

針状酸化亜鉛(ZnO)粒子を導入した 非相溶ポリイミドブレンド膜の調製と熱伝導特性の向上

¹東工大理工,²東京都市大 ○内田 翔也¹・村上 知也¹・岩村 武²・安藤 慎治¹

【緒言】近年の電子機器の小型化・高性能化に伴い、半導体回路基板の絶縁体として用いられるポリイミド (PI)の放熱特性の向上が求められている。我々はこれまで垂直型ダブルパーコレーション (VDP)構造を形成した PI ブレンド薄膜の膜厚方向の熱拡散率 ($D_{\perp}$)を飛躍的に向上させる材料設計について検討を重ねてきた [1-3]。本研究ではこれまでの研究を踏まえ、VDP 構造を形成した PI 薄膜内に針状 (Needle-like)の酸化亜鉛 (n-ZnO)粒子を分散させて $D_{\perp}$ を測定し、等方的な形状を持つ六角錐形状の ZnO 粒子(p-ZnO)を分散した PI 薄膜と比較することで、粒子形状の異方性が PI 薄膜の $D_{\perp}$ に与える影響を調査した。

【実験】PI ブレンドには含硫黄 PI である BPDA-SDA (SD) と含フッ素 PI である BPDA-TFDB (TF) (Fig. 1)を用い、フィラーとして n-ZnO を合成して用いた [4]。ポリアミド酸 (PAA)溶液に ZnO 粒子を分散させ、Si 基板上にスピンコート・乾燥し、基板から剥離後、窒素気流下での熱イミド化により、PI ブレンド薄膜 (Blend-PI)を調製した。各薄膜の $D_{\perp}$ の測定には温度波熱分析法 (ai-phase mobile-1u)を用いた。

【結果と考察】得られた PI ブレンド薄膜の $D_{\perp}$ を Fig. 2 に示す。まず単一成分 (TF)の PI 膜に n-ZnO と p-ZnO を充填した場合では、前者が系統的に高い値を示したが、その傾向は充填量に依存していない。一方、PI ブレンド薄膜に n-ZnO と p-ZnO を充填した場合では、TF の PI 膜に各 ZnO を充填した場合に比べ、 $D_{\perp}$ の著しい向上が確認された。走査型電子顕微鏡 (SEM)から、両者とも SD 相と TF 相がともに薄膜の上下面を貫通する VDP 構造を形成していることが確認された。これらブレンド薄膜における $D_{\perp}$ の著しい向上は VDP 構造の形成に由来するが、同じ VDP 構造でも今回作製した n-ZnO 分散のブレンド薄膜においてフィラーの高充填領域で顕著に高い $D_{\perp}$ が観察された。これは、相分離に伴う偏析構造において n-ZnO の形状異方性が $D_{\perp}$ に強く反映されることを示しており、VDP 構造中における n-ZnO と p-ZnO の配向状態の違いが $D_{\perp}$ 向上の鍵と考えられる。

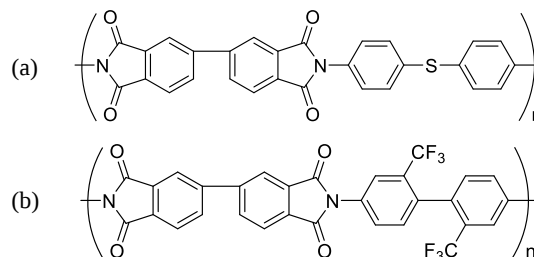


Fig. 1. Molecular structures of immiscible matrix polyimides (a) BPDA-SDA (SD) (b) BPDA-TFDB (TF).

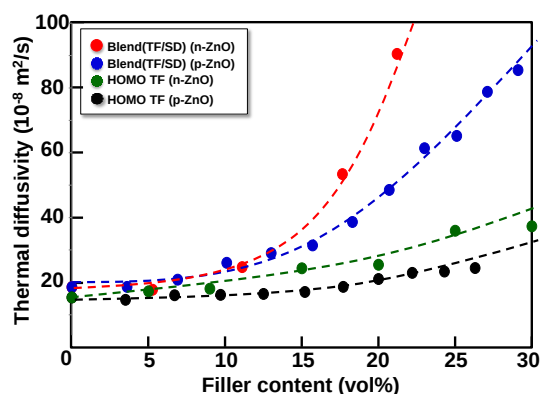


Fig. 2. Enhancement of thermal diffusivity of PI films or PI blend film with increase of ZnO content.

[1] D. Yorifuji, S. Ando, *Macromol. Chem. Phys.* **211**, 2118 (2010).

[2] D. Yorifuji, S. Ando, *J. Mater. Chem.*, **21**, 4402 (2011).

[3] T. Murakami, K. Ebisawa, K. Miyao, S. Ando, *J. Photopolym. Sci. Technol.* **27**, 187 (2014).

[4] 後藤, 岩村, 坂口, 中條, *高分子学会予稿集*, **57**(1), 648 (2008).

Enhancement of Thermal Diffusivity in Phase-separated Polyimide Blend Films Containing Needle-Shaped ZnO Particles

Shoya UCHIDA¹, Tomoya MURAKAMI¹, Takeru IWAMURA², Shinji ANDO¹ (¹Dept. Chem. & Mater. Sci., Tokyo Institute of Technology, Ookayama 2-12-1-E4-5, Meguro-ku, Tokyo 152-8552, Japan Tel: +81-3-5734-2137, Fax: +81-3-5734-2889, E-mail: suchida@polymer.titech.ac.jp

²Dept. Chem. & Energy Eng., Tokyo City Univ., Tamazutsumi, Setagaya-ku, Tokyo 158-8557, Japan)