態への変換技術であり、その適用分野は、前述の自然発電ばかりでなく、我々の生活のほとんどの家電製品から自動車などの大衆消費材に適用されている。

パワーデバイスとは、バルブデバイスとも言われ、何らかのスイッチ機能を持ち、パワーエレクトロニクスにおいて最も基本的かつ重要な構成要素である。自然エネルギー発電における電力変換、およびモータ制御におけるパワーデバイスの果たす役割は重要である。風力発

電においては、発電した電力の変換機にパワーデバイスとして IGBT<sup>3-5)</sup> モジュールが使用されている。この風力発電における IGBT モジュールは風力発電塔内の限られたスペースに設置されることが多く、そのため IGBT モジュールを水冷することにより実装密度を上げ小型化を図っており、効率化とダウンサイジングが計られている<sup>6)</sup>。風力発電ユニット容量は 2000 年に 0.6MW であったものが、2007 年には約 3 倍の 1.8MW に増大している。そのため使用している IGBT モジュールは更なる高密度化、かつ大容量化が求められている。またこの風力発電機の大型化に伴い、設置場所が従来の陸上から海上に移動している。海上は安定した風が吹くため発電効率が優れる一方、保守作業が難しいため使用部品の高信頼性が要求される。また、電力輸送の効率化を図るため必然的に高電圧となり、そのため IGBT モジュールの高耐圧化が進んでいる。加えて、直流を交流に逆変換するインバータ制御方法として高い電流容量帯が必要とされているため、その意味からも高耐圧化が望まれている<sup>7)</sup>。

IGBT モジュールにおいてセラミックスは、(1) 絶縁の確保、(2) IGBT チップから発生する熱を放熱フィンへ伝導、その上に(3) 電気回路を形成する基材としての役割を担っている。

<sup>8)</sup>セラミックスは、IGBT モジュールを構成する他部材と比較し熱伝導率が低いため、セラミックス自体の熱伝導率を向上させること、及び高絶縁圧特性を保ちつつ強度を落さずに出来るだけ厚みを薄くして熱抵抗を低減することが求められている。

## 1.2 研究の目的と概要

本論文は、IGBT モジュールに欠かせない絶縁セラミックス基板の果たす役割にスポットをあてる。セラミックス材料の特性が IGBT モジュールの使用中の放熱性、および熱膨張差によ

る破壊を防ぐ信頼性に与える影響について解明する。そこから、IGBT モジュールのセラミックスに求められる要求性能について明らかにする。そして本研究は、最終的に IGBT モジュールで使用するための微細組織制御による高機能アルミナ基板の開発を目的とし、微細組織制御とセラミックスの強度、靱性、熱伝導率、および絶縁耐圧などの関係を明らかにし、絶縁セラミックス基板材料開発の指針を得た。

#### 参考文献

- 1) National Greenhouse Gas Inventory Report of Japan 2010, Greenhouse Gas Inventory Office of Japan (GIO), CGER, NIES, Ministry of the Environment, Japan, April 2010.
- 2) 地球温暖化対策基本法案.
- 3) B.J.Baliga, M.S.Adler, P.V.Gray, R.Love, and N.Zommer, IEEE IEDM Tech., Dig., pp.264-267(1982).
- 4) J.P.Russell, A.M.Goodman, L.A.Goodman, and J.M.Neilson, IEEE Electron Device Letter, EDL-4, pp.63-65(1983).
- 5) Y.Seki. *T IEE Japan*, **122-C**, pp1074-1076 (2002)
- 6) T.Ambo, M.Souda. *IEEJ Journal*, **129**, no.5, pp.291-294(2009).
- 7) Y.Abe, K.Maruyama, Y.Matsumoto, K.Sasagawa, K.Matsuse. *IEEJ Trans.IA*, **127**, pp241-246(2007)
- 8) W.W.Sheng, R.P.Colino, Power Electronic Module. CRC press pp11-36(2005)



## 第2章 パワーモジュールデバイスとそのセラミック基板に求められる性質

### 2.1 緒言

IGBTとは(Insulated Gate Bipolar Transistor)の略称であり、PNPバイポーラトランジスタをMOSゲートで駆動することで高速スイッチングを可能とした半導体である。通常はIGBTモジュールなど、その他の構成要素までを合わせたアッセンブリーで表現されることが多い。このIGBTモジュールは、家電製品、自動車、産業用ロボットから発電機の変圧まで幅広い分野において使用されている<sup>1-3)</sup>。IGBTモジュールに要求される特性としては、高効率化による省エネルギー化、小型化、高信頼性、あるいはノイズ低減等が挙げられる。これらの要求に対し、従来までは主にIGBTモジュールのチップと呼ばれる部品(素子)の改善により特性の向上を目指してきた。例えば、IGBTチップにおいてフィールドストップ構造を採用することにより、IGBTモジュールの薄型化が促進され低損失化が進んだ<sup>4),5)</sup>。しかしながらシリコンを用いたIGBTチップの特性改善は理論限界値に近づいており、IGBTモジュールの構成部材による特性改善が期待されている。

ところですべての産業製品は、地球環境への配慮が重要な課題となっている。酸性雨によって、廃棄された電気機器のはんだから鉛が流出し、地下水を汚染している。そのためIGBTモジュールにおいても従来の鉛はんだから鉛フリーはん

だに代替することで、”電気・電子機器に含まれる特定有害物質の使用制限に関する欧州議会及び理事会指令(RoHS 指令)”<sup>6)</sup>への対応が不可欠となっている。そのため、このはんだの代替が IGBT モジュールの熱や破壊信頼性特性に大きな影響を与えている。

本章では、IGBT モジュールに要求される重要な特性（放熱性、破壊信頼性）へおよぼす IGBT モジュールの構造の影響を調査し、次世代 IGBT モジュールに求められる構造、およびそれに使用されるセラミックス材料として必要な特性を明確化することを目的とする。

## 2.2 IGBT モジュールの構造

IGBT チップとダイオードを搭載し、規定のケースに収めたアッセンブリーを IGBT モジュールと呼んでいる。IGBT モジュールの一般的な構造を図 2-1 に示す。複数の IGBT チップとダイオードが回路基板上に搭載され、電気回路を形成している。さらに、回路と放熱板の間に絶縁層を形成することで電気回路の絶縁を確保していることを特徴としている。稼働時、IGBT チップは、1200～1700V という高電圧が印加され、およそ 125℃で動作している。そのため絶縁層としてプリント基板などの有機物を用いると、熱劣化や電圧印加箇所においてイオンマイグレーション（金属イオンの拡散現象によって絶縁不良となり短絡すること）により絶縁劣化し、長期信頼性を確保することが難しい。そのため熱的および化学的に安定なセラミックスを用いたセラミックス絶縁回路基板（Direct Copper

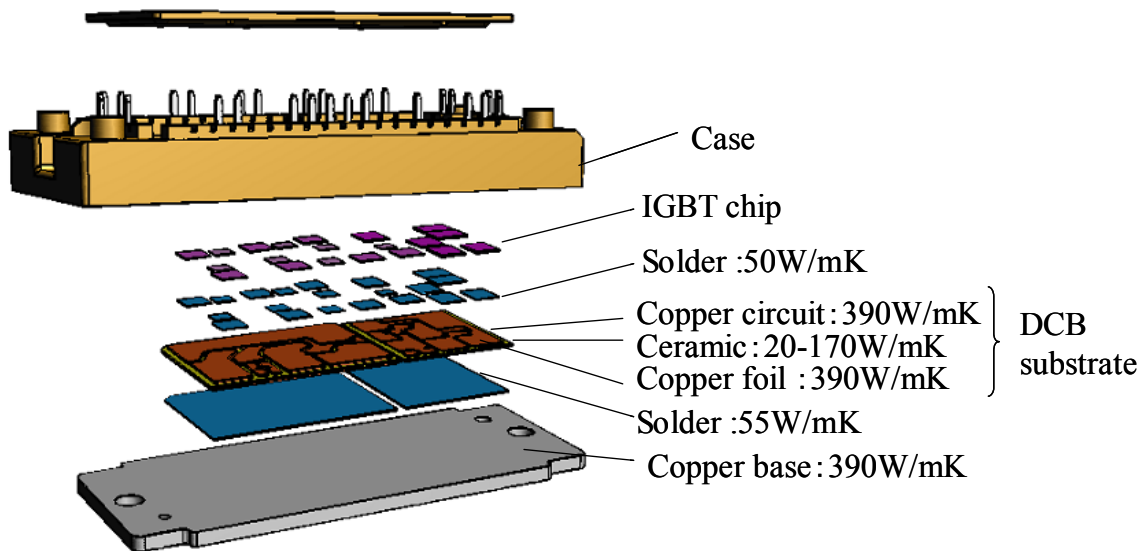


Fig.2-1 IGBT module structure and specifications.

Bonding 基板) が主に使用されている。

IGBT チップから発生した熱は、銅回路、セラミックス絶縁層、はんだ接合層、そして銅ベースを通り、最終的に放熱フィンに抜け放熱される。表 2-1 に絶縁層に用いられるセラミックスの諸特性を示した。セラミックス材の熱伝導率は、20～170W/m・K である。この中で、アルミナは高強度で安価であるが、窒化アルミニウムや窒化珪素と比較し熱伝導率は低い。工業製品としては、安価なアルミナは有力な IGBT モジュールの候補材料であり、必要な機能を向上させるための研究は重要である。

ところで、RoHS 指令により、IGBT モジュールにおいても、鉛を含んだはんだ材の使用が規制対象となった。IGBT モジュールにおけるはんだ材は IGBT チップと銅回路接合部、およびセラミックス絶縁基板と銅ベースの接合部に使用されている(図 2-1 参照)。鉛フリーはんだを適用する上での技術的課題は、鉛フリーはんだ材の高融点化に伴う実装温度の高温化と、はんだ材の変更に伴う熱疲労、即ち繰り返し熱負荷がかかることでチップ

Table2-1 Characteristics of ceramics used for insulating substrate

Ceramics	Thermal conductivity	Thermal expansion coefficient	Young's modulus	Ceramic thickness
	W/m·K	$\times 10^{-6}/K$	GPa	mm
Alumina	18	7	360	0.25-0.32
Aluminium nitride	170	4	310	0.635
Silicon nitride	70	3	296	0.32-0.635
Copper	390	16	112	base thickness 3

とセラミックス絶縁基板、または銅ベースとセラミックス絶縁基板の接合部で熱膨張差により発生する熱応力により、接合部が破壊するといった信頼性の低下の改善である<sup>7)</sup>。実装温度の高温化は、使用部材の変更による耐熱温度の高温化、および実装装置の変更により対応している。IGBT チップと銅回路の接合においては、SnAg 鉛フリーはんだ<sup>8)</sup>の適用により破壊信頼性は確保されたが<sup>9)</sup>、一方、セラミックス絶縁基板と銅ベースの接合部の破壊信頼性の確保が課題となっている。表 2-1 から、熱膨張係数は、窒化アルミニウムや窒化珪素と比較してアルミナの値は最も銅ベースの値に近い。製品の稼動時における温度変化によって絶縁基板と銅ベース間に発生する応力は、窒化アルミニウムや窒化珪素基板と比較してアルミナは小さく、要求される高信頼性を確保できる可能性がある。そこでセラミックス絶縁基板としてはアルミナセラミックスを用い、その特性が IGBT

モジュールの放熱性および信頼性に与える影響について研究した。

## 2.3 実験方法

### 2.3.1 放熱特性の評価

構造部材の放熱性の解析調査は、ADINA（ソフトウェア：ADINA R&D、Inc 製）を用いた有限要素法により解析を行った。図 2-2 に解析に用いたモデルの模式図を示す。

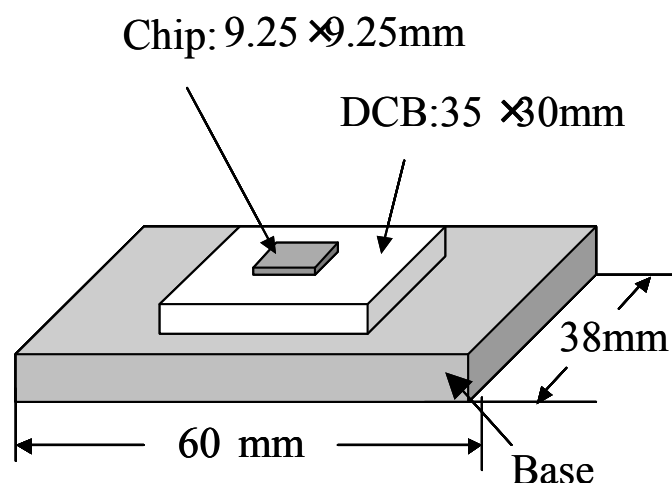


Fig.2-2 Thermal analysis model (single chip)

各部品サイズは、IGBT チップサイズが  $9.25 \times 9.25\text{mm}$ 、セラミックス絶縁基板サイズが  $33 \times 30 \times 0.32\text{mm}$ 、および放熱銅板サイズが  $60 \times 38 \times 3\text{mm}$  である。銅回路基板の厚みを  $0.25$  および  $0.6\text{mm}$  とし、加えてセラミックスの熱伝導率を  $18 \sim 170\text{W/m}\cdot\text{K}$  とした場合において、IGBT のチップに  $150\text{W}$  の電力を印加し

た状態における IGBT チップの温度解析を行った。

実測用の試料は、解析モデルと同サイズ、同構成にて作製した。セラミックス絶縁基板には、アルミナセラミックス絶縁基板（熱伝導率  $28\text{W/m}\cdot\text{K}$ 、銅回路の厚み  $0.6\text{mm}$ ）、および窒化アルミニウムセラミックス絶縁基板（熱伝導率  $170\text{W/m}\cdot\text{K}$ 、銅回路の厚み  $0.25\text{mm}$  品）を用いた。チップ温度の測定には、放射率を一定にするため観察面にカーボンを塗布し、サーモビューア(TVS-8500:アビオニクス製)を用いて行った。測定条件は、IGBT チップに  $150\text{W}$  の電力を印加し、5 分間保持して安定化したチップの温度を測定した。

### 2.3.2 熱膨張係数測定

アルミナセラミックス絶縁基板の表裏に接合する銅回路の厚みを  $0.25$ 、 $0.4$ 、 $0.5$  および  $0.6\text{mm}$  とした試料（セラミック絶縁基板サイズ  $33\times 30\times 0.32\text{mm}$ ）を用いて、線膨張係数の測定をおこなった。測定温度は  $25^\circ\text{C}$  および  $300^\circ\text{C}$  とし、各温度でセラミックス絶縁基板を 1 時間保持後、レーザ変位計 (LT-8100:キーエンス製) を用いて銅回路表面長の測定をおこない、単位温度当たりの線膨張率を算出した。

### 2.3.3 信頼性評価試験（温度サイクル試験）

セラミックス絶縁基板と銅ベース接合部は稼動中、IGBT が繰り返しオンオフされ、発熱を繰り返すことで各部材の熱膨張係数差で発生する熱応力により破壊する。そこで稼動時を想定した温度変化を模擬した温度サイクル試験により信頼

性の評価を行った。

銅回路の厚みを 0.25 および 0.6mm としたセラミック絶縁基板(33×30×0.32mm)に、放熱用銅板(25×17×3mm)を鉛フリーはんだにて接合し、温度サイクル試験を行った。試験条件は1サイクル;-40℃(60min)~RT(30min)~125℃(60min)とした。温度サイクル試験後の、セラミックス絶縁基板-銅ベース間のはんだの劣化状況は超音波探傷装置(プローブ 25MHz、FS300:日立建機製)を用い、はんだ層に発生した亀裂長さの測定をおこなった。

## 2.4 結果と考察

### 2.4.1 放熱特性

放熱性の指標である熱抵抗値( $R_{th}$ )は次式にて示される。

$$R_{th} = \frac{t}{S\lambda} \quad (2-1)$$

ここで  $t$  は放熱経路の厚み、 $S$  は放熱経路の断面積、 $\lambda$  は物質の熱伝導率である。

熱抵抗値を小さくする為には、層厚みを薄く、放熱経路断面積を大きく、熱伝導率を高くすればよいことが判る。

図 2-3(a)に、現行の IGBT モジュールの構造断面図とチップからの放熱経路を示した。IGBT チップで発生した熱は、はんだ接合層、絶縁基板の銅回路、セラミックス絶縁層、裏銅回路、はんだ接合層から、放熱用銅ベースと伝わり、最終的には冷却フィンで冷却される。IGBT モジュール構造の放熱経路において、最も熱伝導率が低い層(部材)はアルミナセラミックス層である。つまり IGBT

のチップ温度は、セラミックスの熱伝導率の影響を最も受けることがわかる。セラミックス層の熱抵抗を低減するために、アルミナセラミックスを用いた絶縁基板では、既にセラミックス基板の厚みを、表 2-1 に示すように窒化アルミニウムや窒化珪素基板と比較して、その厚さを薄くし対応している。さらにセラミックス層の熱抵抗を低減するための対策としては、式 2-1 より、放熱経路の断面積を大きくすること、あるいは本質的にセラミックス層の高熱伝導化により熱抵抗を低減する方法がある。この放熱経路面積の増大については、セラミックス層前の銅回路基板を厚くすることで、放熱経路の断面積が大きできると考えた。この銅回路基板を厚くした構造の模式図を図 2-3(b)に示す。

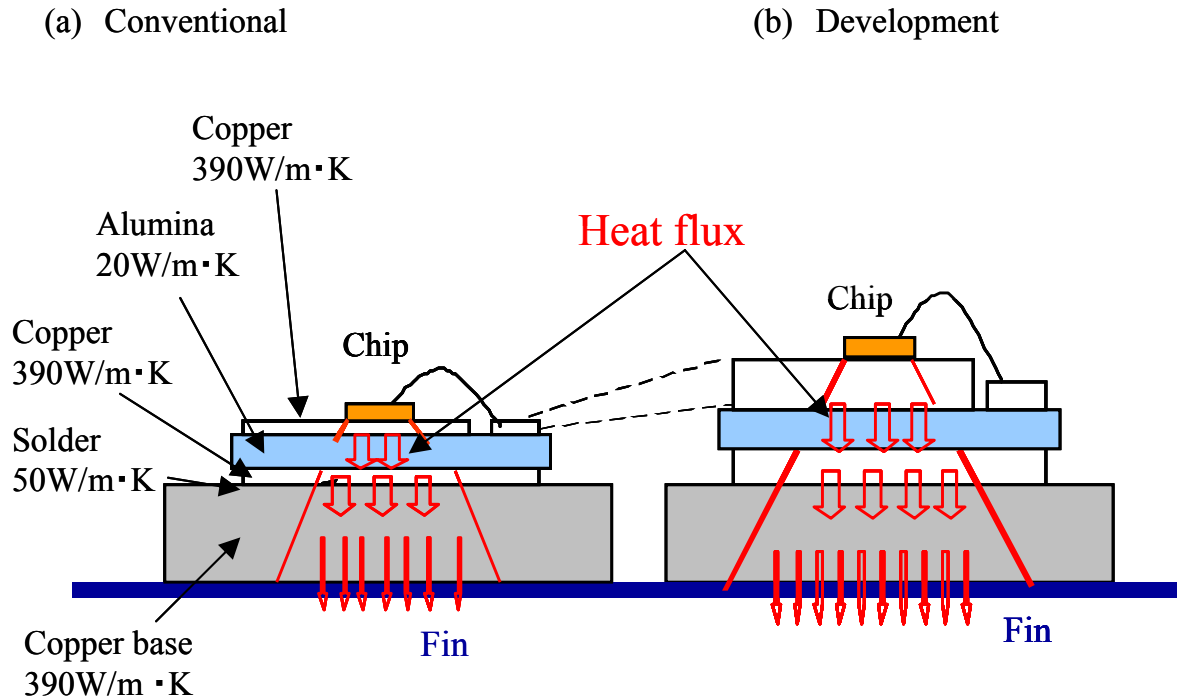


Fig.2-3 Cross-sectional structure of IGBT modules



そこで、銅回路の厚み、およびセラミックスの熱伝導率とチップ温度との関係について有限要素法を用いたコンピュータ解析を試みた。図 2-4 に、その解析結果を示す。銅回路の厚みを  $0.25\text{mm}$  とし、セラミックスの熱伝導率を  $15\text{W/m}\cdot\text{K}$  から  $60\text{W/m}\cdot\text{K}$  に変化させると、チップ温度は約  $20^\circ\text{C}$  低下した。

一方、セラミックスの熱伝導率を  $70\text{W/m}\cdot\text{K}$  から  $170\text{W/m}\cdot\text{K}$  に増加した場合、チップ温度の低下はわずか  $4^\circ\text{C}$  であった。銅回路の厚みを  $0.6\text{mm}$  にした場合においても同様の傾向を示した。これは IGBT チップとセラミックス絶縁基板の接続のために使用しているはんだ層の熱伝導率が  $50\text{W/m}\cdot\text{K}$  であり、モジュールの構成要素の中で、もっとも大きな熱抵抗層が、セラミックス基板からはんだ層に変わったことが原因とみられた。そのためセラミック基板の熱伝導率が  $60\text{W/m}\cdot\text{K}$  以上において、チップ温度が低下しにくくなったと考えられる。一般的に用いられている鉛フリーはんだ材は、Sn の成分が 90% 以上を占める。Sn 単体の熱伝導率が  $68\text{W/m}\cdot\text{K}^{10)}$  であることから、現条件での IGBT モジュールの構造におけるセラミック基板の熱伝導率の最適値は、はんだ材と同程度であることが望ましいといえる。

次に、銅回路の厚みがチップ温度に与える影響について考察した。セラミックスの熱伝導率を  $20\text{W/m}\cdot\text{K}$  と仮定し、銅回路の厚みを  $0.25\text{mm}$  から  $0.6\text{mm}$  に厚くした場合、チップ温度の低下は約  $10^\circ\text{C}$  であった。一方、セラミックスの熱伝導率を  $170\text{W/m}\cdot\text{K}$  と仮定し、銅回路の厚みを  $0.25\text{mm}$  から  $0.6\text{mm}$  に厚くした場合、チップ温度の低下は約  $6^\circ\text{C}$  と小さくなった。このことからセラミックの熱

伝導率が低い程、銅回路の厚みを厚くすることで放熱性が向上することがわかった。

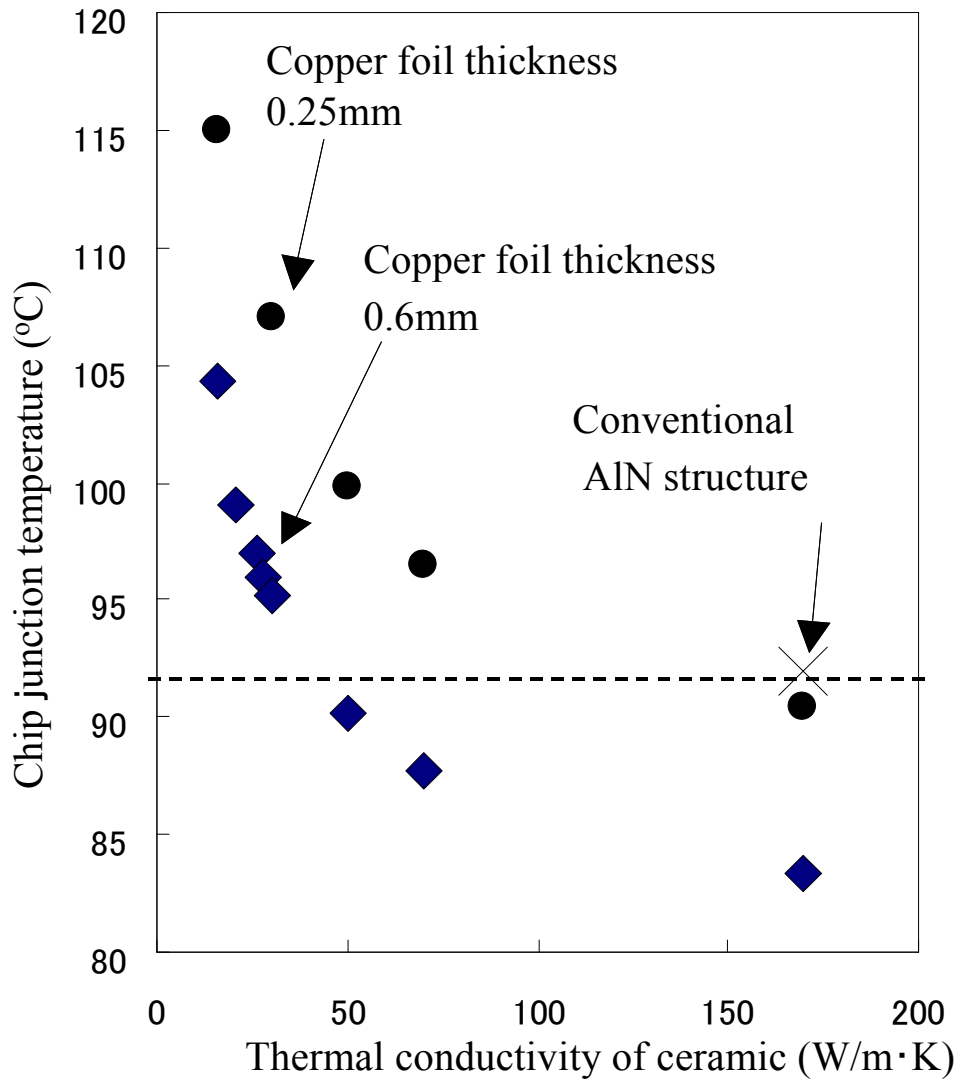


Fig.2-4 Relationship between thermal conductivity of ceramics, copper foil thickness and chip junction temperature.

以上の解析結果から、 $30\text{W/m}\cdot\text{K}$  の熱伝導率のアルミナ板と  $0.6\text{mm}$  の銅回路の厚みを用いることで、現在、最も放熱性がよい基板である窒化アルミニウム絶縁基板を用いた場合と同等の IGBT チップの温度を低下させることが可能であることが示された。

そこで、解析モデルと同サイズ ( $33\times 30\times 0.32\text{mm}$ ) で熱伝導率  $28\text{W/m}\cdot\text{K}$  のアルミナ板を用い、銅回路の厚みを  $0.6\text{mm}$  のとした試料を作製し、実測によるチップ温度を測定した。比較検討試料として、窒化アルミニウム絶縁板 ( $33\times 30\times 0.635\text{mm}$ ) を用い、銅回路の厚みを  $0.25\text{mm}$  とした窒化アルミニウム絶縁基板を用いた。150W の電力を印加し 5 分間保持して安定化したチップ表面温度分布をサーモビューア装置で解析した結果を図 2-5 に示す。アルミナと窒化アルミニウムを用いた双方の絶縁基板の温度差は約 3 度であった。この値は、図 2-4 で示した有限要素法による解析結果とほぼ一致した。

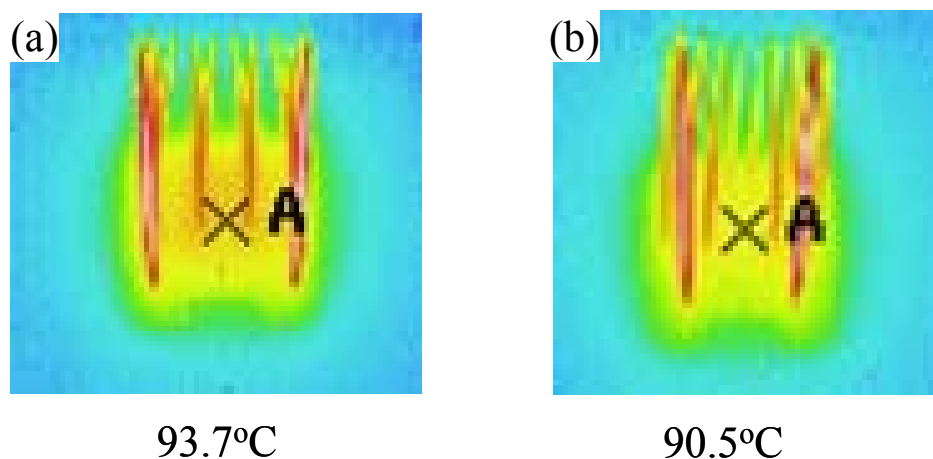


Fig.2-5 IR camera images of the (a) alumina substrate with 0.6mm copper foil (b) aluminum nitride substrate.

## 2-4-2 信頼性評価

セラミックス絶縁基板と銅ベース間の熱膨張係数差の違いにより発生する応力を低減させる方法として、銅ベースの代わりに Cu-Mo 複合材料や AlSiC 複合材<sup>11)</sup>、Cu-Cu<sub>2</sub>O 複合材料<sup>12)</sup>、さらにカーボン複合材料を用い、放熱性が高く、しかも熱膨張係数をセラミックス絶縁基板に合わせることで信頼性を高める方法が提案されている。しかし、いずれの複合材料も銅と比較して熱伝導率が低く、かつ材料のコストが高い。そのためハイブリット自動車や、電車など高信頼性が要求される分野の一部に適用されているのみである。

そこで今回は、セラミックス絶縁基板の熱膨張係数を銅ベースに近づけることにより、はんだ層に発生する応力を低減させる検討をおこなった。セラミックス絶縁基板のように銅/セラミックス/銅の三層複合材料である複合体における水平方向に対する熱膨張係数  $\alpha$  は次式によって表される<sup>13)</sup>。

$$\alpha = \alpha_1 + \frac{(\alpha_2 - \alpha_1)t_2E_2}{(t_1E_1 + t_2E_2)} \quad \text{-----} \quad (2-2)$$

ここで  $\alpha_1$  はセラミックスの熱膨張係数、 $t_1$  はセラミックスの厚み、 $E_1$  はセラミックスのヤング率、 $\alpha_2$  は銅回路の熱膨張係数、 $t_2$  は銅回路の厚み、 $E_2$  は銅回路のヤング率を表す。式 2-2 と表 2-1 より、セラミックス絶縁基板の表面方向の熱膨張係数を大きくするためには、銅回路の厚み( $t_2$ )をセラミックスの厚み( $t_1$ )に対してより厚くすればよいことが判る。図 2-6 に、銅回路の厚みと絶縁基板表面の熱膨張係数の関係を示す。銅回路の厚みが 0.25mm の場合、セラミックス絶縁

基板表面の熱膨張係数は、ほぼアルミナと同じであり、銅の回路表面の熱膨張係数がアルミナの熱膨張係数の影響を受けていることがわかった。銅回路の厚みが増すのと共に銅回路表面の熱膨張係数は大きくなり、銅の回路の厚みが 0.6mm では、ほぼ銅の熱膨張係数と一致した。

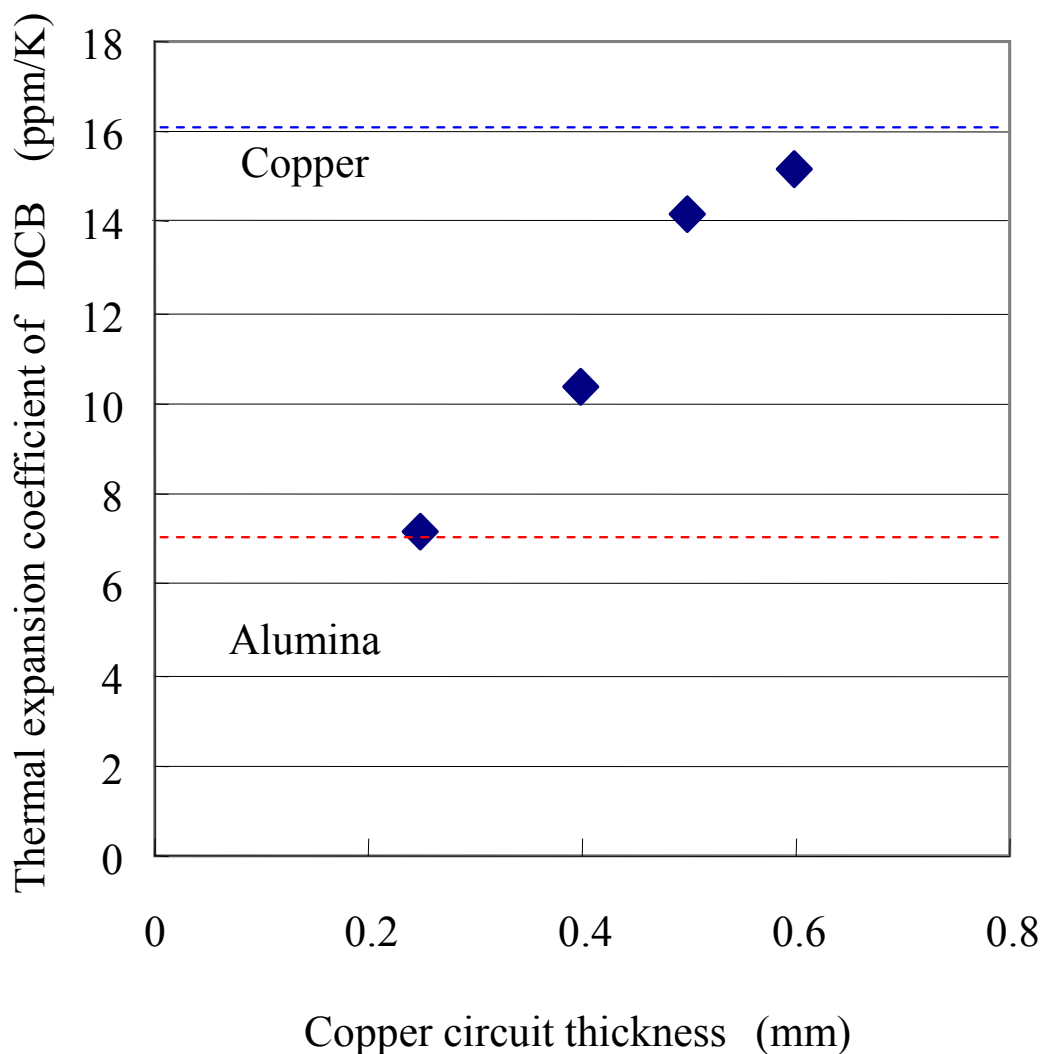


Fig.2-6 Change of the thermal expansion coefficient of DCB with the copper circuit thickness.

次に、銅回路の厚みが信頼性に及ぼす影響について研究した。図 2-7 に、温度サイクル数とはんだ層に発生した亀裂長さの関係を示す。従来の基板では温度サイクル数が 1000 サイクルに達した場合に約 1mm の亀裂が発生したが、銅回路の厚みが 0.5mm の場合の基板では、亀裂が観察されず、3 倍以上に寿命が向上することが明らかになった。

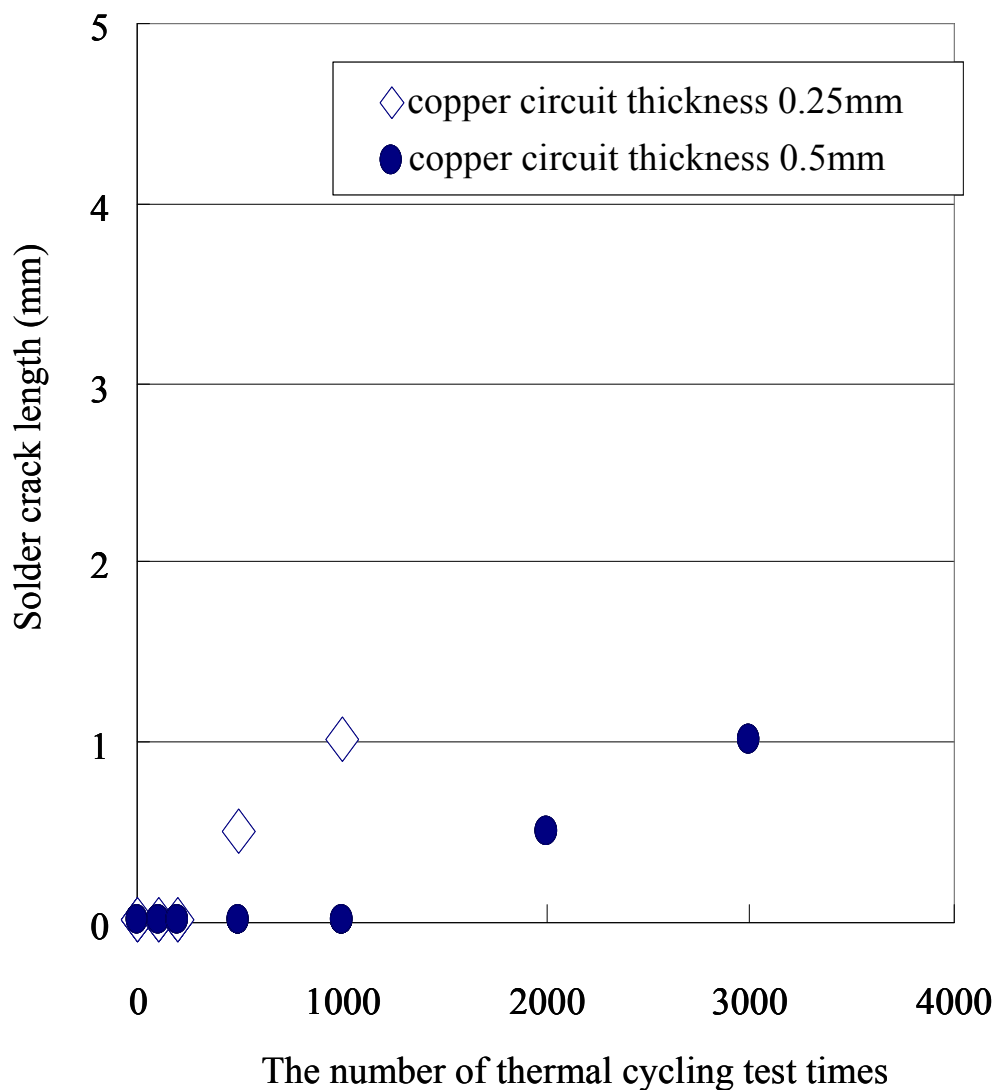


Fig.2-7 Relationship between copper circuit thickness and resistance characteristics in thermal cycle test.

## 2.5 まとめ

本章では、IGBT モジュールの構造から放熱性及び破壊信頼性に及ぼすセラミックス絶縁基板の熱伝導率の影響について研究を行った。その結果、次なる知見を得た。

1) IGBT モジュール構造におけるセラミックスの熱伝導率が、チップ温度に与える影響について有限要素法による解析をおこなった。セラミックスの熱伝導率が  $60\text{W/m}\cdot\text{K}$  以下の場合では、セラミックスの熱伝導率が IGBT モジュールの放熱性の支配因子となった。一方、セラミックスの熱伝導率が  $60\text{W/m}\cdot\text{K}$  以上では、はんだ層の熱伝導率が IGBT モジュールの放熱性を支配する因子となった。以上の結果から、セラミックスの熱伝導率ははんだ材と同程度 ( $60\text{W/m}\cdot\text{K}$ ) であることが望ましいと結論付けられた。

2) セラミックスの熱伝導率が  $28\text{W/m}\cdot\text{K}$  で、銅の回路の厚みを  $0.6\text{mm}$  とした場合、セラミックス層を通過する熱密度を低くし、現行では最も放熱性がよいとされる窒化アルミニウム絶縁基板を用いた場合と同等の放熱性を実現した。

3) セラミックス絶縁基板における銅回路の厚みが接合層の熱膨張係数に与える影響、さらにその熱膨張差から発生する応力による破壊信頼性を評価した。銅の回路の厚みを  $0.5\text{mm}$  とし、アルミナセラミックス基板を用いた場合、セラミッ

クス絶縁基板表面の熱膨張係数を銅に近付け、現行の放熱性に優れたアルミナセラミックス基板に対し、3倍以上の破壊信頼性を実現した。

#### 参考文献

- 1)Y.Seki.*T IEE Japan*, **122-C**,pp1074-1076 (2002).
- 2)G.Majumdar, *IEEJ Trans.*,pp.143-153(2007).
- 3)I.Takata, G.Majumdar, *IEEJ Trans.*,pp.32-36(2010).
- 4)T.Laska, M.Munzer, F.Pfirsch, C.Schaeffer, *Proc.ISPSD2000*, pp.355-358 (2000).
- 5)Y.Onozawa, M.Otsuki, N.Iwamuro, S.Miyashita, T.Miyasaka, Y.Seki and T Matsumoto *IEEE Trans on Industry Applications.***39**, pp513-519 (2007).
- 6)“Directive 2002/95/EC of European Parliament and the Council on the Use of Certain Hazardous Substances in Electrical and Electronic Equipment”, the Official Journal of European Union, L37, 13.2.2003, p.19.(2003)
- 7)Suganuma Katsuaki,*J.JIEP.*, **9**, pp134-137 (2006) .
- 8)Nagano, M., N. Hidaka, H. Watanabe, M. Shimoda, and M.Ono, *J.JIEP.*,**9**, pp171-179 (2006).
- 9)A. Morozumi, K. Yamada, T. Miyasaka, S. Sumi, and Y. Seki, *IEEE Trans on Industry Applications.***39**, pp665-671 (2003).
- 10)Y.Fukuoka M.Ishizuka,*J.apply phy.*, pp1377-1384 (1990).
- 11)M.K. Premkumar, . *Proc. 3rd International Symposium*, pp162-165 (1997)



12)R. Saito, Y. Kondo, Y. Koike, K. Okamoto, T. Suzumura, and T. Abe, *Proc ISPSD 2001.*, pp.51-54.(2001).

13)O.Haga and M.Kimura,*J.Soc.Mat.Sci.***36**, , pp92-97.(1987).

## 第 3 章 微細組織制御による高機能アルミナ基材の開発

### 3.1 緒言

前章までに、IGBT モジュールに用いられるセラミックス絶縁基板の熱特性が、IGBT モジュールの熱特性におよぼす影響について調べ、アルミナセラミックス基板の熱伝導率の向上、そして銅回路の厚みを厚くすることが、モジュール全体の放熱性、および破壊信頼性の改善に有効であることを示した。

これまで、高い放熱性が要求されるパワーエレクトロニクス製品においては、比較的熱伝導率の高い窒化アルミニウムが期待されている。しかし、各部材の熱膨張係数は、銅（回路）の  $16 \times 10^{-6}/\text{K}$  に対して、セラミックス材料の場合、窒化アルミニウムは  $4 \times 10^{-6}/\text{K}$ 、窒化珪素は  $3 \times 10^{-6}/\text{K}$ 、アルミナは  $7 \times 10^{-6}/\text{K}$  と低い。その為、パワーエレクトロニクス製品の稼働時の温度変化により、銅とセラミックス接合界面に熱膨張係数の差から応力が発生し、やがてき裂が生成して破壊する。一般にセラミックス材料の破壊靱性は金属に比べて低いため、脆く破壊しやすい。そのため、セラミックス基板の破壊に対して大きな安全保証を確保するために、例えばセラミックス基板を厚くするなどの材料設計を行っている。つまりパワーエレクトロニクス製品の破壊信頼性を向上させるために、セラミックスの高靱性化および高強度化は特に重要な課題である。機械的特性および絶縁特性に優れるセラミックスが開発できれば、セラミックス基板を薄く、そして銅回路を厚く設計することが出来、放熱性も向上する。これまでのところ、コスト

面から窒化アルミニウムでなくアルミナが採用され、高強度・高靱性であるジルコニアを添加したアルミナ基板を用いて、セラミックス基板を薄く、そして銅回路を厚くすることで高強度および高放熱化を図る工夫がなされてきた<sup>1),2)</sup>。

本章では、アルミナの微細組織を制御することで、その機械的特性を向上させる方法について研究する。具体的な微細組織の設計指針として、ナノ粒子分散アルミナ、および粒子配向アルミナについて述べる。最後に、機械的特性である破壊靱性の向上が、IGBT モジュールのセラミックス基板の重要な特性項目である絶縁耐圧の向上をもたらす可能性について論じる。

### 3.2 ナノ粒子分散アルミナ強化機構

セラミックスは、イオン結合や共有結合という強い原子結合により構成されているため、本質的に脆性を示す。その為、脆性を改善して高靱性を有するセラミックスを作製することは容易ではなく、従来にはない新しい概念に基づいた材料設計が必要となる。Niihara ら<sup>3)</sup>の開発したナノ複合材料は、マトリックス粒子内にナノサイズの第二相粒子を分散させるという“粒内ナノ複合構造”が特徴であり、この構造を有するセラミックスの破壊靱性と破壊強度は大幅に改善されると期待されている。本研究で微細組織の設計指針の一つとしているアルミナ基ナノ複合化材料の破壊強度の改善に関しては、これまで Niihara ら<sup>3)</sup>、Zhao ら<sup>4)</sup>、さらには Borsa ら<sup>5)</sup>の報告がある。また、近年ではナノ微細組織の設計が、機械的特性の改善と同時に強磁性などの機能的な特性を新たに付与できる可能性が

あるという研究もなされている<sup>6)</sup>。

図 3-1 は、(a)アルミナ単体および、(b)ナノ粒子粒内分散アルミナ複合材料のき裂伸展の挙動の違いを模式化したものである。また同時に、そのナノ粒子分散複合材料の高強度化および高靱化機構を示している。まず、(a)のアルミナ単体の場合では、焼結後に粒子径の大きさに依存した残留応力が発生する。この残留応力は、試料冷却中の収縮時に粒子同士が拘束し合って生じる。つまり、ある粒子に引張り応力が生じると、その隣りの粒子には圧縮応力が生じるという自己平衡性をもち、それ故に焼成後粒子毎に潜在する応力は異なった値をとる。この残留応力は、粒子径がナノ寸法の場合には超塑性現象によってほとんど生じないが、粒径が大きくなるのと共に無視できないほどの大きさになる。

ここで、図 3-1(a)に示すように、試料の最弱欠陥（破壊の起点となる）が粒界三重点にあるキャビティであるとして、そのまわりの粒子に大きな引張り残留<sup>8)</sup> 応力が生じているとすれば、それらの残留応力の効果によって試料の強度は大幅に低下する。また、き裂は強度の弱い粒界に沿って伸展するため粒界破壊となる。一方(b)に示されるように、第二相粒子がマトリックス粒内に存在すると、いういわゆる粒内ナノ粒子分散構造をもつ材料では、マトリックス粒子と第二相粒子との熱膨張差により焼結後の冷却過程において、かなりの大きさの残留応力が発生する。例えば、マトリックスを $\alpha$ -アルミナ、第二相粒子を SiC や銅等とするとき、約 700°C 以上の高温域では、第二相との界面に生じるせん断応力は、 $\alpha$ -アルミナの臨界分解せん断応力<sup>8)</sup>よりも大きくなることが示されている<sup>9)</sup>。

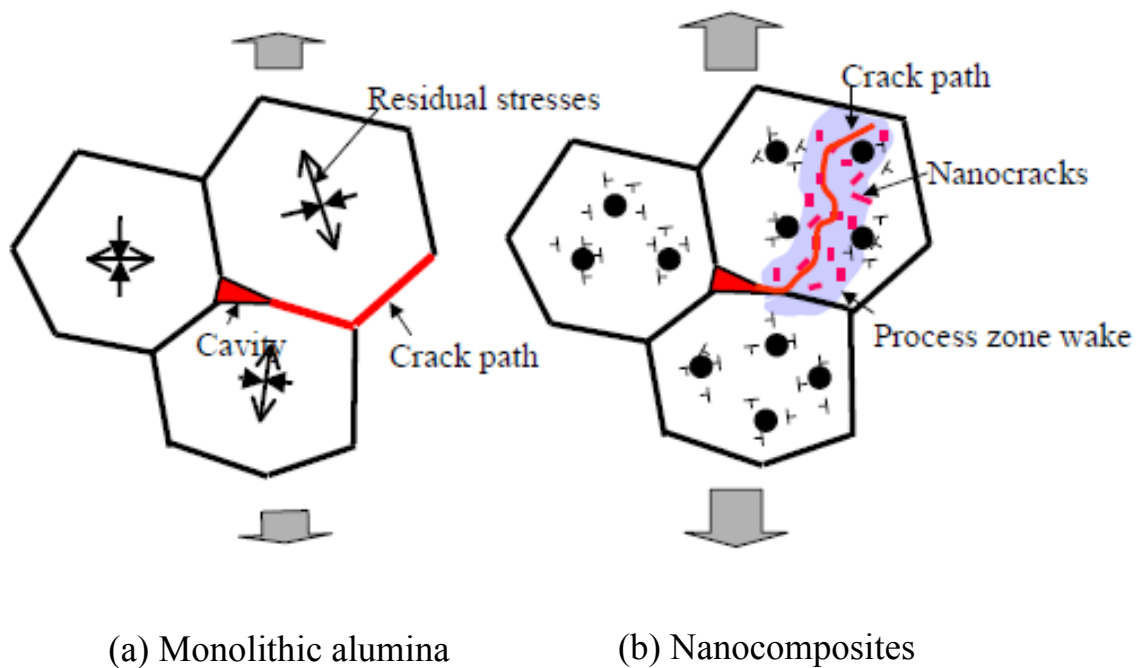


Fig.3-1 Schematic of the strengthening and toughening mechanisms in nanocomposites.

従って、その残留応力により第二相粒子のまわりに転位が生成し、それによって加熱後アルミナ粒子に潜在したとみられる残留応力は消失する。このことから、強度の低下をもたらした原因と考えられていたアルミナ焼結体内の残留応力が消失し、その分だけ破壊強度はアルミナ単体の場合よりも向上する。また、生成した $\alpha$ -アルミナの粒子内の転位は室温では不動転位となる<sup>8)</sup>ため、最弱欠陥から主き裂が伝播する場合、主き裂先端の高い応力場と転位のまわりの小さな応力集中との相乗効果によって微小なき裂（ナノき裂）の発生の起点となり、主き裂

がその生成したナノき裂を連結するように伸展することから、ナノ複合材料は粒内破壊になる。また、ナノき裂が多数できることによって主き裂先端の臨界損傷域（損傷域）寸法は大きくなり、破壊靱性は向上する<sup>7)</sup>。このように、ナノ粒子を分散させたアルミナを作製し、破壊強度および靱性値を測定することで、IGBTモジュールの基板に用いるために必要な機械的特性を有するのか評価を行う。さらに、導電性が大きい、金属粒子を絶縁体の内部に分散させることから、IGBTモジュールに必要な絶縁耐圧特性がどのように変化するかも評価する必要がある。加えて、一般的に熱伝導率を下げる不純物を複合化するため、分散させるナノ粒子が熱伝導特性に与える影響についても合わせて評価する必要がある。

### 3.3 粒子配向制御機構

一般に、セラミックス多結晶体中の各結晶粒子の結晶軸は通常、無秩序に配列しており、焼結体全体としては等方的な電氣的、磁氣的あるいは力学的性質を示す。しかし、何らかの方法で各粒子の結晶軸の配列を制御し、特定の方向に揃えることができれば、通常の焼結体とは異なった性質、特に結晶の方位に関連する高い機能を発現させることができようになる。粒子を配向させる手法としては、加熱中に電界を加えるなど、特殊な装置を用いる場合もあるが、一般には平板状や針状などの異方性の大きな結晶粒子を配向制御して成形し、常圧あるいは加圧しながら焼結する方法と、単成分あるいは多成分を有するセラミックス試料を高温で加熱し、融液状態から一方向に冷却することで成長結晶粒子を揃える一方向

凝固法に大別される。

前者では、ろ過成形、鑄込み成形、テープ成形、押し出し成形、あるいは圧延などにより粉末中の粒子を配向させ、さらに配向度の向上と緻密化のために、ホットプレス等による加圧焼結が行われている。また、配向性粒子を適当な有機分散剤で調製したスラリーから、ドクターブレード法やテープキャスト法などにより薄板状のシート成形体を作製し、それを積層してバルク化が行われている。この場合の粒子の配向度は、成形時の圧力や成形体の厚さに依存する。成形および焼結時の圧力が高いほど、また成形体の厚さが薄いほど配向度は向上する。例えば、六方晶系の  $ab$  面に粒子が発達した、すなわち板状粒子からなり、それが一方向に並んだ微細組織をもつ焼結体の強度は異方性を示すことが知られている。等方的な焼結体に比べ、結晶粒子が  $ab$  面に発達した（広がった）板状粒子が  $ab$  面方向に配向している焼結体の場合、 $ab$  面に直角方向の強度は配向度の増加とともに増大し、他方  $ab$  面に平行方向の強度は低下する。破壊靱性は、 $ab$  面に垂直な方向からの荷重に対する破壊靱性は平行な方向からの荷重の場合よりも高くなる。また、熱伝導率においては、 $ab$  面に平行方向の熱伝導率が向上するとの報告があり<sup>10)</sup>、微細粒子を配向させたアルミナを作製できれば、破壊強度や破壊靱性を制御でき、IGBT モジュールの要求性能を満足させる特性を発現する可能性がある。

一方、凝固法には帯域溶融法、結晶引き上げ法、ブリッジマン法、その他温度勾配付除冷法などがある。融液から単純にある単一成分の組成物が凝固する場合、

あるいはその近傍での組成では、伸張方向が特定の結晶学的方向に揃った一種の配向性多結晶体が得られる。融液の組成が共晶組成あるいはその近傍の組成の場合には、2種類の薄板状結晶が交互に平行に並ぶか、あるいは針状結晶が別の結晶中に平行に並んだ配向性多結晶体が得られることがある。凝固体の組成は、融液の組成、温度勾配、凝固速度などの条件によって影響される。しかし、一般にセラミックスの融点は高く、配向性の微細粒子からなる多結晶体を作製するためには、高い冷却技術と高いエネルギーが要るために一般的ではない。

### 3.4 絶縁耐圧と機械強度特性の関係

絶縁耐圧と破壊靱性との関係は、鈴木ら<sup>11)</sup>により報告されている。彼らは、固体絶縁体表面および内部に存在する亀裂上の欠陥近傍の電界集中について破壊力学との相似性の検討を実施し、電界拡大係数  $M$  を次式 3-1 により定義した。

$$M \equiv Y_M E_0 \sqrt{a} \quad (3-1)$$

ここで、 $Y_M$  は電極の形状と境界条件により決定される形状パラメータ、 $E_0$  は無限遠方にある一様電界、 $a$  は扁平電極の代表寸法である。

一方、応力拡大係数  $K_I$  は次式 3-2 にて示される。

$$K_I = Y_k \sigma \sqrt{a} \quad (3-2)$$

ここで  $Y_k$  は応力拡大係数に関する形状パラメータ、 $\sigma$  は無限遠応力、 $a$  は亀裂の代表寸法である。

ここに鈴木ら<sup>11)</sup> は  $Y_M$  と  $Y_k$  の関係を式 3-3 に提案している。



$$Y_k / Y_M = \sqrt{2\pi} \quad (3-3)$$

式 3-1、式 3-2 および式 3-3 から、応力拡大係数  $K_I$  と電界拡大係数  $M$  との間には式 3-4 の関係が成り立つ。

$$K_I \propto M \quad (3-4)$$

つまり、高靱性および高強度を持つセラミックスは高絶縁耐圧を持つとの関係を導くことができる。つまり IGBT モジュールに用いるセラミックスにおいて絶縁耐圧の向上には、高靱化、および高強度化が重要であることがわかった。

### 3.5 まとめ

本章では、IGBT モジュールに用いるセラミックス基板のアルミナの機械的特性を向上させるために、その微細組織を制御する方法について、主に 2 つの方法を検討した。

1) ナノ粒子分散アルミナ強化複合材料において、これまでに研究されたナノ粒子強化機構から、IGBT モジュールの性能の向上に役立つ微細組織であると判断された。破壊強度特性以外に、IGBT として実際に使用するためには、熱伝導特性および絶縁耐圧など、あらたな特性に関する評価が同時に必要である。

2) 粒子配向アルミナ焼結体は、機械的特性、とくに破壊靱性の向上に効果があると期待される。しかし、熱伝導特性および絶縁耐圧特性については未知であり、

IGBT モジュールとして必要とされる高い熱伝導率および絶縁耐圧特性が得られるのか、評価する必要がある。

3)破壊靱性の向上が、同時に絶縁耐圧を向上させることの可能性がある。

#### 参考文献

- 1)Y.Nishimura, K.Oonishi, A.Morozumi, E. Mochizuki, and Y.Takahashi.,*Proc of ISPSD.2005*, pp.79-82(2005).
- 2)Y.Nishimura, K.Oonishi, and, E. Mochizuki., *FUJI ELECTRIC REVIEW.52*, pp.58 (2006).
- 3)K.Niihara., *J.Ceram.Soc Japan*, **99**, pp.974-982 (1991).
- 4)J.Zhao, L.C.Steans, M.P.Harmer, H.M.Chan,G.A. Miller and R.F.Cook, *J.Am. Ceram.Soc.*,**76**,503-10(1993).
- 5)C.E.Borsa, S.Jiao, R.I.Todd and R.J.Brook, *J.Microscopy* (Oxford, United Kingdom),**177**(3), pp305-12(1995).
- 6) H.Kondo, T.Sekino, N.Tanaka, T.Nakayama, T.Kusunose, and K.Niihara, *J.Am. Ceram.Soc.*,, **88**, pp1468-1473(2005).
- 7) H.Awaji, S-M.Choi, and E.Yagi, *MECHANICS OF MATERIALS.*,**34**, pp.411-422 (2002).
- 8) K. P. D. Lagerlöf, A. H. Heuer, J. Castaing, J. P. Rivère, and T. E. Mitchell, *J.Am. Ceram.Soc.*,**77**,pp385-397 (1994).

9) S-M. Choi and H. Awaji, Science and Technology of Advanced Materials, pp2-10.(2005).

10) Y.Okamoto,N.Hirosaki,M.Ando,F.Munakata,Y.Akimune, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **105**, 631-633(1997) .

11) Y. Suzuki, Y. Matsuo, K. Yasuda and S. Kimura., *J. Ceram. Soc. Japan*, **100**, 59-65 (1992).

## 第4章 Ni ナノ粒子分散アルミナ基板の作製と特性評価

### 4.1 緒言

第3章において、ナノ粒子分散アルミナの機械的特性の強化機構について述べた。これらのナノ複合材料は、アルミナセラミックスにナノサイズの金属粒子が分散した構造を有している。そのためナノ粒子分散複合材料のマクロ物性値は第二相のナノ粒子の大きさやその量、さらにはその存在箇所の影響を受けることが予想される。一般のセラミックス複合材料において強度および靱性値については、第二相の添加量の影響を受けるという研究報告がある<sup>1)3)</sup>。また、熱伝導率と熱膨張率は、添加した金属粒子の影響を受けることが報告されている<sup>4),5)</sup>。しかし、ナノ粒子第二相の存在箇所が、例えば主相（アルミナ）の粒内に存在するのか、あるいは粒界に存在するのかが、複合材のマクロ物性におよぼす影響については明確になっていない。

本章では、実際に溶液浸漬法<sup>6)</sup>を用いて Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料を作製した。その場合に、出発原料のアルミナの種類、およびナノサイズのニッケル(Ni)粒子を種々の割合で添加した試料を作製した。また、同一の Ni 添加量に対し、Ni ナノ粒子の存在箇所を変化させたアルミナ基ナノ複合材料を作製した。それらの機械的特性の評価を行い、Ni ナノ粒子の添加量およびその存在場所が機械的特性におよぼす影響について明らかにした。さらに、セラミックス絶縁回路基板に用いる場合に重要な特性である熱特性についても評価した。加えて、導電性をもつナノ金属粒子をセラミックスに添加することにより、セラミックス基板の絶縁耐圧の低下が懸念される。絶縁体に対して十分に小さい導電体粒子を添加した場合に

は、粒子の連続性が担持されるというパーコレーション理論<sup>7)</sup>により、僅かな添加量によっても絶縁性が保てなくなる可能性がある。そこで、ナノサイズの Ni 粒子を添加したアルミナ基ナノ複合材料の絶縁耐圧試験による電氣的評価を行った。

## 4.2.実験方法

### 4.2.1 原料の調製

溶液浸漬法<sup>6)</sup>により Ni ナノ粒子分散アルミナ基複合体を作製した。出発原料は、マトリックスとして市販の  $\gamma$ -アルミナ(AKP-G015、住友化学、純度 99.99%、平均凝集粒径 2.6  $\mu$ m)、および  $\alpha$ -アルミナ(AKP-53、住友化学、平均粒径 0.3 $\mu$ m)の二種類を用いた。分散相であるナノサイズの Ni 粒子は Ni 硝酸塩(キシダ科学、純度 98.0%)を出発原料とした。Ni 粒子の添加量は、アルミナ量に対して 1,3,5vol%となるように Ni 硝酸塩溶液の濃度を調整した。まず、Ni 硝酸塩溶液にマトリックス相となるアルミナを加え、スターラーを用い 30 分間かく拌後、減圧を 30 分間行い、Ni 硝酸塩の水溶液をアルミナ粒子間および中に浸漬させる処理を行った。その後、試料を乾燥機中 70°C で 48 時間乾燥させた後、アルミナ乳鉢で粉砕した。粉砕後の粉末試料を、大気中 500°C で 2 h 保持して仮焼した後、さらに水素雰囲気中(100%) 800°C で 2h 保持することで、Ni 酸化物から Ni 金属に還元し、アルミナ/Ni の出発混合粉末を得た。 $\gamma$ -アルミナを原料に用いた試料は、加熱中  $\gamma$ -アルミナの  $\alpha$  相への転移の促進させるために、種結晶 (シード) として  $\alpha$ -アルミナ(タイミクロン：大明化学工業製)を 10mass%加え、ボールミルにて湿式混合し、その後混合試料を乾燥し出発原料とした。得られたアルミナ/Ni の出発混合出発粉末を黒鉛製ダイス (直径 20mm) に充填し、30MPa の圧力下、真空中でパ

ルス通電法 (PECS:パルス通電焼結装置 住友石炭鉱業製 SPS-515S) により緻密化処理 (焼結) を行った。試料の加熱温度は、加熱課程中におけるアルミナの相転移や緻密化の割合を確認するため、1000°C、1100°C、1200°Cおよび 1350°Cとし、一軸加圧荷重は 30MPa とした。緻密化の程度 (試料の収縮量) は、各温度における焼結装置の黒鉛ダイスの変位量から算出した。また多結晶アルミナは  $\alpha$ -アルミナ粒子 (AKP-53、住友化学、平均粒径 0.3  $\mu\text{m}$ 、TM-D、大明化学、平均粒径 0.14  $\mu\text{m}$ ) 粉末の成形品を黒鉛製ダイス (直径 20mm) に充填し、30MPa の圧力下、真空中、1350°Cでパルス通電法 (PECS:パルス通電焼結装置 住友石炭鉱業製 SPS-515S) により緻密化処理 (焼結) を行った。

#### 4.2.2 構成結晶相の同定および微細組織観察

アルミナ基ナノ複合体試料の各焼成温度における結晶相の同定は、粉末 X 線回折分析 (XRD) 装置 (島津製作所製 XD-D1) を用いて行った。また、加熱後の試料のナノサイズの Ni 粒子の分散状態や、粒内に発生するとみられる転位およびその生成状態を観察するために、試料の薄片を作製し、TEM (Transmission Electron Microscope : JEM-3010 日本電子) により観察した。またアルミナ基ナノ複合体試料の破断面の微細組織を SEM (Scanning Electron Microscope : JSM-5200 日本電子) により観察し、その破壊モードを検討した。

#### 4.2.3 相対密度の測定および機械特性の評価

作製された Ni ナノ分散アルミナ複合体の密度は、アルキメデス法によりかさ密度を測定した。真密度は、ピクノメータ法により求め、両者から相対密度を算出した。作製された Ni

ナノ分散アルミナ複合体より  $2 \times 2 \times 10$  mm の試験片を切り出し、三点曲げによる破壊強度試験を行った。装置はオートグラフ (AGS-5kND 島津製作所) を使用し、スパン間距離は 8mm、クロスヘッドスピードは 0.5mm/min の条件で行った。破壊靱性値の測定は、 $2 \times 2 \times 10$  mm の試験片中央に V ノッチ (深さ 1mm、先端半径  $20 \mu\text{m}$ ) を加工して入れ SEVNB 法により三点曲げ破壊靱性試験を行った。装置は強度試験と同じオートグラフ (AGS-5kND 島津製作所) を使用し、スパン間距離は 8mm、クロスヘッドスピードは 0.5mm/min の条件で行った。得られた結果を次式、若井らの式<sup>8)</sup>を用い破壊靱性値( $K_{IC}$ )を算出した。

$$K_{IC} = \frac{3PS}{2BW^{3/2}} Y(\alpha) \sqrt{a} \quad (4-1)$$

ここで  $P$  は破壊荷重、 $S$  は下部支点間距離、 $B$  は試験片の幅、 $W$  は試験片の高さ  $\alpha$  は  $a/W$  で予き裂長さを  $a$  とするときのき裂長さ比、 $Y(a)$  は形状係数である。

$S/W = 4.0$  の場合 (式の適用範囲は  $0 \leq \alpha \leq 1$ )、形状係数  $Y(a)$  は式 4-2 から求めた。

$$Y(\alpha) = \frac{1.99 - \alpha(1 - \alpha)(2.15 - 3.93\alpha + 2.7\alpha^2)}{(1 + 2\alpha)(1 - \alpha)^{3/2}} \quad (4-2)$$

#### 4.2.4 熱特性の評価

Ni ナノ粒子分散アルミナ基複合体試料から、直径 5mm、厚さ 10mm の円柱状試験片を切り出し熱膨張係数の測定 (JIS R 1618) を行った。測定条件は、Ar 雰囲気中にて、測定温度は室温から 300°C までとし、昇温速度は 10°C/min とした。測定装置は、熱機械分析装置(島

津製作所 TMA-50H)を使用した。

熱伝導率の測定法としては、レーザーフラッシュ法(JIS R 1611)により常温における比熱および熱拡散率を測定し、次式 4-3 により熱伝導率を求めた。

$$\lambda = \rho \cdot C \cdot k \quad (4-3)$$

ここで  $\lambda$  は試験片の熱伝導率、 $\rho$  は試験片の密度、 $C$  は試験片の比熱、 $k$  は試験片の熱拡散率である。測定装置には、レーザーフラッシュ装置(TC-7000、真空理工)を使用した。試験片は厚さ 1mm、直径 10mm の円板状試験片を用いた。試験片表面のレーザー吸収を安定化させるため、比熱測定用には試験片表面にグラッシーカーボンを貼付し、熱拡散率測定用には試験片の両表面にカーボンスプレーによる黒色化処理を行った。

#### 4.2.5 絶縁耐圧の評価

Ni ナノ粒子分散アルミナ基複合材体から熱伝導率測定用試験片とおなじ厚さ 1mm、直径 10mm の円板試験片を切り出し、表裏に電極をつけて絶縁耐圧の測定を行った。絶縁耐圧測定は、試験片を絶縁油(FC-40:SUMITOMO 3M Co. Ltd.、Japan)に浸し、高電圧発生装置(SEKISUI 製)を用い 100V/s の昇圧速度にて AC 電圧を印加、絶縁破壊時の電圧を測定した。漏れ電流が 2 mA となった電圧値を読み取り、単位厚み当たりの換算値を絶縁耐圧値とした。

### 4.3 結果と考察

#### 4.3.1 Ni ナノ粒子の存在箇所を変化させたアルミナ複合材料の作製

Ni 粒子を粒界か粒内に制御して分散させた複合材料を作製するため、出発原料として  $\gamma$ -



アルミナと $\alpha$ -アルミナを用いた。出発原料粉末を PECS 装置のカーボンダイ中にセットして加熱し、焼成時における温度と収縮量の関係、および結晶相および粒径の変化から、Ni ナノ粒子の存在個所を制御する因子の特定を行った。

図 4-1 に、焼成時の各温度における試料の収縮量を示した。 $\alpha$ -アルミナを出発原料とした試料は約 850°C から緩やかに収縮したことから、緻密化（焼結）が緩やかに進んだことが予想される。一方、 $\gamma$ -アルミナを出発原料とした場合、約 900°C ~ 1000°C の間で急激に収縮していたことから、この温度で急激に緻密化（焼結）が進んだとみられた。

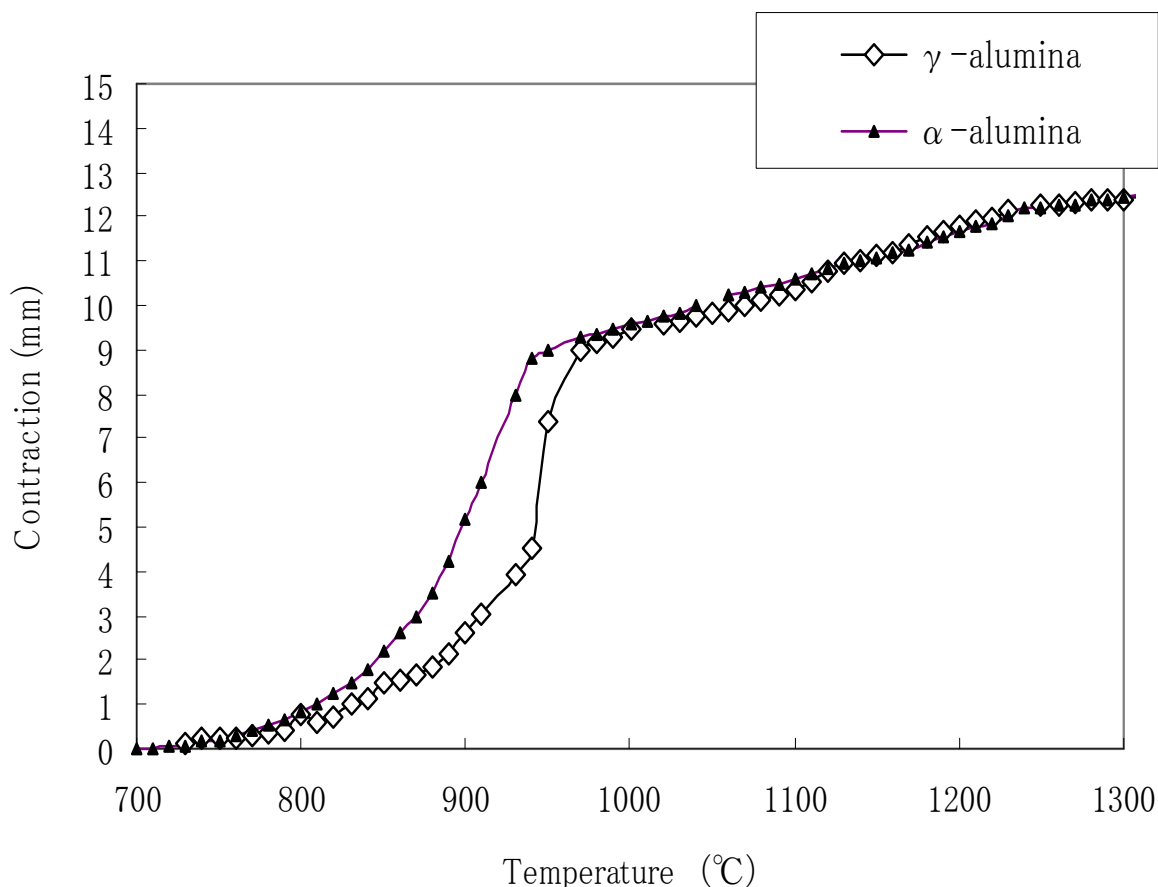


Fig.4-1 Change of the contraction with the sintering temperature

$\gamma$ -アルミナを出発原料とした試料における 900°Cからの急激な収縮を示した変化の要因を明らかにするため、960°C付近の温度で加熱した試料の結晶相の同定を行った。図 4-2 に、 $\gamma$ -アルミナ/1vol%Ni 添加ナノ複合粉末の室温から 1000°C、1100°C、および 1200°C で焼成した試料の X 線回折結果を示した。出発原料(a)では、 $\gamma$ -アルミナと種結晶である  $\alpha$ -アルミナのピークが検出された。1000°Cで加熱した試料(b)では $\gamma$ -アルミナが存在したが、 $\alpha$ -アルミナのピークが出発原料粉末と比較し若干大きくなった。1100°Cで加熱した試料(c)では $\gamma$ -アルミナはほとんど検出されなくなり、1200°Cで加熱した試料(d)では完全に $\gamma$ -アルミナは消失したとみられ、 $\alpha$ -アルミナのみとなった。Ni に関しては、添加量が 1vol%と少なかったため、本 X 線回折装置の分析限界以下で、検出できなかった。

また、1000°Cの加熱温度で、一軸加圧荷重が 30MPa で作製した試料を TEM と EDX 元素分析装置で、観察および分析した結果を図 4-3 に示す。図 4-3(a)から、X 線回折で検出された  $\gamma$ -アルミナ相と同定された粒子は柱状の形態を有することが観察され、その粒子の凝集体内に Ni 粒子が分散していることが分かった。同図(b)から、種結晶として添加した  $\alpha$ -アルミナの周辺の  $\gamma$ -アルミナが相変態を起こしたとみられ、(c)の EDX 結果より、 $\alpha$ -化しているアルミナの粒内に Ni が存在していた。

図 4-4 に、出発原料として  $\gamma$ -アルミナと  $\alpha$ -アルミナを用い 1350°Cの加熱温度で、一軸加圧荷重が 30MPa で作製した試料の TEM 観察を行い Ni 粒子の分散状況を確認した。

(a)  $\alpha$ -アルミナを用いた Ni を 1vol%添加した試料は Ni 粒子が主に粒界に散在していた。

(b)  $\gamma$ -アルミナを用い Ni を 1vol%添加した試料は Ni 粒子がアルミナ粒内に存在した。

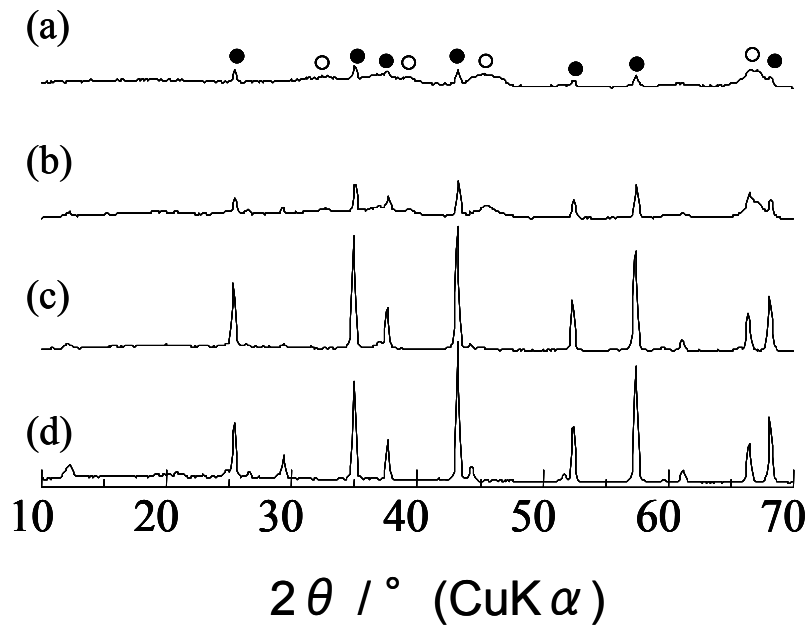


Fig.4-2 XRD patterns of alumina/1vol%Ni nanocomposite.(a)Powder,  
 (b)1000°C,(c)1100°C,(d)1200°C ● $\alpha$  - alumina ○ $\gamma$ -alumina

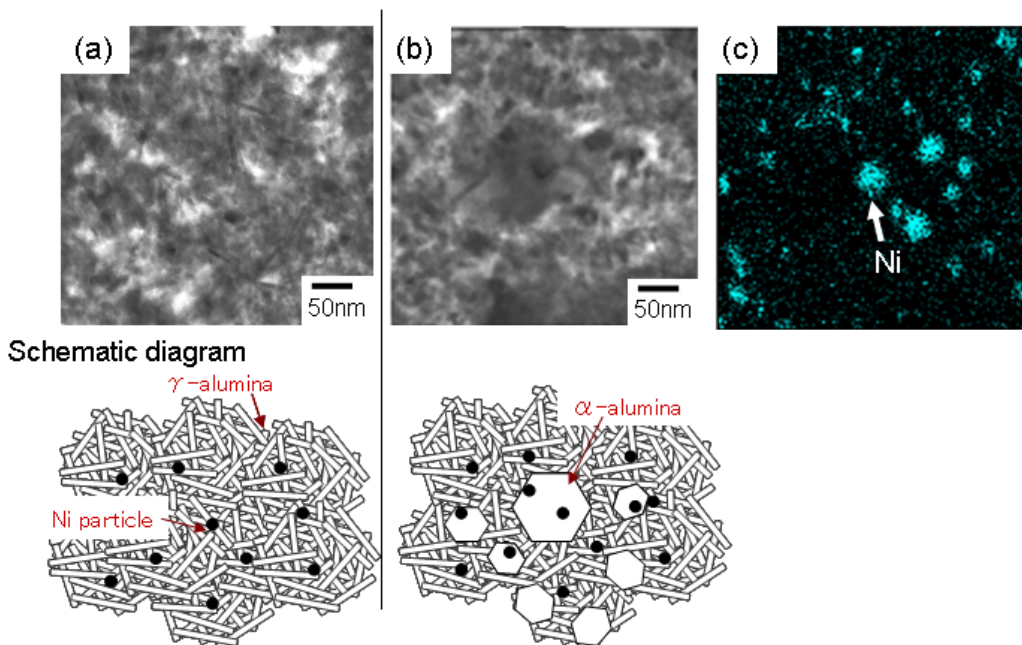


Fig.4-3 TEM and EDX photographs of alumina/1vol% Ni nanocomposites sintered at 1000°C by PECS method. (a)Ni particles within  $\gamma$ -alumina (b)Phase transformation from  $\gamma$ -alumina to  $\alpha$ -alumina (c)EDX analysis of (b)

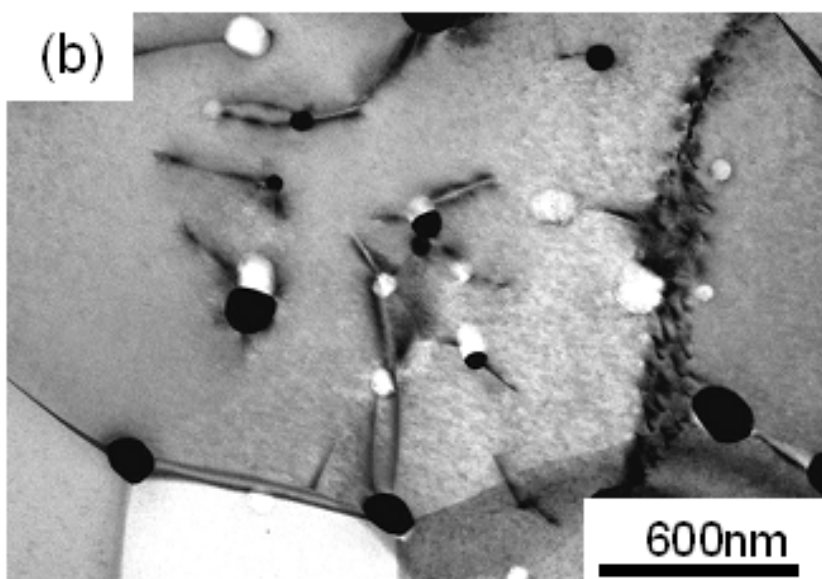
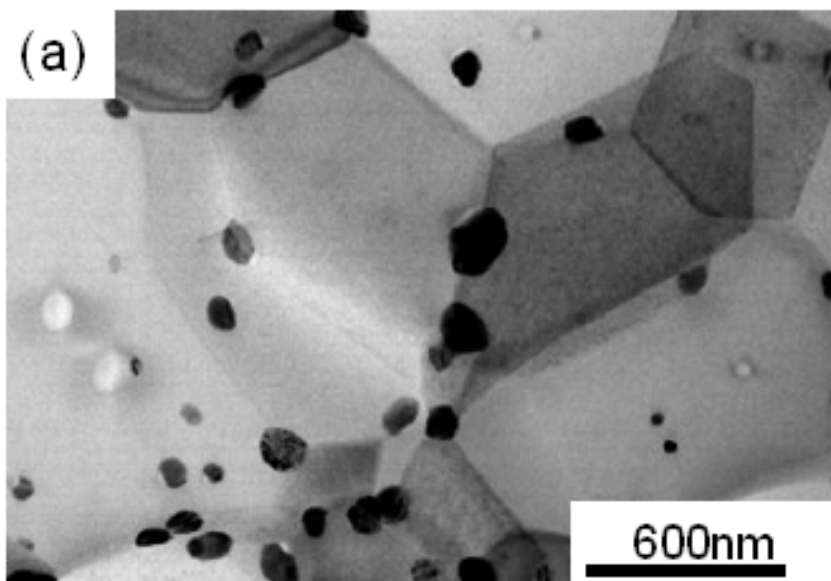


Fig.4-4 TEM photographs of alumina/Ni nanocomposites sintered at 1350°C under 30MPa by PECS method. (a) $\alpha$ -alumina/1 vol% Ni (b) $\gamma$ -alumina/1 vol% Ni

以上の結果から、 $\gamma$ -アルミナを用いた場合、焼成中 900°Cから 1000°Cにおいて  $\gamma$ -アルミナから  $\alpha$ -アルミナへ相転位し、この 900°Cから 1000°Cの温度は PECS 装置を用いた場合の  $\alpha$ -アルミナの緻密化（焼結）開始温度以上であるため、転移すると同時に急激に  $\alpha$ -アルミナ粒子が成長したために、Ni 粒子がアルミナ粒子内部に取り込まれたと考えられる。一方、 $\alpha$ -アルミナを出発原料とした場合、 $\gamma$ -アルミナと比べて緻密化（焼結）開始温度が低温で、緻密化（焼結）はより低い温度から徐々に進行するため、Ni 粒子をアルミナの粒子内に取り込めず、そのため多くの場合、Ni 粒子はアルミナの粒界に存在することになったと考えられた。次に  $\gamma$ -アルミナを用いた際の Ni 粒子の添加量が Ni 粒子の分散状態に及ぼす影響を調査した。Ni の添加量 1、5vol%の微細組織観察結果を図 4-5 に示す。Ni 粒子の添加量が 5vol%の試料において Ni 粒子は主に粒界に存在した。Ni ナノ粒子の添加量を 1 から 5vol%にすると、平均 Ni 粒子径は、約 100nm から約 500nm に変化していた。Ni 粒子の添加量の増化により焼結過程中に Ni 粒子が凝集を起こし、その結果 Ni 粒子をアルミナの粒子内に取り込めずに粒界に存在するようになったと考えた。以上のように異なるアルミナ原料を出発原料として用いることで、分散させる Ni ナノ粒子をアルミナの粒界と粒内に意図的に配置した試料を作製することができた。

#### 4.3.2 機械特性評価

粒内および粒界に Ni ナノ粒子を分散させた試料を作製した。表 4-1 は、Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材を作製する場合に添加した Ni 粒子の添加量に対し、試料に含有されている Ni 量を蛍光 X 線を用いて分析した結果を示す。出発原料のアルミナの種類に関わら

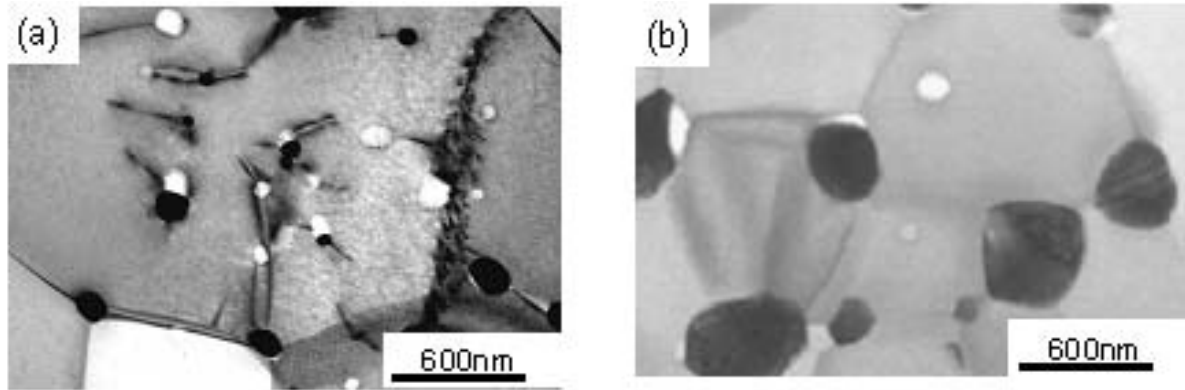


Fig.4-5 TEM photographs of alumina/Ni nanocomposites sintered at 1350°C under 30MPa by PECS method. (a) $\alpha$ -alumina/1vol% Ni (b) $\gamma$ -alumina/5vol% Ni

ず、いずれも添加量とほぼ等しい Ni 量が含まれていることが分かった。また、表 4-2 にアルミナの単体および $\gamma$ -アルミナおよび $\alpha$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加し、1350°C、30MPa で焼成した試料のかさ密度、破壊強度、および破壊靱性の測定結果を示す。かさ密度は 1vol%の Ni を添加した試料においては、アルミナ単体とほぼ変わらない値が得られた。また、作製された Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材全ての試料の相対密度は 99%以上で、閉気孔がほとんど含まれない緻密焼結体を得られた。3 点曲げ強度試験の結果は、 $\gamma$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料の場合では 900MPa であり、この値は多結晶アルミナの 757MPa に比べて高く、ナノ粒子分散効果が現れたとみられる。一方、アルミナ単体と比較し $\alpha$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料試料では 730MPa であり強度向上がみられなかった。SEVNB 法で測定した破壊靱性については、 $\gamma$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加したに粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料において 4.86MPa $\cdot$ m<sup>1/2</sup>と多結晶アルミナの 4.00MPa $\cdot$ m<sup>1/2</sup>より高い値を示したが、 $\alpha$ -アルミナに

1vol%のNiを添加した粒界Niナノ粒子分散アルミナ複合体試料においては  $3.43 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$

と破壊靱性値の向上はみられなかった。

Table4-1 Ni contents in several samples

Ni contents	$\alpha$ -alumina	$\gamma$ -alumina
1 vol%	1.2	1.3
3 vol%	3.1	3.2
5 vol%	5.1	4.9

Table4-2 Mechanical properties of alumina/nickel nanocomposites

	Bulk Density	Fracture Strength	Fracture Toughness
	g/cc	MPa	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$
alumina	3.9	757	4.00
$\alpha$ -alumina + 1vol%Ni	3.9	730	3.43
$\gamma$ -alumina + 1vol%Ni	3.9	900	4.86

#### 4.3.3 粒界および粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料の破壊モード

Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材において、Ni 粒子が存在する箇所がセラミックスの様々な特性に及ぼす。Ni を 1vol% 添加した試料の破壊強度試験後の破面の微細組織を SEM により観察し、その破壊モードを検討した。図 4-6 は、出発原料を  $\alpha$ -アルミナ(a)、および  $\gamma$ -アルミナ(b)とし、粒界及び粒内ナノ粒子分散アルミナを作製した試料の破面を SEM により観察した結果である。 $\gamma$ -アルミナを用い粒内ナノ粒子分散アルミナとした場合、粒内破壊が主に観察されたが、 $\alpha$ -アルミナを用い粒界ナノ粒子分散アルミナを作製した場合は一部粒内破壊が見られたが、主に粒界破壊が観察された。更に、図 4-4 の TEM 観察結果より(a)  $\alpha$ -アルミナを用いた試料は、粒子破面に転移は観察されなかった。(b)  $\gamma$ -アルミナを用いた試料は Ni 粒子周囲に転位が発生していることが分かった。このことから、 $\gamma$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料は、アルミナの粒子内に分散している Ni が転位を発生させ、粒子内の残留応力を緩和し破壊強度や破壊靱性が向上したと考えられる。一方、 $\alpha$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料体の場合は、粒内に転移は観察されず、アルミナ単体と比較し破壊強度および破壊靱性ともにほぼ同じ値を示した。これはマトリックス粒内に存在する Ni の量が  $\gamma$ -アルミナと比較して少ない為、破壊強度や破壊靱性の向上に至らなかったと考えられる。

以上の結果より破壊強度、および破壊靱性において、ナノ粒子がアルミナマトリックス内に存在することが双方の向上に効果的であることがわかった。



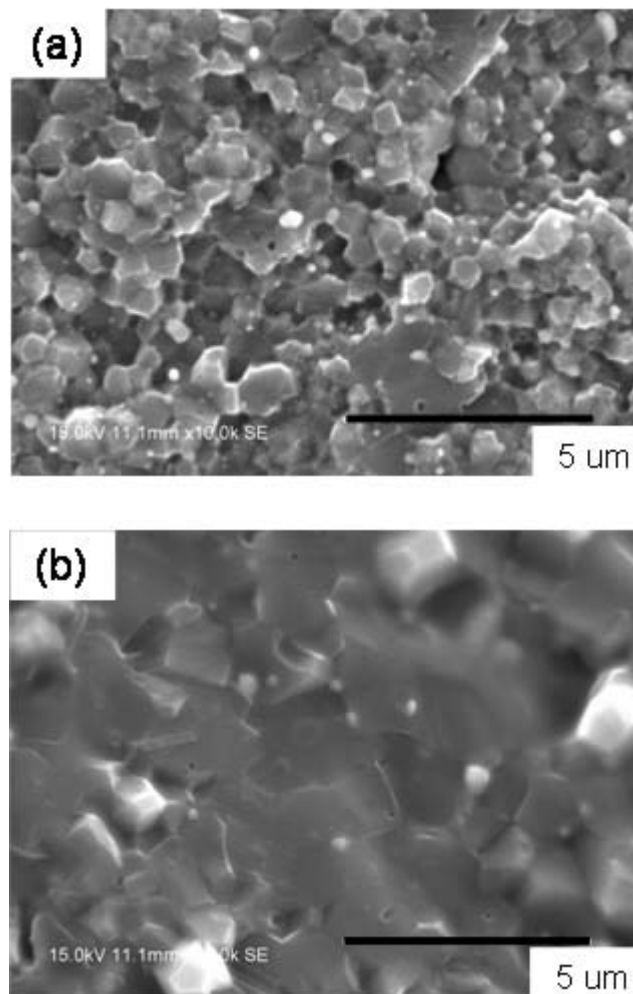


Fig.4-6 SEM photographs of fracture surface of alumina/Ni nanocomposites sintered at 1350°C under 30MPa by PECS method.(a) $\alpha$ -alumina/1vol% Ni (b) $\gamma$ -alumina/1vol% Ni

#### 4.3.4 熱特性

セラミックスを絶縁回路基板に用いる場合、セラミックスは放熱経路となる為、できる限り熱伝導率が高いほうが望ましい。またセラミックスと銅基板の熱膨張差による破壊を

抑えるため、熱膨張係数は回路材料である銅に近いほうが良い。Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料の熱膨張特性を評価した。複合材の熱膨張係数は次式の複合則（加算則）<sup>9)</sup>にて示される。

$$TE_{com} = TE_f \cdot V_f + TE_m(1 - V_f) \quad \text{式(4-4)}$$

ここで  $TE_{com}$  は複合材の熱膨張係数、 $TE_m$  はマトリックスの熱膨張係数、 $TE_f$  は第二相の熱膨張係数、 $V_f$  は第二相の体積含有率である。図 4-7 に、Ni ナノ粒子を分散したアルミナ複合体試料の Ni 添加量と熱膨張係数の関係を示す。図中破線は複合則の上限（加算則）<sup>9)</sup>を示す。アルミナ単味の試料と比較して、 $\gamma$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体の場合、熱膨張係数は増加し複合則の上限値を若干超えた。一方、 $\alpha$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料体試料においては熱膨張係数が低下した。以上の結果から、Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料の熱膨張係数に Ni の存在箇所が影響をおよぼす可能性があることが予想された。それは又、Ni ナノ粒子の存在箇所の違いが内部で発生する局所応力に影響を与えているのではないかと考えられた。そこでマトリックスと分散相間の熱膨張係数差に起因する局所応力( $\sigma$ )は Selsing のモデル<sup>10)</sup>が適用できる。Selsing のモデル式 4-5 で示される。

$$\sigma = \frac{(\alpha_m - \alpha_p) \times \Delta T}{\frac{1 + \nu_m}{2E_m} + \frac{1 - 2\nu_p}{E_p}} \quad (4-5)$$

ここで  $\alpha$ 、 $\nu$ 、 $E$  及び  $\Delta T$  はそれぞれ熱膨張係数、ポアソン比、ヤング率及び冷却過程での温度差であり、 $m$  及び  $p$  はそれぞれマトリックスと分散相の値を示す。式 4-4 を用いると、分散した Ni 粒子の周囲に発生する応力はアルミナ - Ni 系では、温度差  $\Delta T = 1330^\circ\text{C}$  と仮定

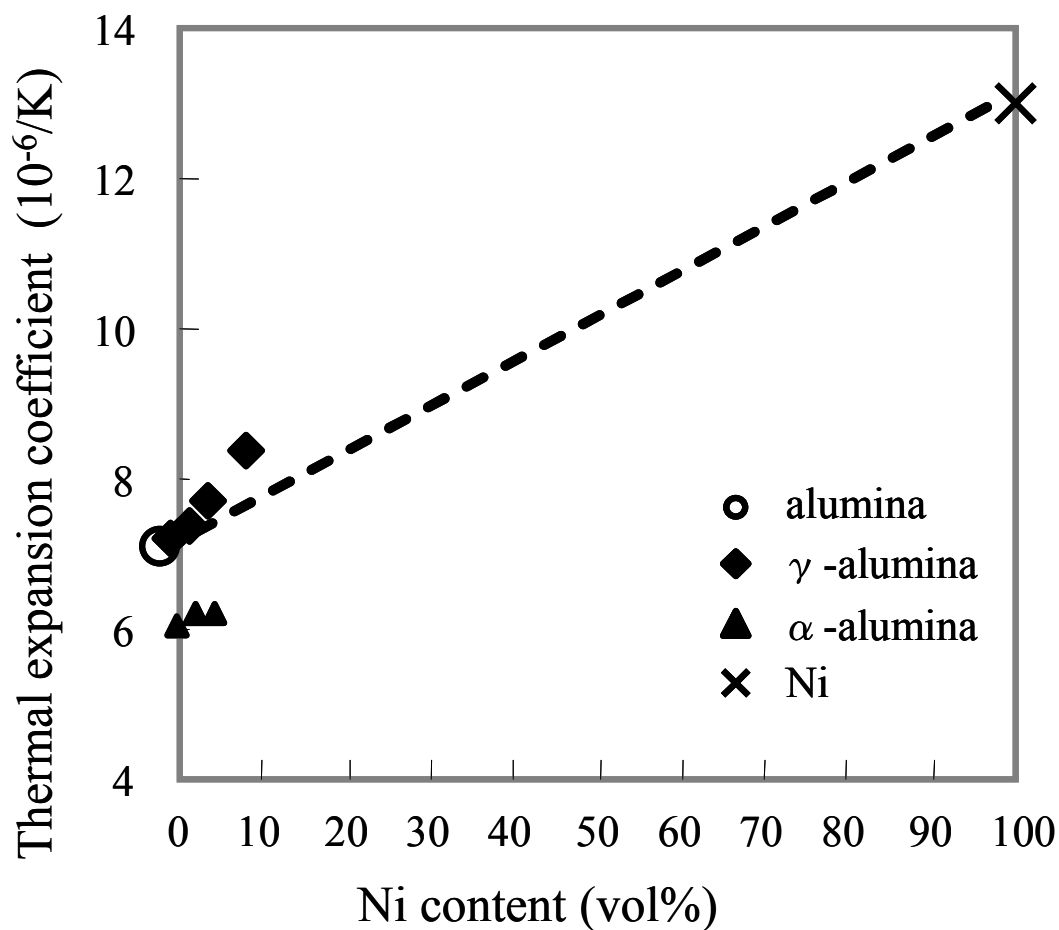


Fig.4-7 Relation between Ni content and thermal expansion of monolithic alumina and alumina/Ni nanocomposites.

すると、約 1900MPa の圧縮応力が発生していることとなる。図 4-8 に、Ni の存在箇所と残留応力の関係の模式図を示す。焼結後の一般的な多結晶アルミナ(a)の粒子内には残留応力が生じている。Ni ナノ粒子がアルミナ粒子内に存在する場合(b)には、この圧縮応力はアルミナ粒内の Ni との接合界面に発生するため、アルミナ粒子内に転位が生じるとみら

れる (図 4-4 (b))。結果、そのアルミナの焼結残留応力が低下し、拘束力が解放されて結果的に熱膨張係数が大きくなったと考えられる。そのため単結晶であるサファイアの線膨張係数(C 軸平行  $7.7 \times 10^{-6}/\text{K}(40 \sim 400^\circ\text{C})$ )に近い値を示した。一方、 $\alpha$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料体においては、アルミナ粒界に Ni が存在するため(c)、焼結時においてアルミナ粒子に発生する圧縮残留応力が増大し、拘束力が解放されずに熱膨張係数が多きくはならなかったと考えられる。

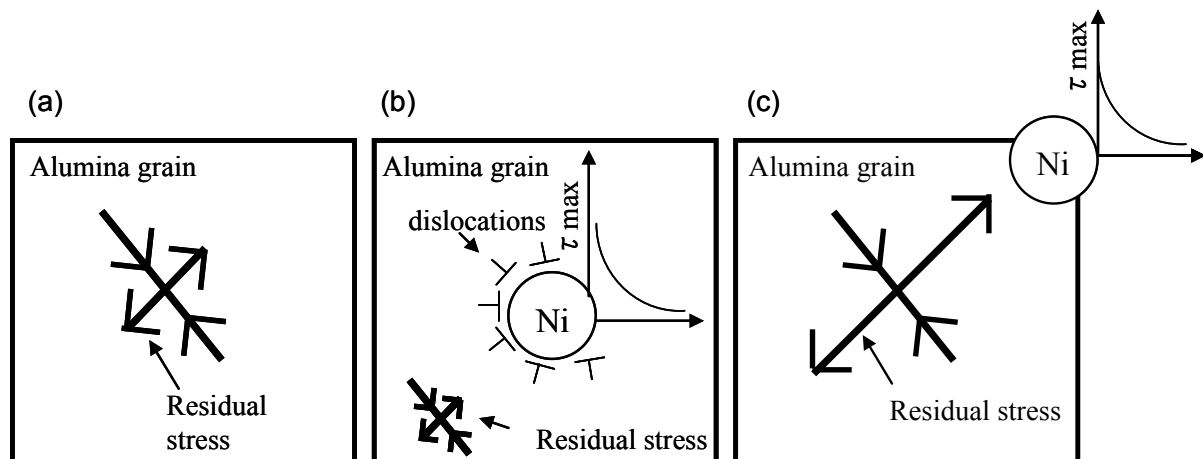


Fig. 4-8 Relation between residual stress and position of Ni particles (a)monolithic alumina (b)Ni exists within alumina grain (c)Ni existed within the alumina grain boundaries

次に、Ni ナノ粒子の存在が、アルミナ複合材料全体の熱伝導率に与える影響について考える。図 4-9 に、粒界および粒内に存在する Ni ナノ粒子の添加量に伴う熱伝導率の変化を示す。

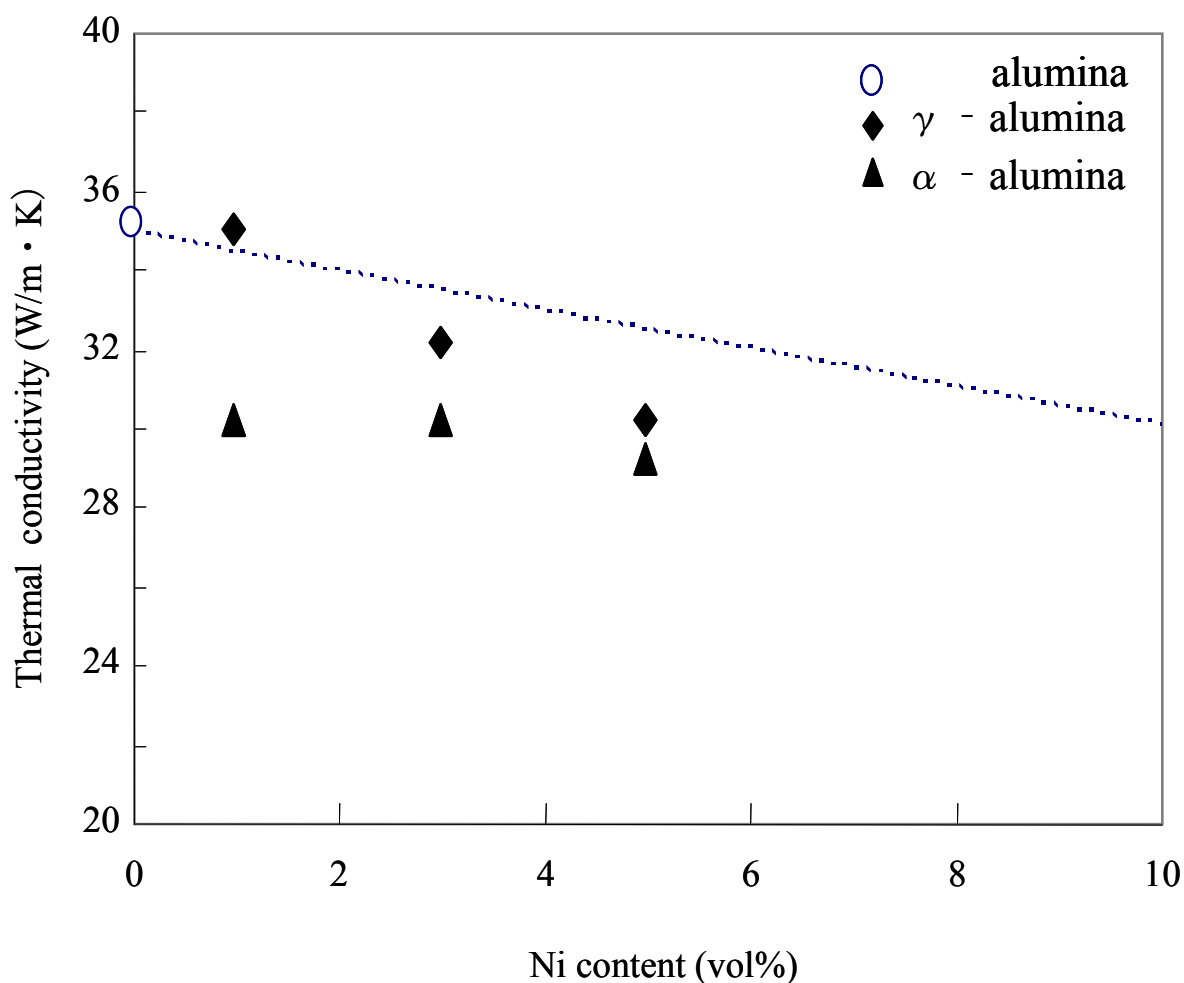


Fig.4-9 Relation between Ni content and thermal conductivity of alumina/Ni nanocomposites.

$\gamma$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ試料の熱伝導率は一般アルミナと同等であるが、粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ試料では低下した。一般に、複合材料の熱伝導率は、構成材料の熱伝導率、体積分率、および界面の状態によって決定される。Hassel man らは、2 相からなる粒子分散型複合材料の理論熱伝導率 ( $K$ ) として

式 4-5 を提唱した<sup>11)</sup>。

$$K = K_m \frac{2\left(\frac{K_d}{K_m} - \frac{K_d}{ahc} - 1\right)V_d + \frac{K_d}{K_m} + 2\frac{K_d}{ahc} + 2}{\left(1 - \frac{K_d}{K_m} + \frac{K_d}{ahc}\right)V_d + \frac{K_d}{K_m} + 2\frac{K_d}{ahc} + 2} \quad (4-6)$$

ここで  $K_m$  はマトリックスの熱伝導率、 $K_d$  は分散相の熱伝導率、 $V_d$  は分散相の体積分率、 $a$  は粒子半径、 $h c$  は界面での熱伝達に関する係数である。Ni ナノ粒子の添加量が 1 から 5vol% において、Ni の粒子径の大きさが熱伝導率に及ぼす影響について考察を行った。Ni ナノ粒子の添加量を 1 から 5vol% にすると、平均 Ni 粒子径の大きさは、約 100nm から約 500nm に変化した (図 4-5)。100nm から 500nm へ Ni の粒子サイズが大きくなった場合において、上記 4-5 式により算出された熱伝導率の差は 0.03W/mk であり、粒子径の大きさが熱伝導率に及ぼす影響は小さいことが分かった。図中破線にて、Ni 粒子径の大きさを 100nm とし、界面熱伝達係数を純 Ni の  $hc=3.5 \times 10^7$  とおいた場合の Ni の添加量と熱伝導率の関係を示す。 $\gamma$ -アルミナに Ni を 1vol% 添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体においては、Hassel man の理論熱伝導率を僅かに上回った。しかし Ni 添加量が多くなるのと共に Hassel man の理論熱伝導率より低い値となった。また  $\alpha$ -アルミナに Ni を 1vol% 添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料では、アルミナ単体より約 17% 熱伝導率が低下し、Hassel man の理論熱伝導率より低い値を示した。 $\gamma$ -アルミナおよび  $\alpha$ -アルミナに 1vol% の Ni を添加した試料の、即ち粒内および粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体の熱拡散率及び

比熱の測定結果を表 4-3 に示す。粒内および粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体において比熱はほぼアルミナと同じであった。一方、熱拡散率は、1vol%の Ni を添加した  $\gamma$ -アルミナにおいてはアルミナ単体に比べ大きな値をとった。 $\alpha$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体においてはアルミナ単体より小さかった。

Table4-3 Thermal Properties of monolithic alumina and alumina nanocomposites

sample	Specific Heat	Thermal Diffusivity
	$\times 10^3 \text{ J/kgK}$	$\times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
alumina	0.77	12.21
$\alpha$ - alumina 1vol%Ni	0.76	9.76
$\gamma$ - alumina 1vol%Ni	0.74	13.02

以上の結果から、粒内および粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体の熱伝導率の違いは、熱拡散率が律速となっていることが示唆された。セラミックス材料では、格子振動によるフォノン拡散が熱拡散率を支配する主因子である。フォノン拡散を阻害する要因としては、結晶中の転位と結晶に存在する残留応力が考えられる。結晶中に転位が多く存在すると、格子が調和振動を起こしづらくなってその振動が減衰するため、結果としてフォノンは散乱される<sup>12)</sup>。また格子への残留応力の増大は格子レベルでの歪を生じフォノン拡散を阻害する<sup>13)</sup>。 $\gamma$

γ-アルミナに 1vol%の Ni ナノ粒子を添加して作製した粒内ナノ粒子分散アルミナ複合材料試料は、アルミナ粒子内に転位が発生するとともに結晶粒の残留応力が低下している。γ-アルミナに 1vol%の Ni ナノ粒子を添加した試料の熱拡散率は、アルミナ単体に比べ大きな値をとっていることから、1vol%の Ni ナノ粒子を添加した試料は、粒子内の残留応力の低下が転位によるフォノン拡散の阻害より大きく、調和振動の減衰にいたらなかったためと考えられる。

#### 4.3.5 絶縁耐圧特性

図 4-10 に、Ni ナノ粒子の添加量と絶縁耐圧の関係を示す。γ-アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体は、多結晶アルミナが 16 k V に対し約 4%絶縁耐圧が低下した。一方、α-アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料においては、約 19%絶縁耐圧が低下した。アルミナ試料に電圧を印加すると漏れ電流が増加し、最終的に絶縁破壊が発生する<sup>14)15)</sup>。複合材料における電気的特性はパーコレーション理論により考察されている<sup>5)</sup>。絶縁体に導電性物質を添加した材料において、導電体のパーコレーションによる連結の閾値は、母相粒子/導電性粒子径の比により異なる。母相サイズに対し十分に小さな導電性粒子を添加した場合には、臨界体積が小さくなり少量の導電性物質添加によっても導電性を引き起こす。そのため十分に小さいナノサイズの Ni 粒子を添加する場合には、僅かな添加量によっても絶縁性が保てなくなる可能性がある<sup>16)</sup>。TEM 観察の結果より、1vol%の Ni ナノ粒子を添加した粒界および粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料のアルミナ粒子径の Ni 粒子径の比は共に約 15 : 1 であり、パーコレーション理論



から絶縁耐圧が低下する可能性が十分にある。しかし $\gamma$ -アルミナに 1vol%の Ni ナノ粒子を添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料においては、アルミナ粒子内に独立した粒子として Ni ナノ粒子が存在することから、パーコレーション理論が適用されず絶縁耐圧が低下しにくくなり、結果としてアルミナ単体と同程度の絶縁耐圧を確保できたと考えられる。一方、 $\alpha$ -アルミナに 1vol%の Ni を添加した粒界 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料試料は、粒界に沿って Ni 粒子が選択的に存在するため粒子が連結しやすく、より少量で絶縁耐圧が低下したと考えられる。つまり、アルミナにナノサイズの Ni 粒子を添加した場合、セラミックスの絶縁耐圧は、その Ni の存在箇所に影響に大きく影響を受けることが明らかとなった。

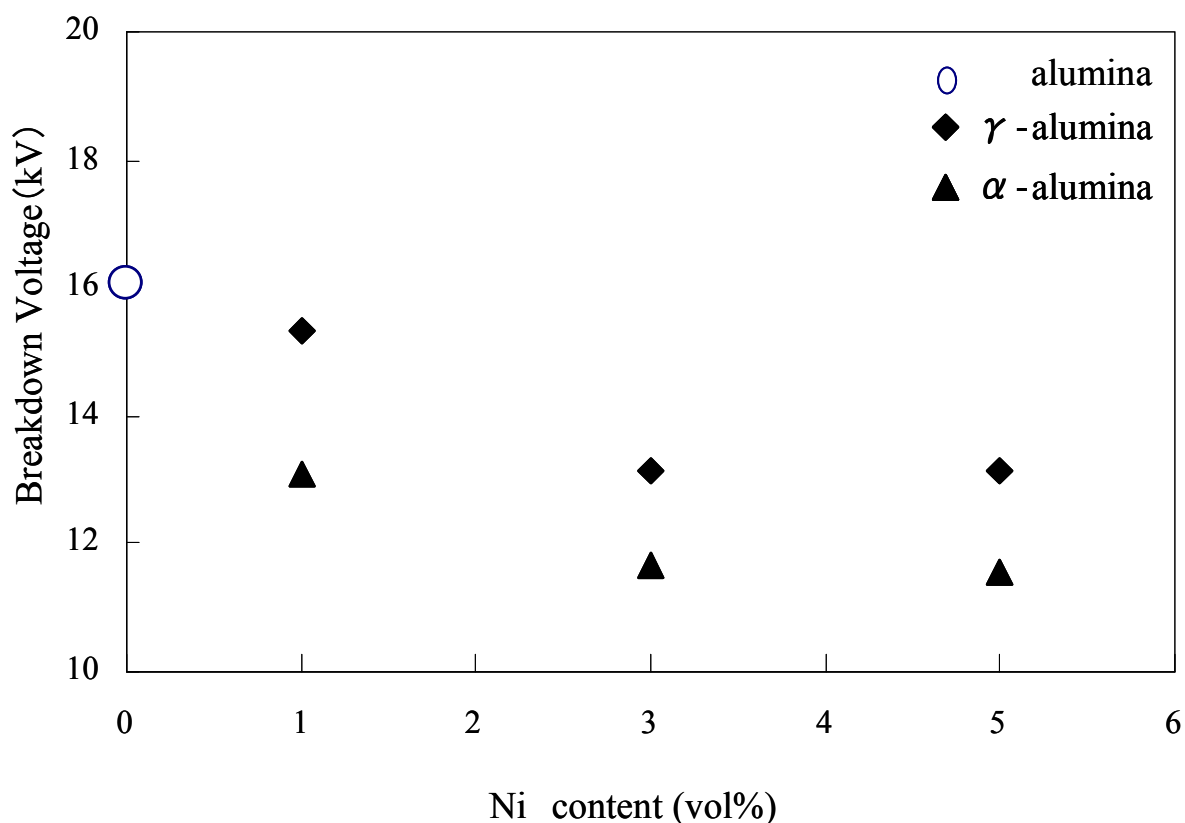


Fig.4-10 Relation between Ni content and breakdown voltage of alumina/Ni nanocomposites.

以上の結果から、 $\gamma$ -アルミナに 1vol%の Ni ナノ粒子を添加して作製した粒内ナノ粒子分散は、高い機械特性を持ち、かつ高い熱伝導率を維持し、そしてさらに高い絶縁耐圧を保持する、IGBT モジュールのセラミックス絶縁基板として期待される微細組織を制御したアルミナであるといえる。

#### 4.4 まとめ

溶液浸漬法により、ナノ粒子分散アルミナ複合材料を作製した。特に出発原料のアルミナの種類を変えることで、アルミナマトリックスにおけるナノサイズ Ni 粒子の存在箇所を変化させることに成功した。それらのナノ複合材料の機械的特性、熱特性、および絶縁耐圧を評価し、以下の知見を得た。

1)  $\gamma$ -アルミナを出発原料とし、1vol%の Ni を添加した試料では、Ni 粒子はアルミナ粒の粒内および粒界に存在したが、主に粒内に存在した。一方、 $\alpha$ -アルミナを出発原料とし、1vol%の Ni ナノ粒子を添加した試料では、その Ni 粒子は、主に粒界に存在した。

2) Ni ナノ粒子がアルミナ粒内に存在したナノ粒子分散アルミナは、通常アルミナ焼結体と比較し機械的な特性（破壊強度、破壊靱性）の向上がみられた。1vol%の Ni ナノ粒子を添加した試料において、破壊強度は 900MPa、破壊靱性は  $4.86\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  を示した。しかし、粒界に Ni ナノ粒子が存在すると、Ni ナノ粒子が粒内に存在する場合と同一の粒子サイズであっても機械的な特性の改善はみられなかった。

3) Ni ナノ粒子が粒内に存在すると、熱膨張係数は Voigt 即の上限を若干超えた。その原因として、残留応力が消失するためと考えた。加えて、ナノ粒子が粒内に存在した場合の熱伝導率については、1vol%の Ni を添加した試料で、ほぼアルミナ単体のそれとほぼ同等であった。しかし Ni ナノ粒子が粒界に存在すると、1vol%の Ni を添加した試料においても熱膨張係数は  $6 \times 10^{-6} \text{m/K}$ 、熱伝導率は  $30 \text{W/mK}$  を示し、アルミナ単体  $35 \text{W/mK}$  より低下した。

4) Ni ナノ粒子分散アルミナ複合材料における絶縁耐圧は、Ni 粒子がアルミナ粒内に存在するとアルミナ単体の場合の値に比べ約 4%の低下しただけなのに対し、Ni 粒子が粒界に存在すると約 19%低下し、Ni ナノ粒子の存在位置に大きく依存することが分かった。

#### 参考文献

- 1) F. Erdogan and F. Joseph, *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**, pp.262 (1989).
- 2) V. Trergaard, *Int. J. Mech. Soc.*, **34**, pp.635 (1992).
- 3) F. Tamai and K Hirano, *Trans of JSME, Ser. A.*, **63**, pp.1172-1177 (1997).
- 4) C. Kawi, M. Miyanaga, and Park, J. J., *J. Ceram. Soc. Japan*, **109**, pp.565-69(2001).
- 5) Divecha, A. P., Fishman, S. G. and Karmarkar, S. D., *J. Metals*, **9**, pp.12 (1981).
- 6) T.Matsunaga, U.Leela-adison, Y.Kobayashi, S-M Choi and H.Awaji, *J. Ceram. Soc. Japan*, **113**, pp.123-125(2005).
- 7) K. Yoshida, *J. Soc. Mater. Sci. Japan*, **39**, pp.103-113 (1990).

- 8) F. Wakai, S. Shuji, Y. Matsuo, *J. Ceram. Soc. Japan*, **93**, pp.479-480 (1985).
- 9) Y. Kouda, *J. materia*, **13**, pp.557 (1974).
- 10) J. Selsing, *J. Am. Ceram. Soc.*, **44**, pp.419 (1961).
- 11) Hasselman, D. P. H., H. Donaldson, K. Y. and Geiger, A. L., *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, pp.3137-40 (1992).
- 12) A. Kuibira, H. Nakata, A. Yamaguchi, *J. Ceram. Soc. Japan*, **113**, pp.611-615 (2005).
- 13) T. Sekino, T. Adachi, T. Nakayama, T. Kusunose, K. Niihara, *Mater. integ*, **18**, pp.27-33 (2005).
- 14) M. Yoshimura and H. K. Bowen, *J. Am. Ceram. Soc.*, **64**, pp.404-10 (1981).
- 15) H. Murata, S. C. Choi, K. Kumoto and H. Yanagida, *J. Mater. Sci.*, **20**, pp.4507-13 (1985).
- 16) T. Tomimura, T. Okamoto, S. Nakamura, A. Oshita *Trans, IEE Japan*. **A123-A**, pp.76-81 (2003).

## 第 5 章 粒子配向制御による高機能アルミナの作製と特性評価

### 5.1 緒言

Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体は、得られる特性は優れるが溶液浸透法など、特殊なプロセスを必要とする。第 2 相粒子を分散させることなくアルミナの特性を改善させることは、その生産性やコストダウンの面からも注目に値する。これまでアルミナセラミックスの微細組織制御においては、粒子を配向させた微細組織を持つアルミナを作製することで機械的特性が向上したとの報告がある。粒子配向させたアルミナを作製する方法として、G.L.Messing らは金属酸化物を添加したアルミナゲルを焼成し、アルミナ粒子を一方向に異常粒成長させることで粒子配向させたアルミナの作製をおこなっている<sup>1,2)</sup>。また、Yoshizawa らは更に焼成時の加圧条件を制御することでアルミナ粒子の粒成長方向を制御している<sup>3),4)</sup>。Salem らは、押出成形を用い粒子方向を揃え、亀裂進展を抑制したアルミナを作製している<sup>5)</sup>。しかしこれらの研究においては、出発原料として球状に近い粒子を用い金属酸化物を加えることで異常粒成長させている。他の金属酸化物の添加は熱伝導率の低下の要因となる。その為、放熱が要求される IGBT モジュールなどの電気デバイスへの適用には適切ではない。

本研究では、板状アルミナ粒子粉末を出発原料とし、パルス通電焼結法(PECS)を行うことで粒子配向制御したアルミナを作製した。他の添加物を加えないことで、

アルミナ自身の熱伝導率の低下の防止が期待される。粒子配向制御したアルミナ、通常の無配向粒子から作製された多結晶アルミナ、および単結晶アルミナの破壊強度、熱伝導率および絶縁耐圧を評価した。また粒子配向制御アルミナと通常多結晶アルミナの破壊靱性値の比較測定を行い、アルミナの微細組織の粒子配向の優位性について明らかにした。

## 5.2 実験方法

### 5.2.1 試料の作製

粒子配向制御アルミナの出発原料となる板状 $\alpha$ -アルミナは、橋本らのレポートによるフラックス法により作製した<sup>6)</sup>。板状 $\alpha$ -アルミナ粒子はその形状から成形時に粒子間隙を作りやすく、また結晶性が高く粒径が大きいため隣接する粒子との接触点が少なく、焼結し難いことが予想される。そこで焼結を促すために、板状 $\alpha$ -アルミナ粒子に10mass%の微細 $\alpha$ -アルミ板状粒子(TM-D、大明化学、平均粒径 $0.14\mu\text{m}$ )を添加し乾式混合を行った。この場合、板状アルミナ粒子の形態が破壊されないように注意し、粉碎用ボール等の添加はしなかった。得られた粉末を黒鉛製ダイス(直径20mm)に充填し、圧力60MPaの下、真空中でパルス通電法により焼結を行った。加熱温度は $1650^{\circ}\text{C}$ 、加熱保持時間は5分とした。焼結装置はSPS装置(SPS-515S 住友石炭鉱業)を用いた。

多結晶アルミナは $\alpha$ -アルミナ粒子(AKP-53、住友化学、平均粒径 $0.3\mu\text{m}$ 、TM-D、大明化学、平均粒径 $0.14\mu\text{m}$ )粉末の成形品を $1350^{\circ}\text{C}$ 、 $1450^{\circ}\text{C}$ 、 $1550^{\circ}\text{C}$ 各1時間

保持し、異なる粒径を持つアルミナ試料を得た。単結晶アルミナは、商業用サファイア(京セラ製)を用いた。

焼結体の密度はアルキメデス法によりかさ密度を測定し、アルミナの新密度  $3.98 \times 10^3 \text{kg/cm}^3$  から相対密度を算出した。粒子配向アルミナは図 5-1 に示すように焼結時の加圧方向に対し垂直、および平行方向に切り出した。

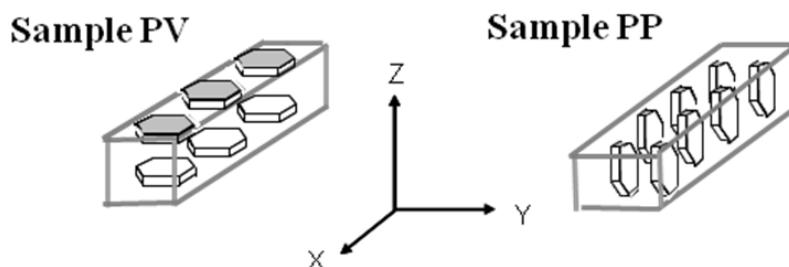


Fig.5-1 Schematic diagram of the PV and PP samples with different cutting direction of the textured alumina ceramics

この場合、荷重方向に対し水平方向に切り出した試料を PV、荷重方向に対し平行方向に切り出した試料を PP と定義した。PV および PP 試料の微細組織は、その研磨後を  $1350^\circ\text{C}$  でサーマルエッチング処理して、その後カーボンでコートし、SEM (Scanning Electron Microscope : JSM-5200 日本電子) により観察した。

### 5.2.2 粒子径および配向度の測定

試料粒子径の分布、及び平均粒子径は Intercept 法<sup>7)</sup>を用い 200 個の粒子から

算出した。粒子径は次式 5-5 を用いた。

$$(L_1+L_2)/2 \quad (5-5)$$

ここに  $L_1$  は粒子のもっとも長い径、 $L_2$  は同一粒子の  $L_1$  から  $90^\circ$  の位置の粒子径を示す。更に、平均粒界数は  $1 \times 10^3 \text{m}$  の長さにおける界面数を示し PV で 50 ライン、PP で 25 ラインの平均値を用いた。

粒子配向アルミナ試料における粒子の配向度は、XRD 回折装置(XD-D1 島津製作所製)測定を用い、PV 試料の表面の測定の結果から算出した。粒子の配向度の算出には以下の式で示される Lotgering 法<sup>8)</sup>を用いた。

$$F = (P - P_0) / (1 - P_0) \quad (5-6)$$

ここで、 $P = \Sigma I(00l) / \Sigma I(hkl)$ 、 $P_0 = \Sigma I_0(00l) / \Sigma I_0(hkl)$ 、であり  $\Sigma I$  は PV、PP 試料表面の XRD 回折強度の総和であり  $\Sigma I_0$  は通常が多結晶アルミナの XRD 回折強度の総和を示す。

### 5.2.3 絶縁耐圧の測定

PP および PV 試料から、厚さ 0.3mm、直径 10mm の円板試験片を切り出し、表裏に電極をつけて絶縁耐電圧の測定を行った。絶縁耐圧測定は、試験片を絶縁油(FC-40:SUMITOMO 3M Co. Ltd., Japan)に浸し、高電圧発生装置(SEKISUI 製)を用い 100V/s の昇圧速度にて AC 電圧を印加した。漏れ電流が 2 mA となったところで、単位厚み当たりの値に換算して絶縁耐圧とした。



#### 5.2.4 機械特性

PP および PV 試料から  $2 \times 2 \times 10$  mm の試験片を切り出し、三点曲げによる破壊強度試験を行った。装置はオートグラフ (AGS-5kND 島津製作所) を使用し、スパン間距離は 8mm、クロスヘッドスピードは 0.5mm/min の条件で行った。破壊靱性値の測定は、 $2 \times 2 \times 10$  mm の試験片中央に V ノッチを加工して入れ SEVNB 法により三点曲げ破壊靱性試験を行った。装置は強度試験と同じオートグラフ (AGS-5kND 島津製作所) を使用し、スパン間距離は 8mm、クロスヘッドスピードは 0.5mm/min の条件で行った。得られた結果を次式、若井らの式<sup>9)</sup> (前項の式 4-1、4-2 参照) を用い破壊靱性値( $K_{IC}$ )を算出した。

#### 5.2.5 熱伝導率測定

PP および PV 試料から厚さ 1mm、直径 10mm の円板状試験片を切り出して測定試料とした。レーザーフラッシュ法(JIS R 1611) により常温における比熱・熱拡散率を測定し、熱伝導率を求めた (前項の式 4-3 参照)。測定装置には、レーザーフラッシュ装置(TC-7000、真空理工)を使用した。試験片表面におけるレーザーの吸収を安定化させるため、比熱測定用には試験片表面にグラッシーカーボンを貼付し、熱拡散率測定用には試験片の両表面にカーボンスプレーによる黒色化処理を行った。

## 5.3 結果と考察

### 5.3.1 微細組織

板状  $\alpha$ -アルミナ粒子を出発原料とした粒子配向アルミナ試料の相対密度は約 95%であった。図 5-2 に、試料作製に用いた板状  $\alpha$ -アルミナ粒子、及び研磨、サーマルエッチング後の PP、および PV 試料の SEM 観察結果を示す。出発原料とした板状粒子の粒子径は 5~10  $\mu\text{m}$ 、アスペクト比は 10~15 であった。これらの SEM 観察結果を基に PV および PP サンプルの粒子径の測定を実施した。図 5-3 に PV、および PP 試料の粒径分布を示す。平均粒径値は、PV 試料が 35  $\mu\text{m}$ 、PP 試料が 12  $\mu\text{m}$  であった。この結果より、アルミナ粒子のアスペクト比は小さくなっているが、出発原料の板状  $\alpha$ -アルミナの形状を保ったまま粒子が成長し配向していることが考えられる。そこで PP、PV サンプルの配向度の調査を行った。図 5-4 に、PV および PP 試料表面の X 線回折結果を示す。PV 試料では(006)、PP 試料では(110)が特徴的なピークであった。粒子配向度は、回折強度を元に式 5-6 を用いたところ 0.32 となり、出発原料に板状  $\alpha$ -アルミナ粒子を用いた試料が配向していることが明らかになった。

以上の結果より出発原料に板状  $\alpha$ -アルミナ粒子を用いることにより、アルミナ粒子を意図的に配向させた試料を作製することができた。

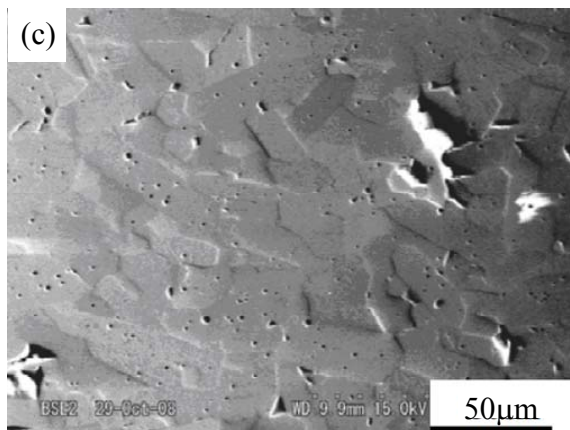
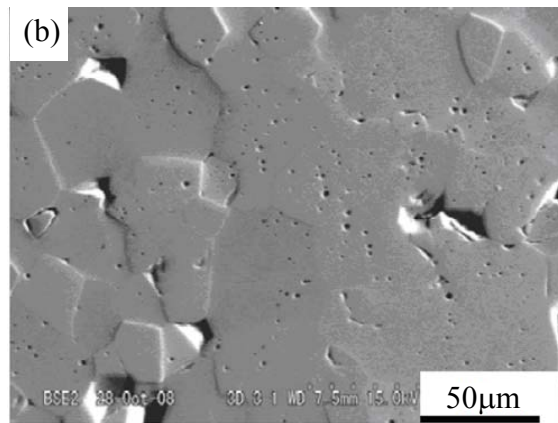
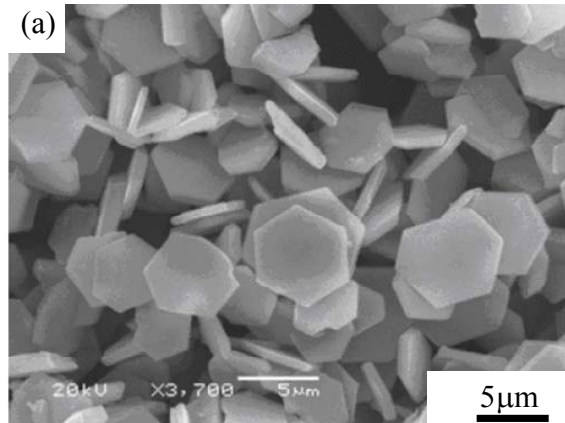


Fig.5-2 SEM photographs of the (a) platelets and the surfaces of (b) PV and (c) PP samples.

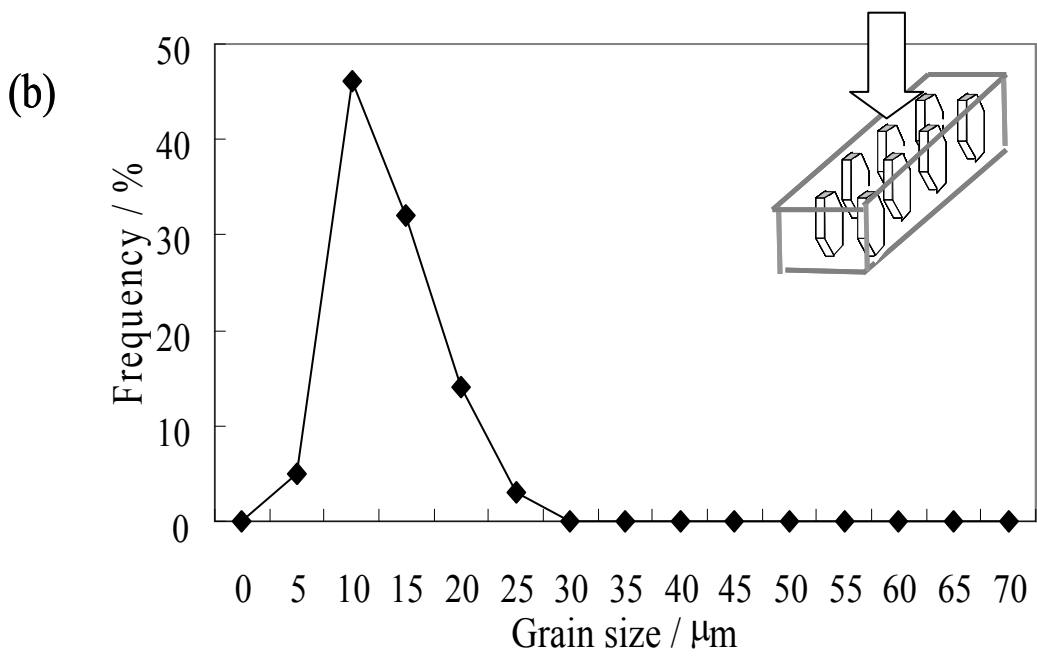
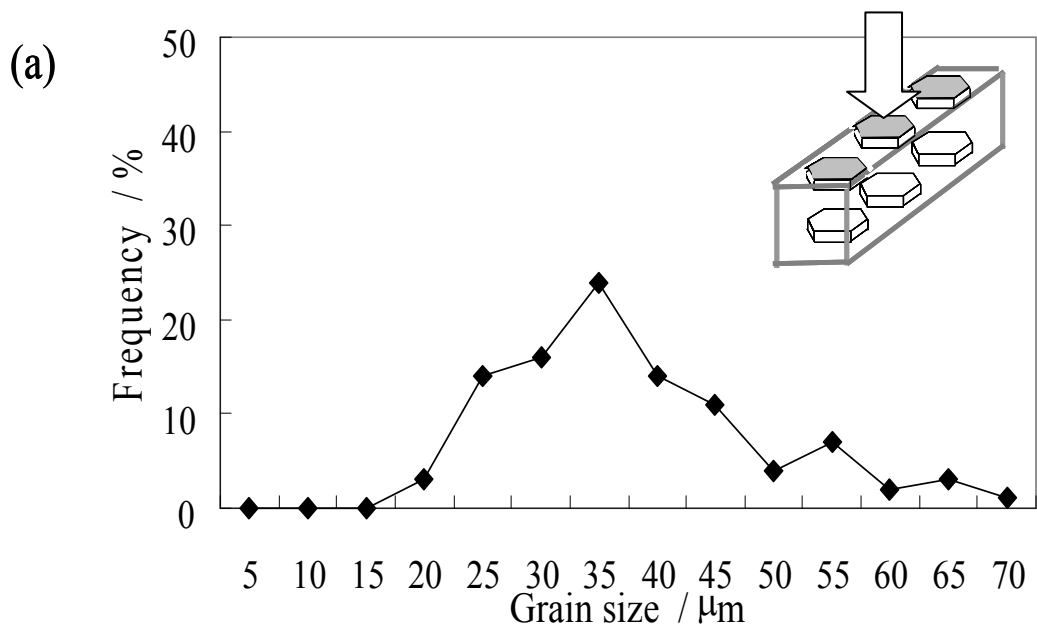


Fig.5-3 Grain size distribution of the surface of (a) PV and (b) PP samples

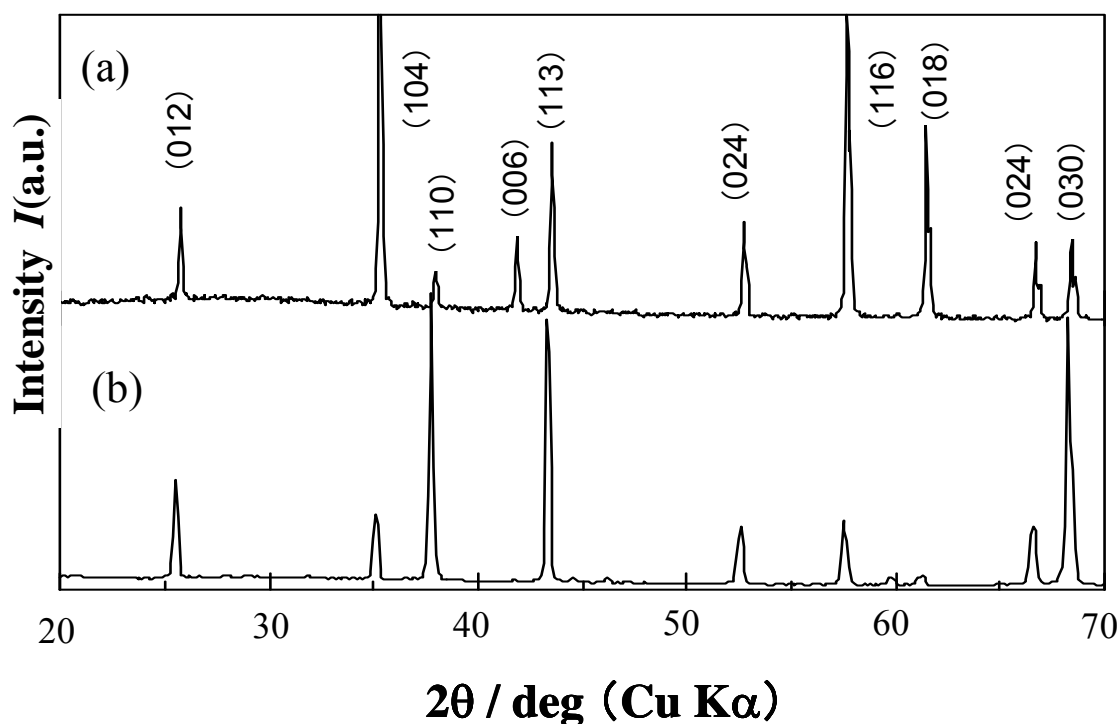


Fig.5-4 XRD patterns of the surface of (a)PV and (b)PP samples.

### 5.3.2 熱伝導率

図 5-5 に、アルミナ試料における粒径と熱伝導率の関係を示す。この結果、一般の多結晶アルミナは粒径の増大とともに熱伝導率が低下した。一般の多結晶アルミナの粒径と熱伝導率の一次相関直線に対し PV および PP 試料の熱伝導率は、それぞれ 39 および 36W/m・K と高い値を示した。一般的にセラミックスの熱伝導率は、粒子径が大きければ高い値を示し、粒界が多ければ低い値を示す<sup>10)</sup>。高い熱伝導率を示した PP 試料は、粒子の長径が伝熱方向(試料の深さ方向)に配置されたことが要因として考えられる。そこで、伝熱方向の粒界数と熱伝導率

との関係进行评估した。その結果を図 5-6 に示す。一般の多結晶アルミナの粒界数は、粒径  $10\ \mu\text{m}$  で約 380 個/mm であった。これに対し PV の粒界数は 92 個/mm、PP の粒界数は 39 個/mm であった。熱伝導率は、界面数の減少により向上するため<sup>10)</sup>、特に、PP 試料は界面数が少なく高い熱伝導率を示したと考えられる。更に PV および PP 試料の熱伝導率は一般の多結晶アルミナの熱伝導率と平均粒界数の関係ラインよりも高い値を示した。

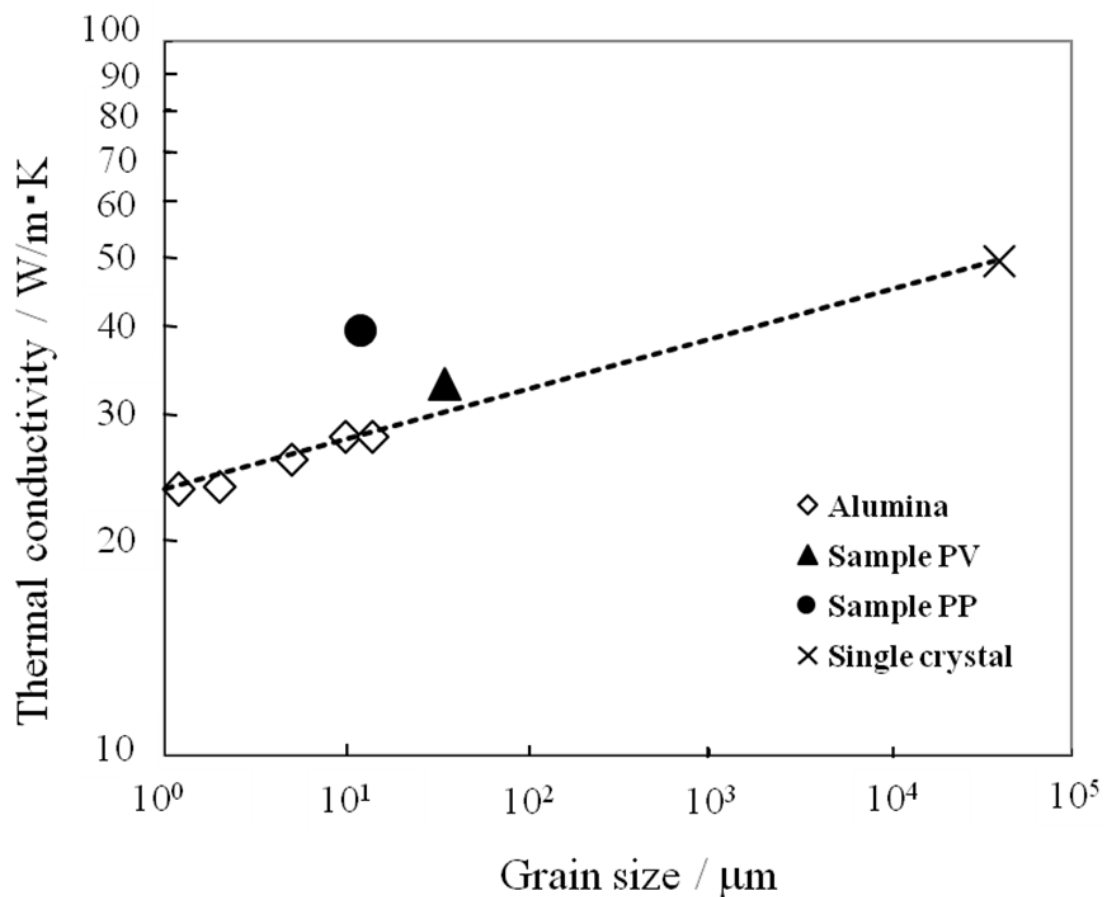


Fig.5-5 Change of the thermal conductivity with the grain size of the alumina samples.

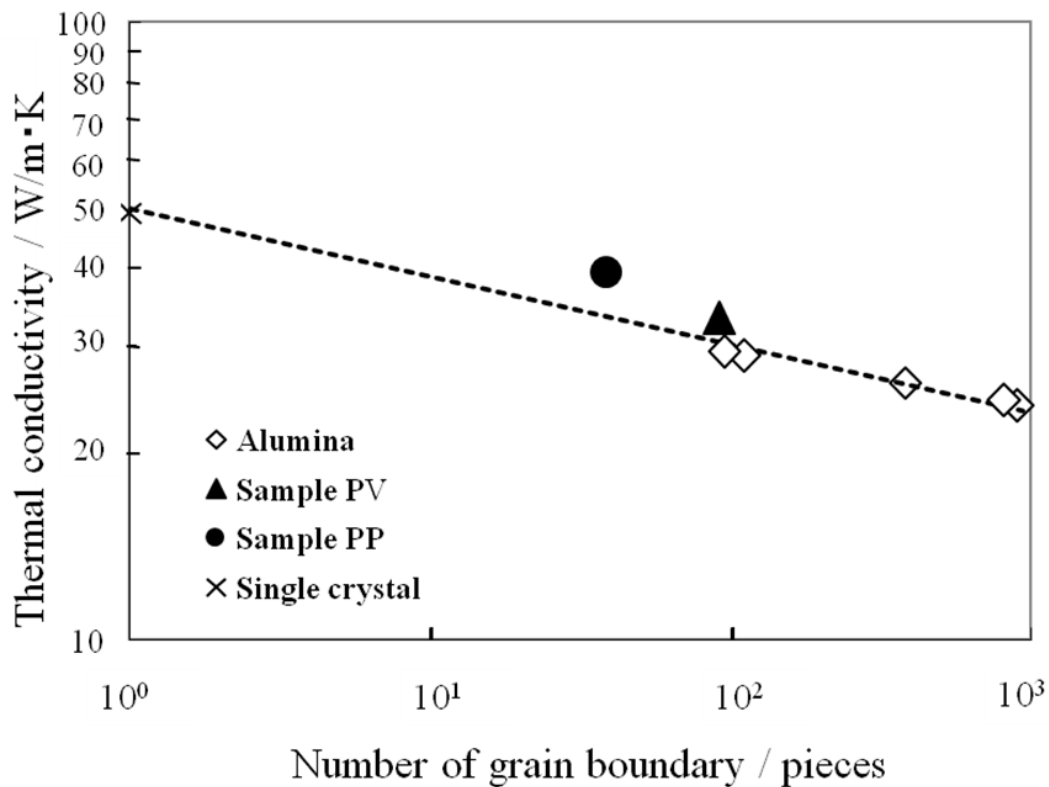


Fig.5-6 Change of the thermal conductivity with the number of grain boundary of the alumina samples.

これは板状アルミナの結晶面が PP で(110)、PV で(006)と一方向に揃っていることが、即ち整合界面であることが多結晶アルミナと比較し高い熱伝導率を示す原因と考えられた。

### 5.3.3 機械特性

図 5-7 に、アルミナの粒子径と破壊強度との関係を示した。破壊強度は、アルミナ粒子径が大きくなるのに従い低下した。特に PP 試料は、150MPa と最も低

い値を示した。これは、粒子周囲に存在する残留応力が亀裂の伝播方向と同じ方向に存在したことにより引き起こされたと推察される。潜在亀裂長さは、大きな気孔等の欠陥がない場合、粒子径に比例した長さであるとされている<sup>11)</sup>。

PP 試料では、破壊試験における加重方向がアルミナの結晶粒子の長径方向となる。よって潜在亀裂長さは一般の多結晶アルミナと比較して長くなる。一方、PV 試料の破壊強度は 340MPa であった。PV 試料が高い強度を示した理由として、潜在的な亀裂長さと相関関係にある粒径が小さいことが考えられた。欠陥が少ない単結晶アルミナの破壊強度は 750MPa を示した。

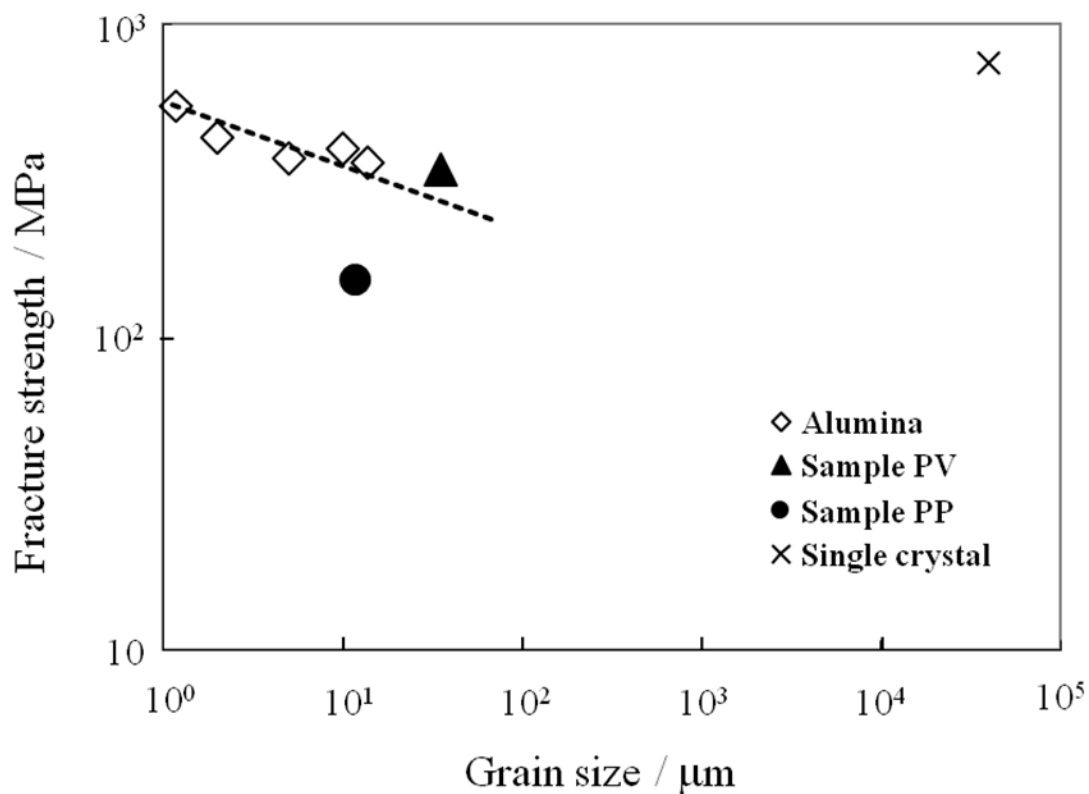


Fig.5-7. Change of the fracture strength with the grain size of the alumina samples.



破壊強度と粒径の関係は、Petchにより式 5-7 の関係が示された<sup>12)</sup>。

$$\sigma = \kappa_1 + \kappa_2 \cdot D^{-\frac{1}{2}} \quad (5-7)$$

ここで  $D$  は粒径、 $\kappa_1$  と  $\kappa_2$  は定数である。

図 5-8 に、アルミナ粒径  $D^{-\frac{1}{2}}$  と破壊強度の関係を示す。多結晶アルミナの強度は、式 5-7 に合致した。図の結果から、 $\kappa_1$  と  $\kappa_2$  は各々 290 と 250 であった。しかしながら PP 試料と単結晶アルミナは式 5-7 の相関関係から外れた。

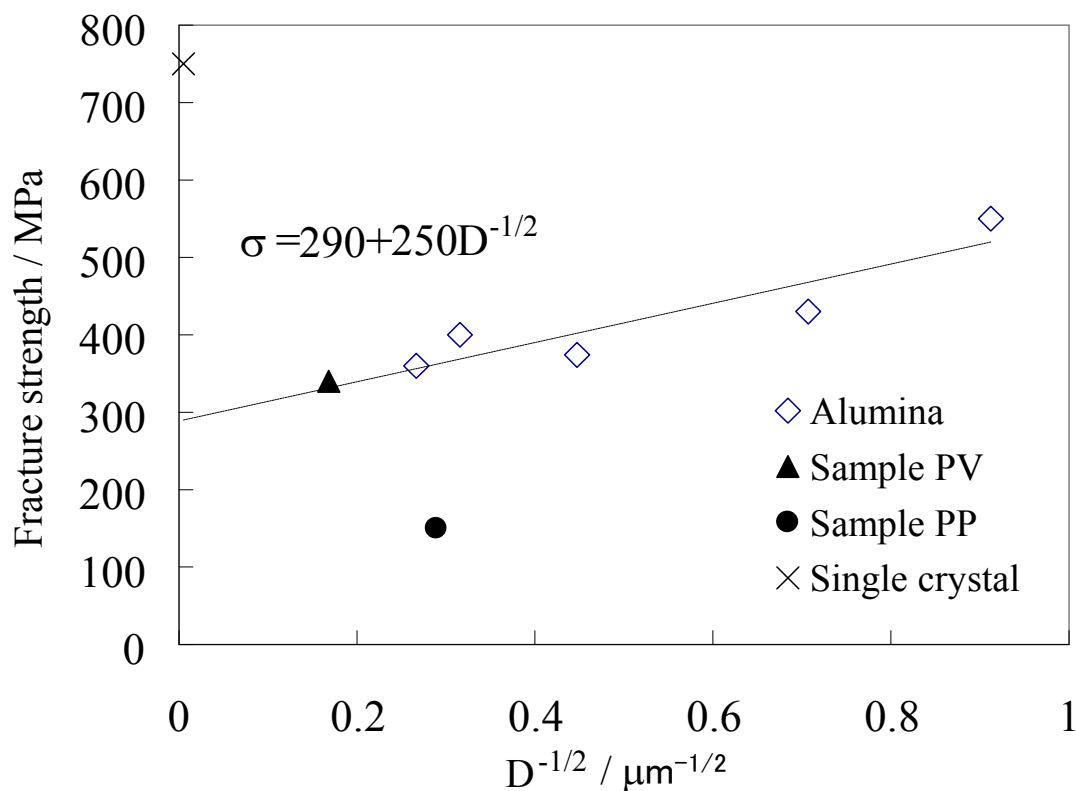


Fig.5-8. Relationship between the grain size:  $D^{-1/2}$  and the fracture strength of the alumina samples.

次に、表 5-1 に破壊靱性値を示す。PV 試料は、多結晶アルミナ試料の中で最も高い破壊靱性値を示した。粒子配向アルミナにおける高破壊靱性メカニズムについては、既に Yoshizawa ら<sup>4)</sup>により論じられている。PV 試料は破壊源となる潜在的な亀裂長さと相関関係にある粒径が相対的に小さいことに加え、亀裂の進展は一般的な多結晶アルミナ粒内では直進するのに対し、粒子配向性アルミナ、特に P V 試料のようなアルミナでは、ジグザグに進むことが確認されている。そのため、大きな異方性を持った粒子配向アルミナにおいては高い靱性を示す。更に粒子配向アルミナの破面から、粒内破壊および板状の粒子が引き抜かれた跡がみられた。粒子配向組織における粒界破壊において粒子の引き抜きは、架橋効果を増す。結果、高い破壊靱性を示す。今回の粒子配向アルミナ試料においても粒界破壊が観察され、その高い破壊靱性値を示した。

Table.5-1 Grain size and fracture toughness of the alumina samples

Sample	Grain size ( $\mu\text{m}$ )	Fracture toughness ( $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ )
alumina	5	3.9
PV	35	4.2
PP	12	1.8

### 5.3.4 絶縁耐圧特性

図 5-9 に、絶縁耐圧とアルミナの粒子径の関係を示す。一般の多結晶アルミナは粒径の増大とともに絶縁耐圧は低下した。一般の多結晶アルミナの同じ粒子径の試料と比較し PP 試料は僅かに低い絶縁耐圧値を示した。

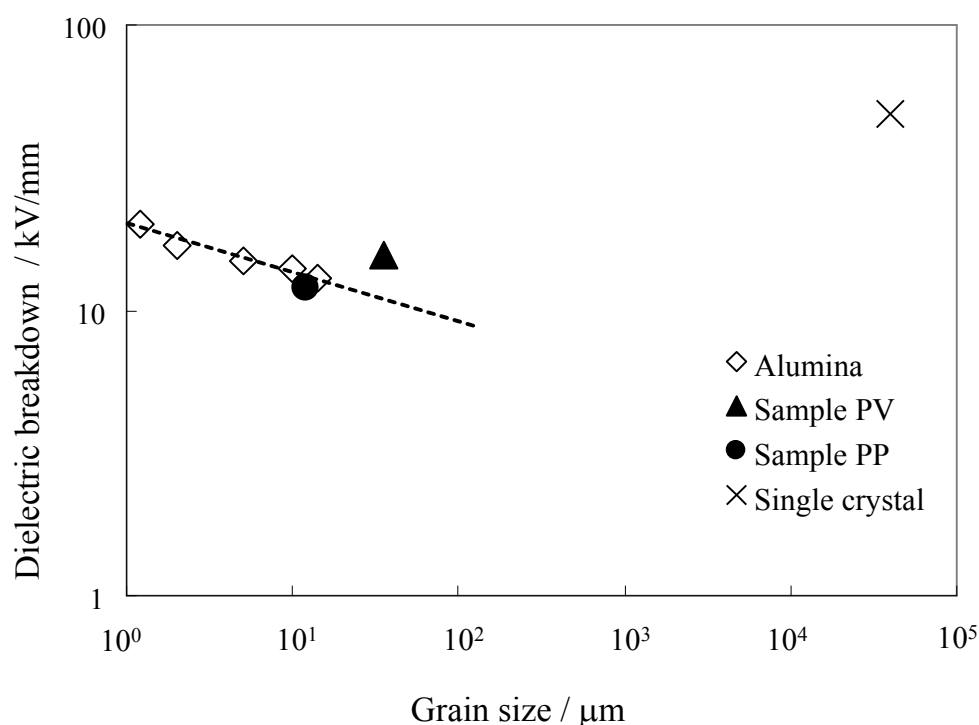


Fig.5-9 Change of the dielectric breakdown with the grain size of the alumina samples

一方、粒径 35 μ m の PV 試料は、一般の多結晶アルミナと比較し高い絶縁耐圧値を示した。一般的にセラミックスの粒径が大きくなると亀裂（欠陥）の存在確率が高くなる。そのため、粒径の増大に伴い機械強度は低下する。アルミナ粒径が大きくなるに伴い絶縁耐圧が低下していることから、絶縁耐圧と潜在的な亀裂サイズに相関があると考えられる。試料中に潜在的な亀裂が存在しないアルミナ

単結晶の絶縁耐圧は 50 k V/mm と最も高い値を示した。

また絶縁耐圧のメカニズムを明らかにする場合、絶縁耐圧値に達して破壊する直前の電界が重要である。鈴木らは、第 3 章で示したように、破壊靱性値の高いセラミックスが高い絶縁耐圧を示す可能性があることを報告している<sup>13)</sup>。事実、表 5-1 から PV 試料は破壊靱性値  $4.2\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$  と最大の値を示した。これらの結果より、絶縁耐圧は潜在的な亀裂の存在確率に正の相関があり、この潜在的な亀裂が破壊の原因となると考えられる機械強度とも相関があるとみられた。

図 5-10 に、絶縁耐圧試験後の PV 試料微細組織を示す。通電により生成した貫通痕が確認された。絶縁破壊が発生する場合の放電は高温を伴い、アルミナの

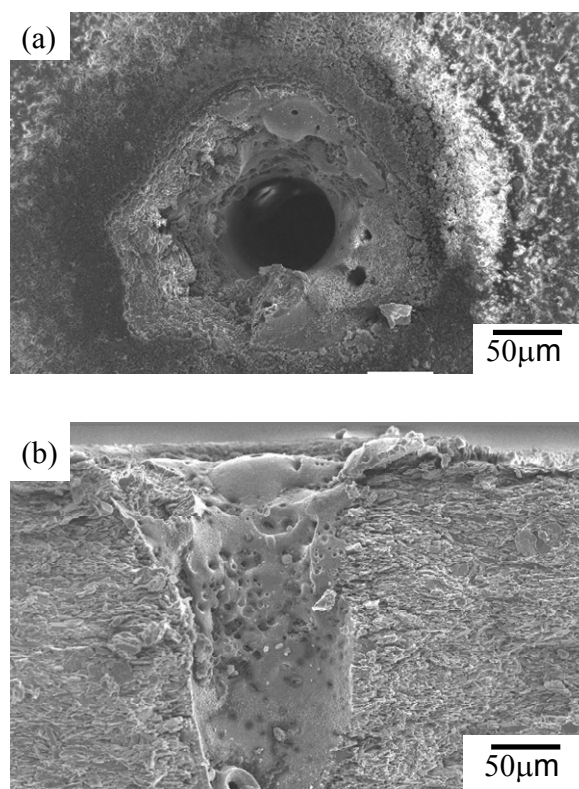


Fig.5-10 Microphotographs of the PV alumina samples of (a) the top of and (b) the cross section after dielectric breakdown test.

融点である 2054℃を超えているとみられた。そのため図 5-10 に示すように、電弧の貫通痕周辺のア루미ナの組織は熔融した。

### 5.3.5 絶縁特性と熱伝導率の関係

IGBT モジュールに使用するセラミックスにおいて、絶縁耐圧は熱伝導率と共に重要な特性である。図 5-11 に、絶縁耐圧と熱伝導率の関係を示す。一般の多結晶ア루미ナは絶縁耐圧と熱伝導率は負の相関関係があった。単結晶ア루미ナは、高い熱伝導率と高い絶縁耐圧を示した。これは単結晶のため破壊源（応力集中が起こり亀裂伸展の起点）となりえる潜在的な亀裂を有していないためと考えられる。しかしながら単結晶ア루미ナは、コスト面より絶縁材料として IGBT モジュールに適用するのは困難である。粒子配向ア루미ナ試料の絶縁耐圧と熱伝導率の値は、一般の多結晶ア루미ナと比較し高い値を示した。特に PV 試料は、絶縁耐圧の値が 15kV/mm であり、且つ熱伝導率の値が 36W/m・K と高い値を示した。この理由は、PV 試料が図 5-7 や表 5-1 に示すように破壊強度が 340MPa、破壊靱性が 4.2 MPa・m<sup>1/2</sup> と十分に高い機械特性を持ち、且つア루미ナ粒子の径が図 5-3 に示したように 35 μm と一般的な多結晶ア루미ナと比べ大きかったためと考えられた。高い破壊靱性の値は、第 3 章でも示したように、絶縁耐圧の向上に貢献している。PV 試料は潜在的な亀裂が少ないことと、亀裂がジグザグに進む高い靱性を示す微細組織が高い絶縁耐圧を導いたと考えられた。熱伝導率に関しては、PV 試料において板状ア루미ナの結晶面が(006)面で一方向に揃っている整合界面であることが高い熱伝導率を示す原因と考えられた。また図 5-6 に示すように、粒界数

も 92 個/mm と比較的に少ないことも、高い熱伝導率を示す要因であった。以上の結果より、板状アルミナ粒子を出発原料として作製した粒子配向アルミナを IGBT モジュールに適用することは、一般の多結晶アルミナと比較して、絶縁耐圧と熱伝導率の双方で優れた性能を持つと予想された。

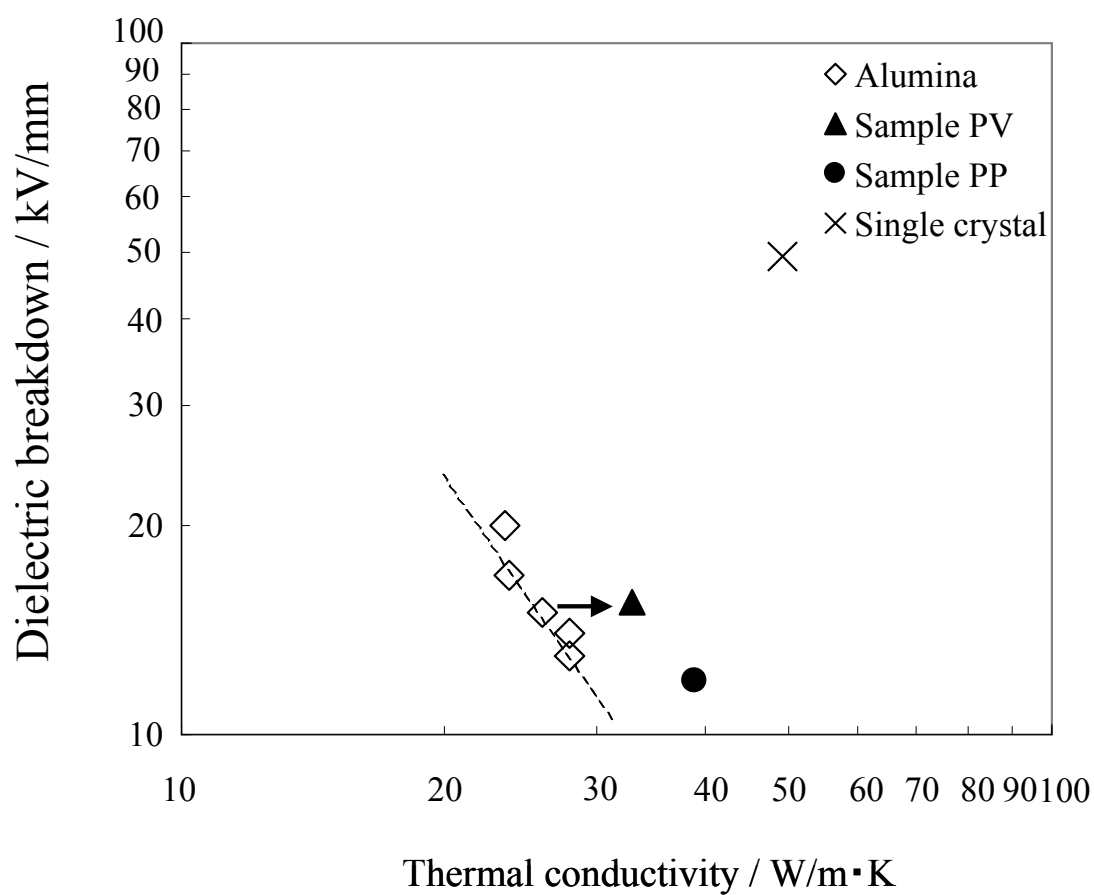


Fig.5-11 Relationship between the dielectric breakdown and the thermal conductivity of the alumina samples

#### 5.4 まとめ

本章では、粒子配向制御による高機能アルミナの作製とその特性評価を行った。そして以下のことが明らかになった。

(1)板状アルミナを出発原料として、PECS を用い 1650°C、加圧力 60MPa、15 分間加熱し、相対密度 95%、粒子配向度が 0.34 のアルミナを得た。

(2)粒子配向アルミナの熱伝導率は、同じ絶縁耐圧を持つ、通常が多結晶アルミナと比べ高い値を示した。

(3)粒子配向アルミナの焼成時の加圧面に垂直に切り出した試料において、破壊強度：340MPa、破壊靱性：4.2MPa・m<sup>1/2</sup>、熱伝導率：36W/m・K、絶縁耐圧 15kV/mm の値を得た。

#### 参考文献

1)S.-H. Hong, W. Cermignani and G. L. Messing, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **16**, 133-141 (1996).

2)T. Tartaj and G. L. Messing, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **17**, 719-725 (1997).

3)Y. Yoshizawa, M. Toriyama, and S. Kanzaki, *J. Am. Ceram. Soc.*, **84**, 1392-1394 (2001).

4)Y. Yoshizawa, K. Hirao, and S. Kanzaki, *J. Am. Ceram. Soc.*, **87**, 2147-2149 (2004).

- 5) J. A. Salem and J. L. Shannon, Jr., *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**, 20-27 (1989).
- 6) S. Hashimoto and A. Yamaguchi, *J. Mater. Res.*, **14**, 4667-4672 (1999).
- 7) M. I. Mendelson, *J. Am. Ceram. Soc.*, **52**, 443 (1969).
- 8) F. K. Lotgering, *J. Inorg. Nul. Chem.*, **9**, 113-23 (1959).
- 9) F. Wakai, S. Shuji and Y. Matsuo, *J. Am. Ceram. Soc.*, **93**, 479-480 (1985).
- 10) D. P. H. Hasselman, K.Y.H. Donaldson and A.L. Geiger, *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, 3137-3140 (1992).
- 11) H.P. Kirchner and R.M. Gruver, *J. Am. Ceram. Soc.*, **53**, 232-36 (1970)
- 12) N. J. Petch, *J. Iron Steel Inst.*, **174**, Part I, 25-28 (1953).
- 13) Y. Suzuki, Y. Matsuo, K. Yasuda and S. Kimura., *J. Ceram. Soc. Japan*, **100**, 59-65 (1992).



## 第6章 総括

産業革命以来、エネルギーの大量消費によって発展を続けてきた世界経済は、環境に対する負荷軽減の観点から、大きな転換期を迎えつつある。特に、中国を始めとする後進国の急速な経済成長は、水質汚染や大気汚染、さらには温室効果ガスや化石エネルギーの大量消費による地球温暖化といった地球規模の環境の悪化をもたらし続けている。そのため太陽光、風力、地熱や水力などの自然エネルギーを用いてエネルギーを生み出そうとする国家政策が各国で実施されている。自然エネルギーにより発電された電気エネルギーは、必要とされる電流、電圧、および周波数に IGBT モジュールを用い変換されており、IGBT モジュールの高効率化が自然エネルギーの利用の高効率化につながる。

本研究では、IGBT モジュールの絶縁基板として期待され、一部ではすでに利用されているアルミナに求められる性能の解明を行った。その特性を満足させるためにアルミナの微細組織の設計を行い、大きくは2つの設計に基づいて作製されたアルミナの特性評価を行ってきた。その微細組織の設計の一つが Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体であり、もう一つがアルミナ粒子配向制御であった。そして開発された新規アルミナの熱伝導率、破壊強度、破壊靱性および絶縁耐圧などを評価して、以下なる新知見を得るに至った。以下に総括する。

### 6.1 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合基板

Ni ナノ粒子分散アルミナ複合基板の作製とその諸特性について評価をおこな

った。出発原料のアルミナの結晶相が、焼結後の Ni 位置に影響を与えることが明らかになった。また Ni ナノ粒子位置が機械特性、熱伝導率、絶縁耐圧におよぼす影響について解明し、アルミナ粒子内での Ni ナノ粒子の存在が、アルミナの粒子のひとつ一つの残留応力を低減し、マクロの機械強度や熱伝導率の向上、および絶縁耐圧低下の防止に有効であることが明らかになった。 $\gamma$ -アルミナに Ni ナノ粒子を 1vol% 添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ複合体試料にて、破壊強度：900MPa、破壊靱性：4.86MPa $\cdot$ m<sup>1/2</sup>、熱伝導率：36W/mK、絶縁耐圧 15KV/mm の値を得た。

## 6.2 粒子配向アルミナ基板

粒子配向制御による高機能アルミナの作製とその諸特性について評価を行った。板状アルミナ粒子を出発原料とした配向粒子微細構造をもつアルミナ材料を作製し、得られた焼結体の強度、熱伝導率および絶縁耐圧の関係について解明した。同じ絶縁耐圧を持つ、通常が多結晶アルミナと比べ高い値を示した。緻密な粒子配向アルミナの焼成時の加圧面に垂直に切り出した試料においては、破壊強度：340MPa、破壊靱性：4.2MPa $\cdot$ m<sup>1/2</sup>、熱伝導率：36W/m $\cdot$ K、そして絶縁耐圧 15kV/mm の値を得た。

## 6.3 今後の展望

Ni ナノ粒子を 1vol% 添加した粒内 Ni ナノ粒子分散アルミナ試料の特性値を基に、IGBT モジュールの特性を予想すると概ね現行のアルミナ絶縁基板を用いた構造に対し

約 20%の改善が見込まれる。また、粒子配向アルミナの焼成時の加圧面に垂直に切り出した試料の特性値を基に IGBT モジュールの特性を予想すると概ね現行のアルミナ絶縁基板を用いた構造に対し約 15%の改善がみこまれる。

焼成時における結晶粒内の残留応力、結晶粒界に存在する微小亀裂がセラミックス特性に影響を与えていることから、今後は、ナノ粒子分散により結晶粒のナノ組織設計により残留応力を低減するとともに、且つ粒子配向による多結晶のマクロ組織設計を複合的に取り入れることで、一般の多結晶アルミナの絶縁耐圧と熱伝導率のトレードオフの関係を同時に改善し、より理想的なアルミナ単結晶の特性に近づけることが可能と予想される。

## 著者発表の研究論文

<本学位申請に用いた論文>

- [1] Development of a New-Generation RoHS IGBT Module Structure for Power Management  
Yoshitaka Nishimura, Tatsuo Nishizawa, Eiji Mochizuki, Tomoaki Goto, Yoshikazu Takahashi, and Shinobu Hashimoto  
*Transaction of The Japan Institute of Electronics Packaging*, Vol. 1, pp. 40-47 (2008)  
本論文における所在 二章
- [2] ナノサイズニッケル添加アルミナ材の特性評価  
西村 芳孝, 相川 賢一郎, 崔 成珉, 橋本 忍, 淡路 英夫  
材料, Vol. 57, pp. 1054-1060 (2008)  
本論文における所在 三章、四章
- [3] Toughening mechanism and frontal process zone size of ceramics  
Hideo Awaji, Yoshitaka Nishimura, Seong-Min CHOI, Yoshikazu Takahashi, Tomoaki Goto and Shinobu Hashimoto  
*Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 117 pp. 623-629 (2009)  
本論文における所在 三章、四章
- [4] Relation between functional properties of alumina-based nanocomposites and locations of dispersed particles  
Yoshitaka Nishimura, Kenichiro Aikawa, Seong-Min Choi, Shinobu Hashimoto, and Yuji Iwamoto  
*Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 117 pp. 836-841 (2009)  
本論文における所在 三章、四章
- [5] Dielectric Breakdown and Thermal Conductivity of Textured Alumina from Platelets  
Yoshitaka Nishimura, Shinobu Hashimoto, Sawao Honda, and Yuji Iwamoto  
*Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 118 pp. 1032-1037 (2010)  
本論文における所在 五章

## 謝辞

本研究は、名古屋工業大学大学院博士後期課程において行ったものである。研究手法から論文の執筆まで終始適切なる御指導および御鞭撻を賜りました名古屋工業大学環境材料工学科 橋本 忍 准教授に心より感謝の意を表します。また、本論文の審査に際し、貴重な御指導および御教示を賜りました名古屋工業大学 岩本 雄二 教授、太田 敏孝 教授に厚く御礼申し上げます。

研究遂行上、大変重要である材料力学に基づく研究手法の御指導をいただきました名古屋工業大学 淡路・英夫 名誉教授に厚く御礼申し上げます。ならびに多くの熱物性に関する御助言を頂きました名古屋工業大学 本多 沢雄 助教に厚く御礼申し上げます。また本研究のデータの収集に際して多大なる協力をいただきました、相川・賢一郎殿、堀田・修平殿、および崔 成珉殿に深く感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、名古屋工業大学博士後期課程での学位取得に対して深い御理解と御高配を賜りました富士電機システムズ株式会社半導体開発センターセンター長の高橋 良和博士に深く感謝申し上げます。また、終始適切な御支援を賜りました富士電機システムズ株式会社半導体開発センターパッケージ開発部部長の後藤 友彰博士、ならびに日常業務にも多大なる御協力を頂きましたパワー半導体分野の職員の皆様に厚く感謝いたします。