

平成27年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「熱可塑性フッ素樹脂に熱伝導性フィラーを高密度・高充填した
パワーエレクトロニクス機器用高耐熱性放熱シートの開発」

研究開発成果等報告書

平成28年3月

委託者 九州経済産業局

委託先 公益財団法人佐賀県地域産業支援センター

目 次

第1章 研究開発の概要	1～9
1－1 研究開発の背景・研究目的及び目標	1～3
1－2 研究体制	4～7
1－3 成果概要	8～9
1－4 当該研究開発の連絡窓口	9
第2章 本論－（1）	10～18
2－1 放熱特性向上のための素材に関する課題への対応	10
2－2 目的と目標	10
2－3 実験方法	10～11
2－4 実験結果	12～16
2－5 研究成果と今後の課題	17
第3章 本論－（2）	19～22
3－1 放熱シート製造法に関する課題への対応	19
3－2 目的と目標	19
3－3 実験方法	19
3－4 実験結果	20～21
3－5 研究成果と今後の課題	21～22
第4章 本論－（3）	23
4－1 プロジェクトの管理運営	23
4－2 実施概要	23
4－3 今後の課題と取り組み	23
第5章 全体総括	24～25
5－1 研究成果の全体総括	24
5－2 サブテーマの総括	24
5－3 今後の事業化に向けての取り組み	24～25

第1章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

(1) 研究の背景及び目的

最近のパワーエレクトロニクス化の進歩と高集積化・小型化で半導体ユニットの発熱量は膨大になってきている。一般に、機械やコンピューターは熱が蓄積すると性能が低下するので、電子部品ではシステムの誤動作による大事故などが懸念され、溜まった熱を如何に効率よく放出して素早く冷却できるようにするかということは非常に重要な課題である。コンピューターには半導体ユニットと放熱器(ヒートシンク等)との間に放熱材料(放熱シート、グリース等)が挟まれた状態で取り付けられている。この放熱材料は発熱した半導体ユニットの熱を効率良く放熱器に伝えるための必需品である。放熱材料には小さな凹凸のあるモジュールや放熱器に隙間無くくっつけるために高分子材料を使用する。また、高熱伝導性を持たせるために放熱材料には熱伝導性フィラーを高分子材料に添加している。

しかし、近年のパワーエレクトロニクスの実用化により、放熱材料の熱伝導率を更に上げつつ、発熱量増大による温度上昇のため耐熱性向上という課題が生じている。現在、放熱材料に使われている高分子材料には熱伝導率を上げるためにアルミナなどの無機系放熱フィラーを大量に添加しているが、添加量が増加すると耐熱性が低下し、且つ加工性や耐久性も低下する問題がある。

本研究では、これらの問題を解決するために、高熱伝導性であり同時に高耐熱性を有する新しい放熱材料の開発を行うことを目的とする。

(2) 研究の概要

本研究開発では、アルミナなどの熱伝導性フィラーの表面を予めシランカップリング剤で表面処理して高分子材料との親和性を高め、これに高耐熱性を有する熱可塑性フッ素樹脂のディスパージョンと混合してシート状に相成形し、乾燥後、熱圧着法により高熱伝導性及び高耐熱性を有する新規な放熱シートを開発する。

技術的目標値としては一般的に自動車業界などでパワー半導体の放熱シートに求められている熱伝導率 $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、耐熱温度 250°C 以上、耐電圧 10 kV/mm 以上を目指す。また、シート製造における熱圧着機のプレス盤の表面損傷防止技術、シートの薄膜化(目標値; $100\pm 15\mu\text{m}$ 以下)、並びに簡易メンテナンス方法の確立により実用標準サイズ(A4 サイズ)の放熱シートの製造技術を確立する。さらに、用途によっては放熱シートに密着性が必要であるという川下企業のニーズがあり、フッ素系耐熱性粘着材(ゴム)をシート表面に接着する複合化技術を開発する。

(3) 実施内容

【1】放熱特性向上のための素材に関する課題への対応

(株式会社PAT、国立大学法人九州大学)

【1-1】素材の選択(株式会社PAT)

熱伝導性を有する無機フィラー(アルミナ(以後 Al_2O_3)、窒化ホウ素(同BN)、窒化アルミニウム(同AlN)等)にフッ素樹脂との親和性を持たせるために表面改質処理を施し、処理剤の種類、配合割合、混合方法などの条件最適化を図る。次に上記の各フィラー単味やフィラー同士ブレンドした場合の熱伝導率を比較し、最適素材を選択する。その後、AlN 使用に際して従来 AlN 表面処理法の分散性不足が判明したので、新規のAlN 表面処理法を研究することとした。

【1-2】 高密度・高充填技術の開発（国立大学法人九州大学、株式会社PAT）

母材のフッ素樹脂に無機フィラーを充填する際、フィラー充填率を引き上げるほど熱伝導率が高くなる反面、シートとして必要な柔軟性が極度に低下する。そこで効果的に熱伝導率を高めるために、シートの熱拡散率、熱抵抗値、比熱、熱伝導率、密度等の物性データを集計し体系化すると同時にSEM(走査型電子顕微鏡)による微細構造の解析を進め、フッ素樹脂シートに於ける熱伝導のメカニズムを解明する。また、フッ素樹脂の種類の違いに起因する緻密度の変化、物性値への影響等を考察する。

【2】 放熱シート製造法に関する課題への対応

（株式会社PAT、株式会社AQUAPASS、佐賀県窯業技術センター）

【2-1】 混合・塗布成形・熱圧着の最適条件の確立（株式会社PAT）

各無機フィラーとフッ素樹脂ディスパージョンとの混合において、混合機を用いて、その回転数、混合時間などの最適混合条件を確立する。また、塗布成形においては専用成形機を用いて、塗布回数、治具の選定、治具のセッティング調整などの塗布条件を確立する。さらに、熱圧着機の加圧時間、温度、圧力、真空脱気などの熱圧着条件の影響を明らかにし、各々の最適化を図る。A4 サイズを試作し、絶縁性（耐電圧 10kV/mm 以上）及び膜厚 $100 \pm 15 \mu\text{m}$ 以下の目標を達成する。

【2-1-1】 無機フィラーとフッ素樹脂ディスパージョンの最適混合条件の検討（株式会社PAT）

表面改質処理を施した無機フィラーとフッ素樹脂ディスパージョンの均一なスラリーを混合機により作製する。その混合条件を最適化し、更に夏場のスラリー温度対策等を検討する。

【2-1-2】 塗布成形の最適条件の検討（株式会社PAT）

混合機で混合したスラリーを離型用フィルム上に落とし、スクリーン印刷法等に比べ高精度に厚さを制御できる専用成形機により均一な塗布層を持つ生成形体を作製する。その成形条件を最適化し、均一厚み、表面美麗、シート面方向の物性バラツキが小さいシートを作り、A4 サイズシートの製作技術を確立する。更に、大判サイズや薄肉のシート試作品を作り、川下企業へのサンプルワークを展開する。

【2-1-3】 熱圧着条件の検討（株式会社PAT）

専用成形機で成形し乾燥させた粗成形体を離型用フィルムで包み（粗成形体の上下を挟み）、熱圧着機の下熱プレス盤上にセットして加熱後、上記粗成形体を上下熱プレス盤で挟んで一定時間熱間加圧してプレス体をつくる。その熱圧着条件を最適化し、更に加圧による緻密化で内部欠陥の少ないプレス体として絶縁性の向上を図り、川下企業へのサンプルワークを展開する。

【2-2】 プレス盤表面損傷防止技術の開発（株式会社AQUAPASS、株式会社PAT）

熱圧着時に無機フィラーのように硬い物質が含まれていると、プレス盤が損傷する。そこで、プレス盤材質を変えて表面の損傷状況を比較し、傷が付きにくい材質を選定し、プレス盤の長寿命化によるシート性能の安定化を図る。また、プレス盤を低コストで容易に取り替えることが出来るメンテナンス方法を考案し、設計及び試作を行う。

【2-3】 放熱シートに密着性を付与する技術の開発（佐賀県窯業技術センター、株式会社PAT）

放熱シートの機能に関するニーズの一つに放熱シートと接触する部品（発熱源、放熱器）との間に高い

密着性を求められる場合があり、放熱シートの表面に粘着性の膜を形成することによって密着性を付与する技術の開発が求められている。その際、シート表面との良好な接着性を有すると共に、形成された粘着膜によって熱伝導率を低下させないことが前提となる。

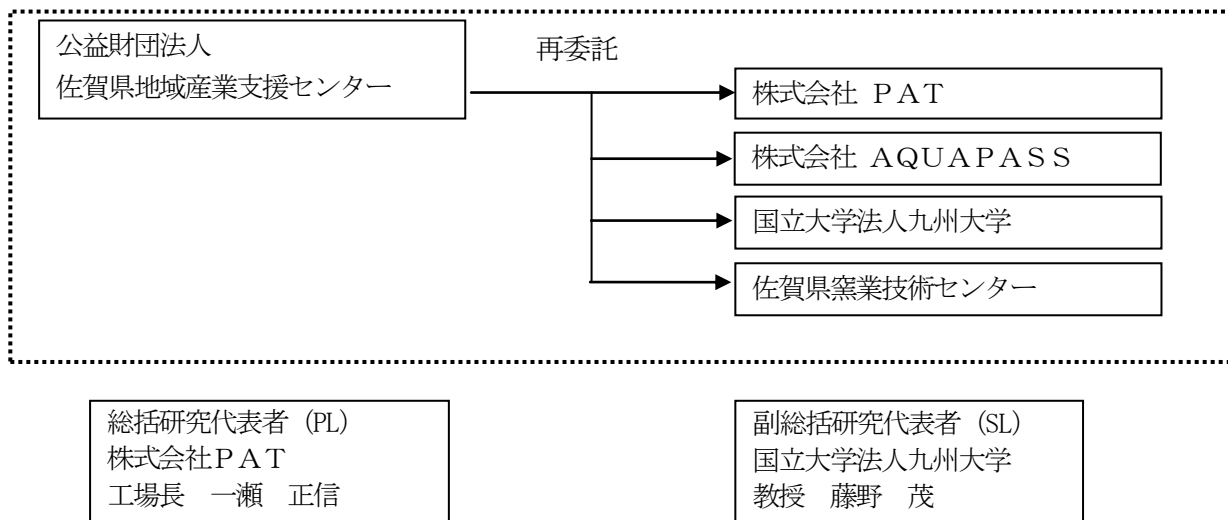
【3】プロジェクトの管理・運営（公益財団法人佐賀県地域産業支援センター）

推進委員会の開催、プロジェクト会議の開催等、当該プロジェクトが円滑に運営され、かつ目標が確実に達成できるように、参加研究機関と事業管理者との連携を密に図るとともに、プロジェクト全体の運営と進捗管理を行い、事業化へ向けた支援を行う。また、研究開発の実施内容を整理し、実績報告書や成果報告書の取りまとめを行う。

1-2 研究体制

(1) 研究組織及び管理体制

1) 研究組織（全体）



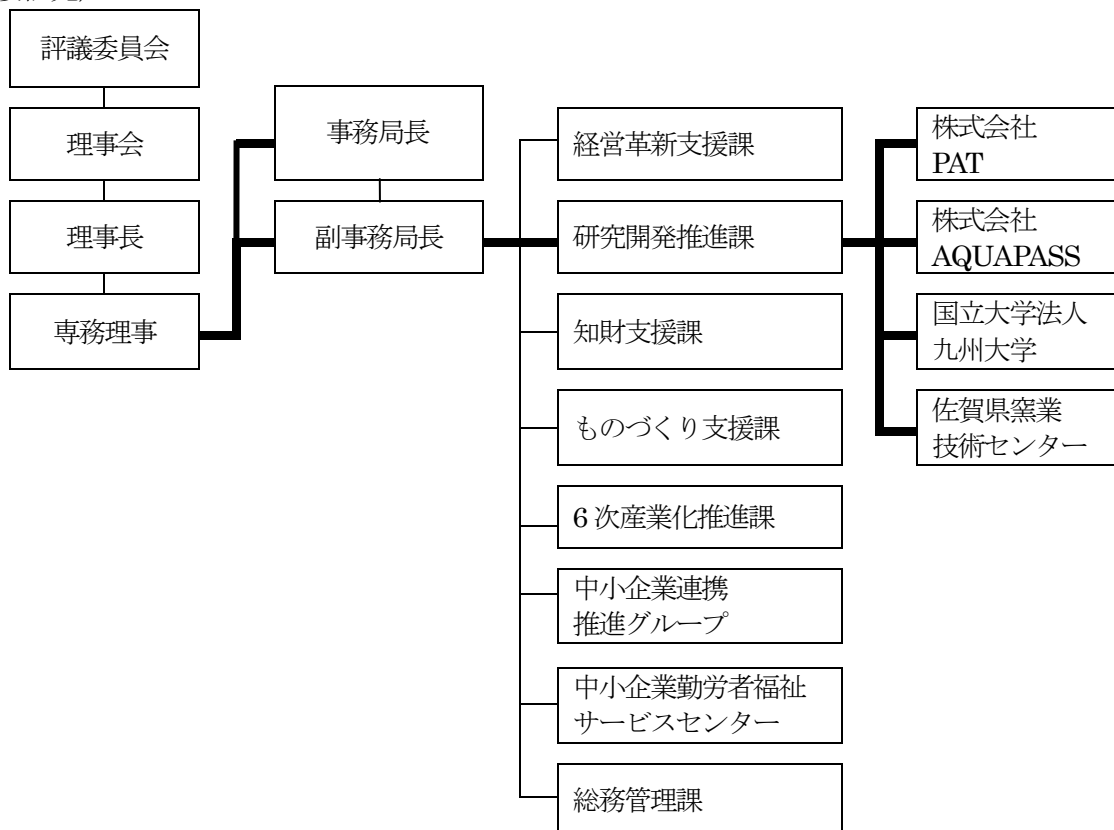
2) 管理体制

①事業管理者

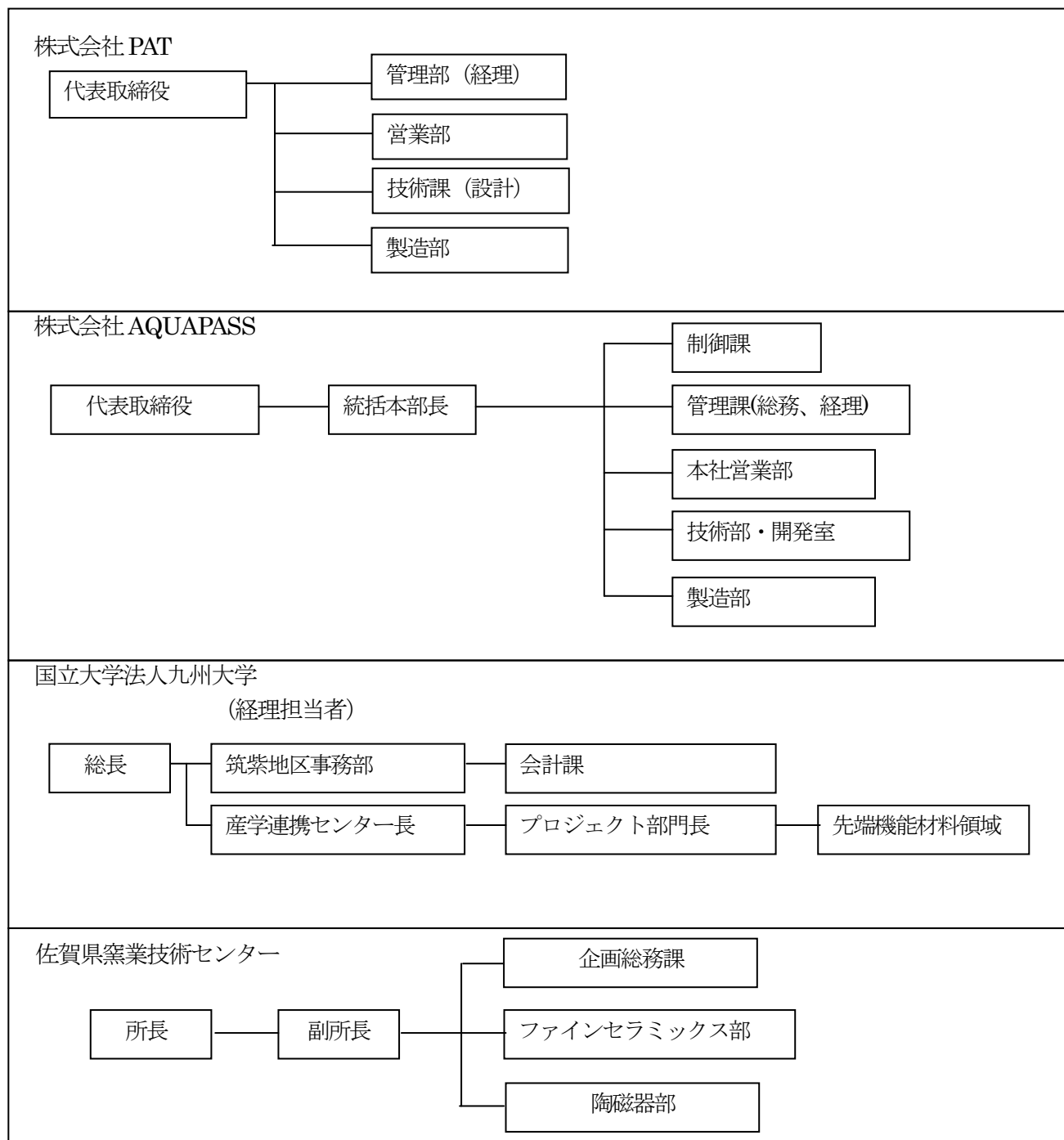
【公益財団法人 佐賀県地域産業支援センター】

再委託

②（再委託先）



②（再委託先）



(2) 管理員及び研究員

【事業管理機関】 公益財団法人佐賀県地域産業支援センター

①管理員

氏 名	所属・役職	実施内容（番号）
坂井 亨	副事務局長（研究開発推進課長兼務）	【3】
石川 真	研究開発推進課 主査	【3】
安田 誠二	研究開発推進課 科学技術コーディネータ	【3】
川原 美砂	研究開発推進課 嘱託	【3】

②【再委託先】※研究員のみ

株式会社PAT

氏 名	所属・役職	実施内容（番号）
栗田 澄彦	代表取締役社長	【1-1】、【2-1】
一瀬 正信	工場長	【1-1】、【1-2】、【2-1】、 【2-2】、【2-3】
小林 和輝	主任	【1-1】、【1-2】、【2-1】、 【2-2】、【2-3】

株式会社AQUAPASS

氏 名	所属・役職	実施内容（番号）
勝野 秀隆	開発室 室長	【2-2】
鳥巢 敬三	製造部 次長	【2-2】
永田 茂美	製造部 研究員	【2-2】

国立大学法人九州大学

氏 名	所属・役職	実施内容（番号）
藤野 茂	産学連携センター 教授	【1-2】

佐賀県窯業技術センター

氏 名	所属・役職	実施内容（番号）
川原 昭彦	ファインセラミックス部 部長	【2-3】

③協力者

推進委員会委員
(外部推進委員)

氏名	所属・役職	備考
鈴木 基之	富士高分子工業株式会社 常務取締役工場長	アドバイザー
藤井 昭弘	元株式会社東芝 取締役	アドバイザー
坂本 満	国立研究開発法人産業技術総合研究所九州センター 所長	アドバイザー

(内部推進委員)

氏名	所属・役職	備考
栗田 澄彦	株式会社PAT 代表取締役社長	委員長
一瀬 正信	株式会社PAT 工場長	PL <table border="1" data-bbox="1236 1030 1300 1075">委</table>
小林 和輝	株式会社PAT 主任	<table border="1" data-bbox="1236 1108 1300 1153">委</table>
鳥巢 敬三	株式会社AQUAPASS 製造部次長	<table border="1" data-bbox="1236 1187 1300 1232">委</table>
藤野 茂	国立大学法人九州大学 産学連携センター 教授	SL <table border="1" data-bbox="1236 1265 1300 1310">委</table>
一ノ瀬弘道	佐賀県窯業技術センター 所長	
川原 昭彦	佐賀県窯業技術センター ファインセラミックス部 部長	
徳島 都昭	公益財団法人 佐賀県地域産業支援センター 事務局長	

1-3 成果概要

【1】放熱特性向上のための素材に関する課題への対応

【1-1】素材の選択（株式会社PAT）

フッ素樹脂と親和性を有する各フィラーへの表面改質処理の中、Al₂O₃ と AlN について処理方法を確立することが出来た。Al₂O₃ の場合はシランカップリング剤系処理剤を選択し自社固有の表面処理法で対処できた。AlN の場合は耐水性 AlN 表面処理法を開発したが、高熱伝導化のためフィラー中の AlN 配合割合を高めるに伴いフィラーの分散性が悪化し緻密度が低下することが判明したので、新たな AlN 表面処理法を開発した。上記の耐水性表面処理法に対して新規処理法はフィラーの凝集を防ぐため撥水性を付与した処理法である。この新処理法により分散性が向上し AlN の充填が容易になり、緻密度の低下を伴わないで AlN 高充填が或る程度可能となった。

【1-2】高密度・高充填技術の開発（国立大学法人九州大学、株式会社PAT）

高密度充填メカニズムの解明は、熱伝導率向上の有効手段として、シート中のフィラー高充填、フィラーの適正粒度配合、フィラー中の AlN 高配合を追求する過程で作製された各サンプルの微細組織を SEM により評価するとともに、物性データ(密度、熱拡散率、比熱、体積分率、緻密度)を整理し、熱伝導率を支配する因子とその材料設計指針(粒子径、最適配合比)を明らかにすることを目的として解析を進めた。その結果、Al₂O₃ フィラー単味の場合はフィラーの体積分率と熱伝導率が正の相関を示し Al₂O₃ フィラー充填率 90wt% のときに 4W/m・K を達成した。一方、正の相関を示さなかった AlN/Al₂O₃ 複合の場合は一般に空隙が多く、特に空隙の形態(サイズ等)に熱伝導率が多少影響されることが判った。

シートの母材であるフッ素樹脂については、当初用いていたフッ素樹脂 F1 の屈曲性不足が判明し、平成 26 年度後半から耐熱性の高い他のフッ素樹脂 F2 及び F3 に変更することにより問題点を解消できたが、九州大学による詳細な観察によりフッ素樹脂 F1、F2、F3 の微細構造に違いが認められ、特に F3 は他の 2 種とは大きく異なり樹脂の繊維化が起きていることが確認された。繊維化により繊維間に微細空隙が生じ、これが熱伝導路を寸断する形となり熱伝導率向上を阻んでいることが確認された。F3 は繊維化により高強度を獲得出来る一方で、熱可塑性、分散性が低く熔融過程での粘性流動が低下し結晶化が進行することが判った。上述の様にフッ素樹脂の種類に起因する性能阻害要因が判明し、先ず最適樹脂探索を行う必要があり、樹脂特性と粒子間の緻密化設計を進めることにした。

【2】放熱シート製造法に関する課題への対応

【2-1】混合・塗布成形・熱圧着の最適条件の検討（株式会社PAT）

シート作製条件に関しては、混合機による混合、専用成形機による塗布成形、熱圧着機による熱間高圧プレス各工程の機器操作条件、手順、等の最適化を図り、シートの均一性、大判化を達成することが出来た。並行してサンプルワークを開始し、諸課題に取り組み、樹脂探索(フッ素樹脂の種類変更)により 250℃耐熱性不足の解消、表面粗さ改善による接触熱抵抗低減などの成果を得た。一方、耐電圧測定(目標値: 10kV/mm)、薄膜シート作製(目標: 100 μ m $\pm$ 15 μ m)については、緻密度改善が不十分であるため実施を延期した。

【2-2】プレス盤表面損傷防止技術の開発（株式会社AQUAPASS、株式会社PAT）

プレス盤材質を従来の炭素工具鋼から合金金型鋼に変えて表面の損傷状況を比較し、材質選定の妥当性を確認後、設計、試作を行った。新方式は従来の熱プレス盤を 2 分割方式(従来プレス盤研削+選定材質プレス板)とし、試作品を作り有効性評価を行った。その結果、全評価項目(1. 熱伝導性 2. 温度分布

3. 硬度維持 4. 変形・歪み 5. シート厚みへの影響) について許容範囲内の変化であり、その後の長期間経過後の観察評価に於いても問題なしと判断した。

【2-3】放熱シートに密着性を付与する技術の開発（佐賀県窯業技術センター、株式会社PAT）

フッ素ゴムを母材とし熱伝導性フィラーを充填した粘着材をフッ素樹脂シート上に膜形成する。フィラーを高充填してもシートとの適度な接着力を保持する粘着材を開発し、350 μ m 厚のフッ素樹脂シート上に 100 μ m 厚みで上記の粘着材を塗布した試作品を作り性能評価した。この放熱シートの表面は触感で十分な密着性があり、放熱素材としても比較的高い 1.92W/m $\cdot$ K の熱伝導率を有する放熱シートである。

（ベースの 350 μ m 厚のフッ素樹脂シートは 2W/m $\cdot$ K の熱伝導率であるので上記粘着膜による熱伝導率低下は殆ど無い。）

【3】プロジェクトの管理運営（公益財団法人佐賀県地域産業支援センター）

事業推進委員会の開催、プロジェクト会議の開催等、当該プロジェクトが円滑に運営され、かつ目標が確実に達成できるように、参加研究機関と事業管理機関との連携を密に図るとともに、プロジェクト全体の運営と進捗管理を行い、事業化へ向けた支援を行った。また、研究開発の実施内容を整理し、中間評価資料、実績報告書、及び成果報告書の取りまとめを行った。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

公益財団法人佐賀県地域産業支援センター 副事務局長／研究開発推進課 課長

坂井 亨

- ・住所；〒849-0932 佐賀市鍋島町八戸溝 114
- ・電話；0952-34-4413
- ・FAX；0952-34-4412
- ・E-mail；sakai@mb.infosaga.or.jp

第2章 本論一 (1)

2-1 放熱特性向上のための素材に関する課題への対応

本研究開発の放熱シートは、フッ素樹脂を母材として熱伝導性無機フィラーを充填した複合体であるが、フッ素樹脂は他の物質と濡れ難い性質を持っているのでフィラーとの混合性が極めて悪い。従って、フッ素樹脂との親和性を持たせるため無機フィラーに表面改質処理を行う必要がある。また、熱伝導率向上のためには熱伝導性フィラーを高密度充填する必要がある。シートの柔軟性、密着性は、フッ素樹脂によって与えられるが、耐熱性の高いフッ素樹脂数種類を使用し各々の使用条件の検討、優位性の確認を行う。

2-2 目的と目標

シート母材は耐熱性フッ素樹脂 F1、F2、F3 の3種類、熱伝導性付与材は熱伝導性を有する無機フィラー(Al₂O₃、BN、AlN 等)にフッ素樹脂との親和性を持たせるために表面改質処理を施し、処理剤の種類、配合割合、混合方法などの条件最適化を図る。

母材のフッ素樹脂に無機フィラーを充填する際、フィラー充填率を引き上げるほど熱伝導率が高くなる反面、シートとして必要な柔軟性が極度に低下する。そこで効果的に熱伝導率を高めるために、シートの熱拡散率、熱抵抗値、比熱、熱伝導率、密度等の物性データを集計し体系化すると同時に、SEM による微細組織の評価を行ない、フッ素樹脂シートに於ける熱伝導のメカニズムを解明する。また、フッ素樹脂の種類の違いに起因する緻密度の変化、物性値への影響等を考察する。

最終的に、熱伝導率 $5\text{W/m}\cdot\text{K}$ 、耐熱温度 250°C を達成する。

2-3 実験方法

(1) 素材の選択

フィラーの選定とその表面処理

(株) PAT が保有する表面改質処理技術を用いて、一定量のフィラーの種類、粒径別に表面処理を施す。上記フィラーをフッ素樹脂に調合し、各試料作製工程を経て試料を作製する。各試料作製過程での混合性、成形性、離形性及び熱圧着後のシートの特性等を比較検討し、フィラーの選定、最適な処理剤選別、添加水準決定等を行う。

フッ素樹脂の選定

耐熱性フッ素樹脂 F1、F2、F3 の耐熱性を評価するために、TG 熱分析、長時間耐久屈曲性試験を行い、比較検討する。上記の屈曲性試験は、各種サンプルを一定時間炉中保持(250℃)後、屈曲数を比較する。屈曲数は図 2-1 に示す通り、試料を 2 枚の金属平板で挟み片側に 180° 折り曲げ逆方向と交互に破断するまで繰り返し、破断する迄の回数を屈曲数とする。屈曲数 20 回以上は 20 回とする。

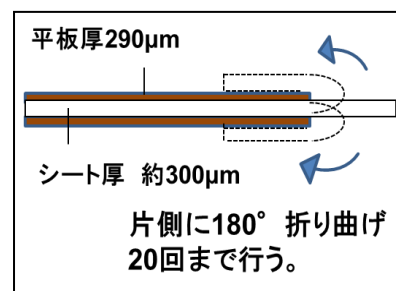


図 2-1 屈曲数の定義

(2) 高密度・高充填技術の開発 【文献-1、-2、-3、-4】

＜高密度充填メカニズムの解明＞

熱伝導率を支配する物性因子の究明ならびに高密度充填設計指針の確立

○熱伝導率の定義：熱伝導率とは温度勾配によって物質中を流れる熱としてのエネルギー伝達量である。

図 2-2 の式で示す様に、熱伝導率は密度と比熱と熱拡散率の積で与えられる。

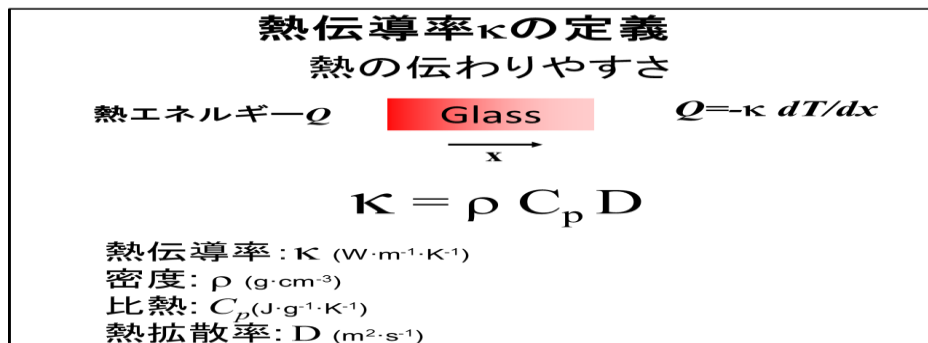


図 2-2 熱伝導率の定義

物性データの解析の手順・方法

シートの熱拡散率、比熱、密度等の物性データを集計し体系化する。即ち、各物性値毎に熱伝導率との相関図を作成し、また緻密度、フィラー体積分率を算出し熱伝導の理論モデルとの比較を試み、熱伝導率に影響を与える物性因子の解析を進める。同時に SEM により微細組織を評価し、フッ素樹脂シートに於ける熱伝導のメカニズムを解明する。

<熱伝導率目標値 ($5\text{W/m} \cdot \text{K}$) に対する達成度>

フィラーを配合した複合体の熱伝導に関する理論モデル

理論モデルの一例として Bruggeman の式（用語の解説 参照）があるが、高熱伝導化には、樹脂自体の熱伝導を高めること、高熱伝導性フィラーを高充填することが必要とされている。Bruggeman の式においてフィラー体積分率と複合材熱伝導の相関を見ると、フィラーの体積分率が約 70%を超える領域から熱伝導率が急上昇することが判る。フィラーが少ない領域ではフィラーの周辺を樹脂が覆う構造となり樹脂の熱伝導率が支配的となるのに対し、70%を超える領域からはフィラー粒子が最密充填構造に近くなり、フィラー粒子同士の接触による熱伝導パスが形成されることに起因する。

フィラーに関する（株）PAT の基礎研究の知見

フィラーを樹脂中に高密度に充填するためには、第一に球状粒子のフィラーを用いることが重要である。容器中に均一等大の球を最密充填した場合の体積分率は理論上約 74%であり、現実的には更に低い。このため、粒子径の異なる粒子を一定比率で混合し、大粒子間の間隙に小粒子が入り込む構造として充填密度を高める様にする。この場合の最大の充填率が得られる混合割合（粒度配合比）は大粒子：小粒子＝7：3で、粒径比が大きくなるにつれ充填密度が上がる。

（株）PAT の基礎研究でも、2 種類の球状粒子（平均粒径 $50\mu\text{m}$ と $5\mu\text{m}$ ）を配合比 7:3 とすることで良好なシート性と熱伝導率を得ることが出来たが、フィラー充填率が 80wt%位に高くなると、熱伝導率のバラツキが大きくなる傾向がみられ、粒度配合比の不適合がその一因である。

フィラーに関する熱伝導率向上の有効手段・実験方法

作製条件を変化させながら、シート中のフィラー高充填化、フィラーの適正粒度配合、フィラー中の AlN 高配合化を進め、物性値（緻密度、熱伝導率）との相関性を検討し熱伝導率向上を図る。同時に、試料表面、断面の微細組織をフィラー凹凸システム（用語の解説参照）、SEM により評価する。

また、フッ素樹脂の種類の違いに起因する緻密度の変化、物性値への影響等を検討し、熱伝導率最終目標 $5\text{W/m} \cdot \text{K}$ 、耐熱温度 250°C 達成を目指す。

2-4 実験結果

(1) 素材の選択

フィラーの選定とその表面処理

○A1203 フィラー：非極性のシランカップリング系処理剤 F1 で表面処理した A1203 フィラーとフッ素樹脂ディスページョンによるスラリーの混合性・成形性・離形性は各試料中で比較的良好であり、熱圧着したプレス体のシート性（強度、柔軟性、均一性、外観ムラ）に関しては最も優れていた。F2、F3 の場合も上記の F1 と同様の結果で、いずれも処理剤添加水準は 0.5～1.5%（平均粒径 1～50 μm ）が適量であった。

○AlN フィラー：数種の無機系、有機系の処理剤を試したが、フッ素樹脂との親和性が良くなかったため、多糖類処理剤を用いて耐水性を付与し更にシランカップリング処理した新規な処理法を開発し、良好な試験結果を得た。これを用いてシート開発を進めたが、上記処理法による AlN フィラーを高配合するに伴いスラリー中に凝集が見られたので、撥水性を主体にしたシランカップリング処理に変更し、スラリーの分散性を改善した。F2、F3 の場合も上記の F1 と同様の結果で、いずれも処理剤添加水準は 2～6%（平均粒径 1～50 μm ）が適量であった。

図 2-3 は、耐水性を重視した従来表面処理、撥水性を重視した新表面処理 AlN を用いて作製したシートの粗粒近傍を高倍率観察した写真である。従来処理の方は粗粒周囲の空隙が大きいですが、新処理の方は粗粒周囲が樹脂で埋まっており、粗粒表面を見ても樹脂が覆っており粗粒と樹脂の親和性が改善していることが観察できる。

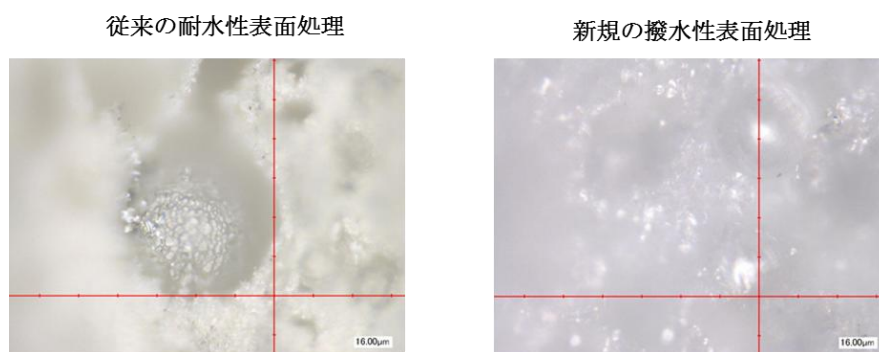


図 2-3 新旧表面処理によるシートの AlN 粗粒近傍の高倍率写真

○BN フィラー：シランカップリング系処理剤で良好な混合性・成形性を示したが、フィラー低充填率、シート性に於いて低強度、低柔軟性、外観ムラなどの問題があり、また、熱圧着方式に起因する低性能（BN 扁平粒子がシート面方向に配向し、厚み方向は低熱伝導）など難易度の高い課題が多く、高価材料でコスト的に不利であるため、BN は本研究開発のシート用フィラーから除外した。

フッ素樹脂の選定・耐熱性評価

○TG 熱分析：図 2-4 に各種サンプルの TG 熱分析の測定結果を示す。シリコーン系（A、B）とフッ素系（F1、F2、F3）には重量減開始温度に大きな差があるが、フッ素樹脂の中でも F1 より F2、F3 の重量減開始温度がかなり高い。

○長時間耐久屈曲性試験の結果及び考察

図 2-5 に各種樹脂シートの屈曲数変化及び折曲げ部分の損傷程度の比較写真を示す。10 時間保持までは、F2、F3、A、B のいずれにも屈曲数の低下は見られないが、25 時間では A が著しく低下した。残り F2、F3、B は

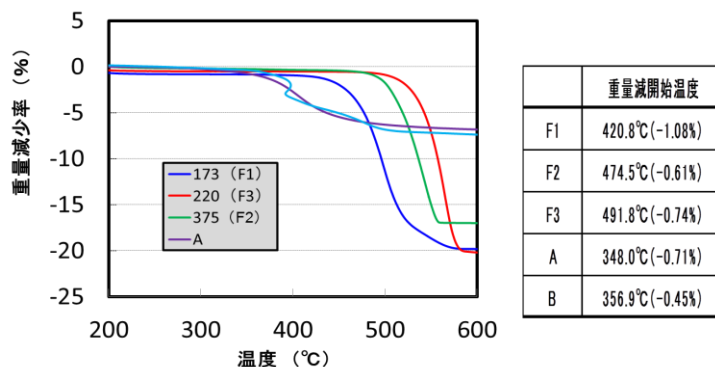


図 2-4 各種樹脂シートの TG 熱分析比較
（フッ素樹脂 F1、F2、F3、A 社、B 社）

一見すると 100 時間保持に於いても屈曲数の低下は無い様に見えるが、100hr 保持サンプルの損傷部を観察(凹凸システムによる)すると、明確な差異が認められた。即ち、F2、F3 の損傷は浅く短い亀裂に留まるが、B は内包する繊維組織は健全であるが母材のシリコーン樹脂部分は殆ど断裂状態に近くフィラー粒子の脱落も多くみられた。従って、シリコーン系シートに比べ F2、F3 は耐久性に於いて格段に優っており、熱的及び電氣的性能等の劣化速度が大幅に小さくなると思われる。F2、F3 の耐熱性は目標値 250℃を十分に達成したと評価できる。

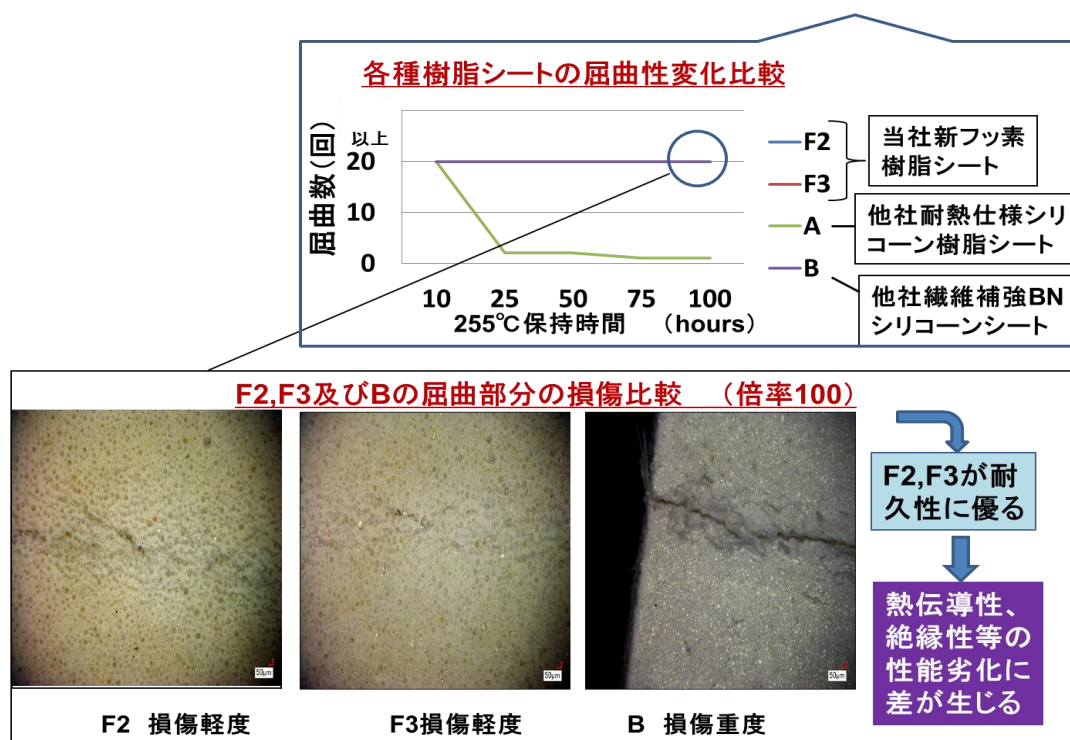


図 2-5 各種樹脂シートの屈曲性比較試験
(保持時間：0～100 時間、温度 255℃)

(2) 高密度・高充填技術の開発

<高密度充填メカニズムの解明>

A1203 フィラー単味における解析結果及び考察

図 2-6 に示す様に、A1203 の体積分率が 80%前後から熱伝導率の加速度的増大傾向が見られ、理論モデルに概ね合致する。しかし体積分率 83%の試料 8 個の熱伝導率が大きくばらついている。熱伝導率が高い試料群①～④(赤丸)には $0.3\mu\text{m}$ の微粒子が入っており、低い残り 4 個(青丸)には入っていない。一方、①～⑥の断面を SEM 観察し空隙にどのような違いがあるか検討した。表 2-1 に①～⑥のサンプル内容、図 2-6 に各々の SEM 写真の比較を示す。(平均粒径：粗粒 50μ / 細粒 5μ / 微粒 0.3μ) その結果、

- ・①～③群と④～⑥群を比較すると、前者は空隙が少なく熱伝導率が高い、後者は空隙が多く熱伝導率が低く大きくばらついている。特に⑥の空隙は大きい。
- ・粒度配合が類似した①～⑤(微粒入り)と極端に異なる粒度配合の⑥(微粒無し)を比較すると、前者は概ね熱伝導率が高い、後者は空隙が大きく熱伝導率が低い。

即ち、空隙と熱伝導率は正相関しており、微粒が空隙を効果的に埋め、特に巨大な空隙の形成を阻んでいることが判った。

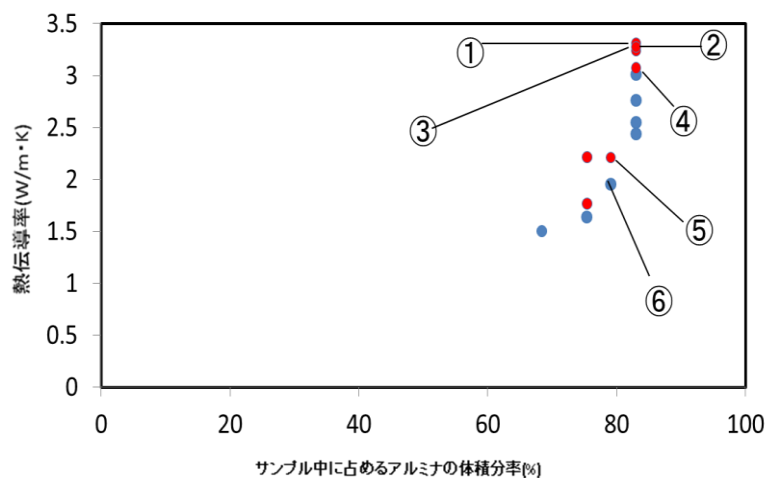


図 2-6 Al₂O₃ の体積分率と熱伝導率の関係

表 2-1 Al₂O₃ フィラーのシートサンプル (①～⑥)

	サンプルNo	体積分率(%)	Filler/Resinwt%比	粗粒粒径	粗粒/細粒 w.t.比	熱伝導率
①	表2 0305-5	83.0	90/10	50 μ	4/5.5/0.5	3.314
②	表3 20130226-8	83.0	90/10	50 μ	5/4.5/0.5	3.275
③	表3 20130226-7	83.0	90/10	50 μ	6/3.5/0.5	3.238
④	表3 20130226-6	83.0	90/10	50 μ	5/4.5/0.5	3.075
⑤	表1 151	79.1	87.5/12.5	50 μ	4/5.5/0.5	2.211
⑥	表1 150	79.1	87.5/12.5	50 μ	7/3	1.955

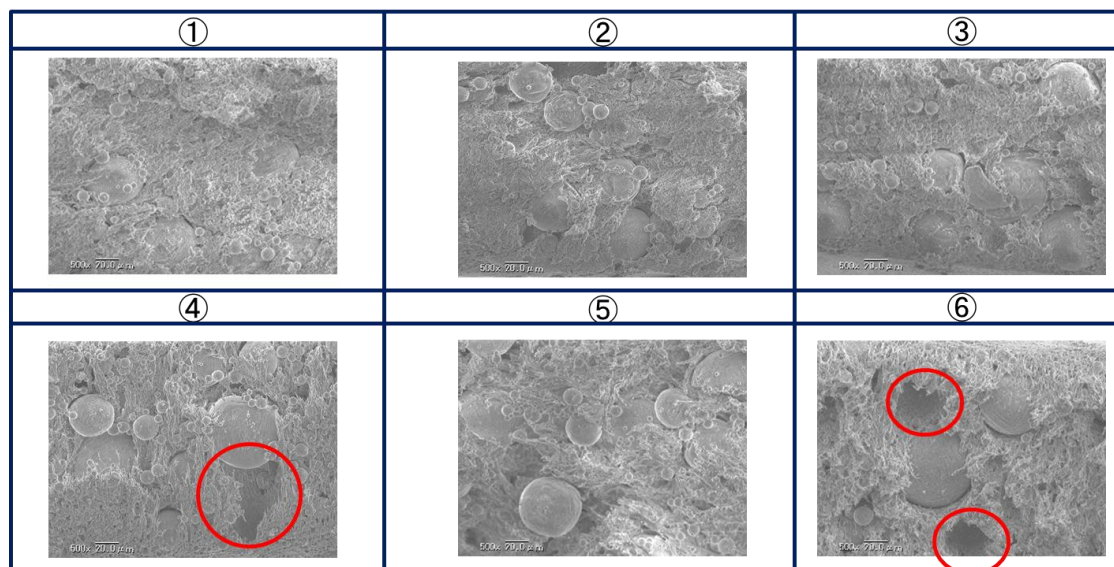


図 2-7 Al₂O₃ フィラーのシートサンプル (①～⑥)

Al₂O₃ フィラー単味に於いて、フッ素樹脂 F1、F2 では図 2-6、図 2-7、表 2-1 の傾向を示すが、F3 では理論モデルに合致しない。F3 では粗粒周囲に空隙が多く生じ、F2・F3 混合では少なくなる。また、F1、F2 では面方向の物性値バラツキは小さく均一性を有するが、F3 では各物性値と熱伝導率との相関不明瞭かつ空隙分布のバラツキが大きい。これは、F1 と F2 では直接的に空隙や表面粗さが熱伝導を左右するのに対し、F3 での熱伝導メカニズムは別の熱伝導影響因子が存在することを示唆している。

A1N/A1203 複合フィラーにおける解析結果及び考察

A1N/A1203 複合フィラーに於いても前項の A1203 単味フィラーと類似の傾向（フッ素樹脂 F1、F2 では理論モデルに合致、F3 では合致せず）を示したが、F3 では空隙形成がより顕著であった。そこで、フッ素樹脂 F2・F3 混合で A1N/A1203 複合フィラーのシートを作製・評価したところ、F3 単独よりも緻密度が上昇した。図 2-8 に、従来の耐水性表面処理を施した A1N フィラーを高配合した場合のシートの緻密度の変化を示す。フィラー中の A1N 配合割合が増すと共に緻密度低下、更にシート中のフィラー充填率が高くなるのに伴い緻密度低下を招いた。素材の選択の項で述べた様に、上記耐水性表面処理はスラリーの分散性が不十分であるので、撥水性を付与した新表面処理 A1N に替えた処、図中の青丸の様に緻密度が向上した。図 2-9 に F3 単独と F2・F3 混合の比較写真を示す。F2・F3 混合の方が F3 より緻密化し、新 A1N 表面処理により更に緻密化している。

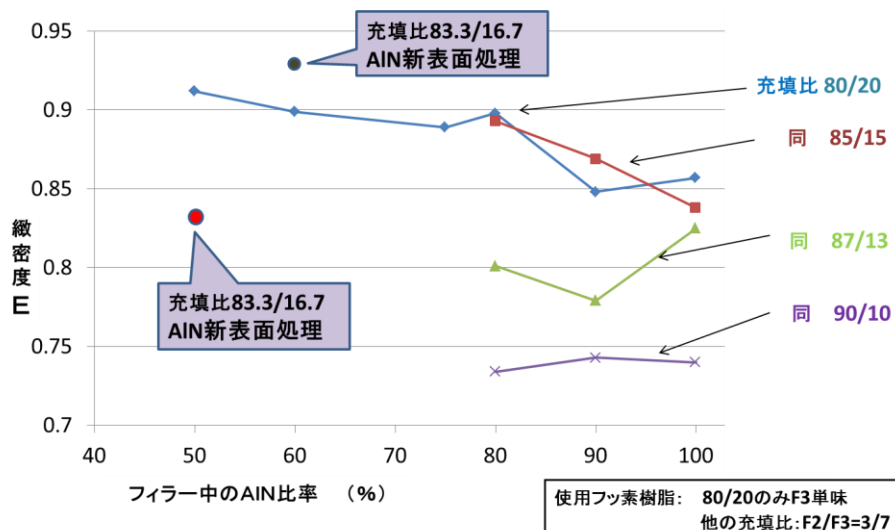


図 2-8 フィラー中の A1N 配合割合と緻密度との関係

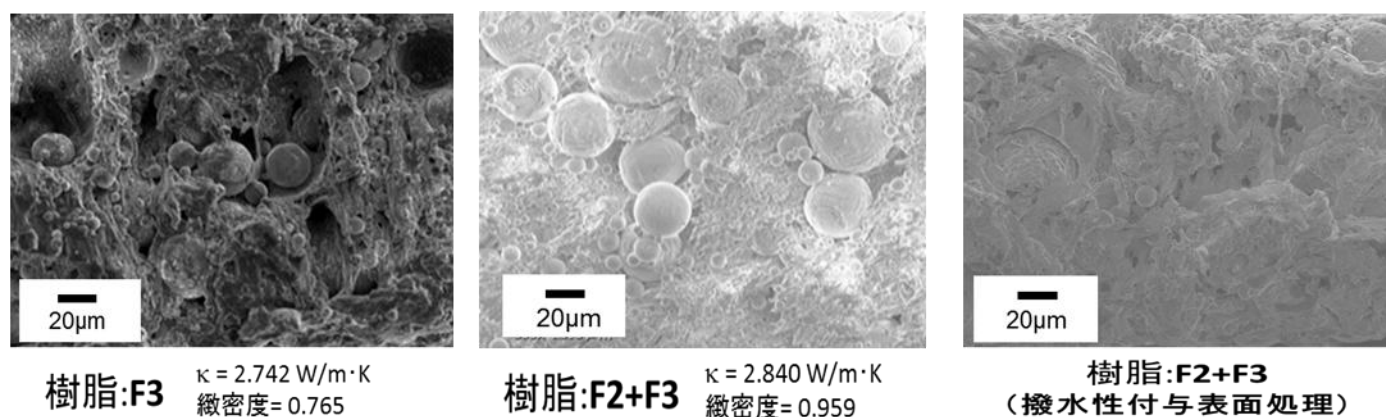


図 2-9 フッ素樹脂 F3 単独と F2・F3 混合(3 : 7) とのシート断面 SEM 像比較
(at A1N/A1203 複合フィラー、 フィラー充填率 85%)

各フッ素樹脂シートの特徴に関する比較・考察

図 2-10 に各フッ素樹脂の特徴を整理した。

シート構成材料の中、熱伝導率影響因子はフィラーであるが、樹脂の影響も種類によりシートの組織構造が大きく異なるので、極めて大きいことが判った。最も高い耐熱性を有する F3 は、樹脂の繊維化に伴い強固な樹脂ネットワークを形成し、シート強度、屈曲性、耐熱性が大きく向上する反面、無数の空隙が生じ熱伝導向上を阻害する。F1、F2 は熱可塑性を有し比較的分散性が良いが、F3 は非常に分散性が低く、混合・成形が困難である。特に、繊維間に取り残された空隙は除去が難しくフィラーの連結（熱伝導路）を寸断し、熱伝導率の向上を阻害する。F1 は耐熱性が低く対象外であるが、F2、F3 の単味では熱伝導率等の高い性能が得られない。故に、F2 と F3 の複合が適当と考える。

まとめ

図 2-11 に F2、F3、A1N の相関性を整理した。

限定的なフィラー充填率（シート中の 80～85%）の下で熱伝導率を向上するには、高熱伝導性フィラー（ここでは A1N）を多くすることが有効と考えられるが、A1N と Al2O3 の密度の違いからフィラー中の A1N 比率が大きくなるにつれ比表面積が増大しスラリー粘度上昇による混合不良を招き、A1N 比率 70%以上ではスラリー作製が困難となる。一方、緻密度は F2、F3 の単味よりも F2・F3 混合の場合が向上した。F2 単独の場合は熱圧着により溶融した樹脂がフィラー周縁に適切に溶け込む半面、樹脂ネットワーク形成が弱く巨大空隙が残留し易く、F3 の場合はフィラーを取り込んだ繊維化による樹脂ネットワークが適度に形成される反面、繊維間または粗粒周縁部に空隙が残留し易いことが考えられる。F2・F3 混合は互いに補完し合うことにより緻密度向上をもたらすと思われる。故に、図 2-11 の青部分、特に紺青部分が熱伝導率向上を期待できる適正配合領域と推測する。

＜熱伝導率の年度目標値（5W/m・K）に対する達成度＞

シート中のフィラー充填率 80～85%に於いて、A1N/Al2O3 複合フィラーの場合はフィラー中の A1N 比率 50～70%領域の熱伝導率が比較的高く平均 3W/m・K 以上（緻密度 0.9～0.95）を示し、Al2O3 単味の場合は平均 2 W/m・K 以上（同上）である。

【用いるフッ素樹脂の種類が変わることで、緻密度が異なる】

	F1	F2	F3
熱伝導率傾向	高い	高い	低い
メリット	・熱可塑性が高い ・分散性：高い	・熱可塑性が高い ・分散性：中位 ・耐熱性：高い	・高強度 ・耐熱性：高い
デメリット	・低強度 ・耐熱性：低い ・低密度	・中強度 ・耐熱性：中程度 ・低密度	・樹脂の繊維化 ・熱可塑性が低い ・分散性：低い 溶融、冷却過程において、粘性流動が低下→結晶化が起こる

【熱可塑性による熱伝導率への影響】

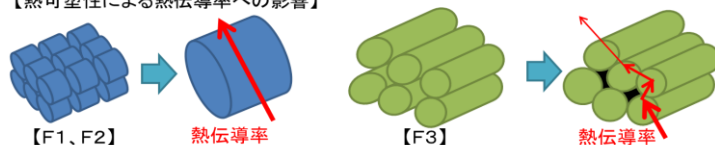


図 2-10 フッ素樹脂 F1、F2、F3 を用いたシートの特徴

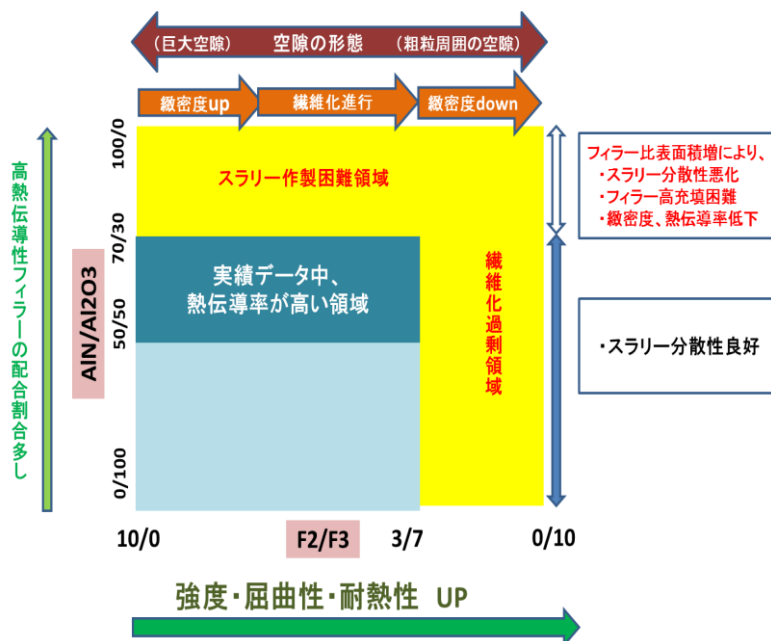


図 2-11 フッ素樹脂 F2、F3 及び A1N 間の相関性モデル

2-5 研究成果と今後の課題

(1) 素材の選択

1) 研究成果

Al2O3 の表面処理はシランカップリング剤を選択し自社固有の表面処理法で対処できた。AlN の表面処理は新撥水性表面処理法を開発し分散性が向上、フィラー中の AlN 充填割合 50~70%の範囲で緻密度低下を招かないことを確認した。フッ素樹脂 F2 及び F3 の使用により 250℃耐熱性を達成できた。

2) 今後の課題と取組

AlN の表面処理については、更に AlN 高配合 (AlN 充填割合 70%以上) が可能となる様に、上記処理法の改善、新たな処理方法を検討したい。

(2) 高密度・高充填技術の開発

1) 研究成果

Al2O3 フィラー単味の場合はフィラーの体積分率と熱伝導率が正の相関を示し Al2O3 フィラー充填率 90wt%のときに $4\text{W/m}\cdot\text{K}$ を達成した。一方、正の相関を示さなかった AlN/Al2O3 複合の場合は一般に空隙が多く、特に空隙の形態 (サイズ等) に熱伝導率が多少影響されることが判った。

フッ素樹脂探索の結果、熱可塑性の高低により樹脂ネットワークの形成が異なり、特に F3 は繊維化により高強度を獲得出来る一方で、繊維間に生じる微小な残留空隙により熱伝導路が寸断され、緻密度が向上しても熱伝導率が余り向上しないこと、F3 単味よりも F2・F3 混合は補完的に作用し緻密度が向上することが判った。

2) 今後の課題と取組

熱伝導率の実績は $3.3\text{W/m}\cdot\text{K}$ に留まり、サポイン終了後の補完研究で、新表面処理による AlN 高充填及びその熱伝導メカニズムの解明、F2 と F3 の混合比最適化等を図り、熱伝導率 $5\text{W/m}\cdot\text{K}$ を必ず達成したい。

【参考文献】

- 1) 【放熱・高熱伝導材料・部品の開発と特性および熱対策技術】：技術情報協会 電子図書館
- 2) 初歩から学ぶフィラー活用技術：工業調査会 2003 年初版
- 3) 放熱材料の高熱伝導化および熱伝導性の測定・評価技術：技術情報協会 2003 年
- 4) コンポジット材料の混練・コンパウンド技術と分散・界面制御：技術情報協会 2013 年初版

【用語の解説】

○フィラー凹凸判定システム：

計測機能を有する高倍率マイクロスコープ

＜主要機能＞

1. (シート) 表面のマイクロスコープ観察
2. (シート) 表面のフィラー凹凸計測
3. (シート) 表面のフィラー分布計測



○緻密度：シートの空洞欠陥や気泡、表面粗さの程度の比較用として、独自に設定した指標。

- ・緻密度 = シート実測密度 / シート計算密度
- ・シート計算密度 = シートを構成する各材料 (フィラーとフッ素樹脂) の密度から算出した密度 (空隙無く表面なめらかで、フィラーとフッ素樹脂だけで構成された緻密体シートの密度) (計算例) フィラー密度 ($\rho 1$) = 3.99g/cm^3 、フッ素樹脂 ($\rho 2$) = 2.16g/cm^3 、計算密度 ($\rho 3$)

充填(重量)比：フィラー/フッ素樹脂(=p1/p2)=0.8/0.2 とすると、
 $(1/\rho_3)=(1/\rho_1) \times p_1 + (1/\rho_2) \times p_2 = (1/3.99) \times 0.8 + (1/2.16) \times 0.2 = 0.2931$
 $\therefore$ シート計算密度 $\rho_3 = 1/0.2931 = 3.41 \text{ g/cm}^3$

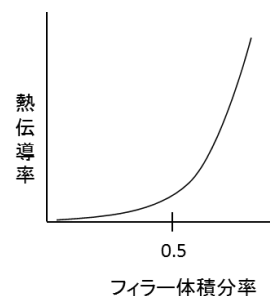
○Bruggeman の式：フィラーを配合した複合体の熱伝導モデルの一つで、①樹脂とフィラーの熱伝導率、②複合体樹脂中に占めるフィラーの充填率、③フィラー継承(球状)及びサイズの効果、④近接フィラー間の温度分布の影響が考慮されている。

$$1-\phi = (\lambda_c - \lambda_f) / (\lambda_m - \lambda_f) \times (\lambda_m / \lambda_c)^{1/3}$$

ϕ ：フィラーの体積分率 λ_c ：樹脂の熱伝導率

λ_f ：フィラーの熱伝導率 λ_m ：樹脂-フィラー複合体の熱伝導率

フィラー添加量が少ない領域では熱伝導率の上昇は少なく、これはフィラーの周辺を樹脂が覆う構造となる結果、その樹脂の熱伝導率が支配的になるためと考えられる。また、フィラーの体積分率で約 70vol%を超える領域から熱伝導率が急上昇することが分るが、この領域はフィラー粒子が最密充填構造に近くなり、フィラー粒子の接触による熱伝導のパスが形成されることに起因する。



○TG 熱分析：(熱重量分析 Thermogravimetric Analysis 略号 TGA)

温度を変化させながら、又は一定の温度に保って、試料の重量変化を連続的に測定する方法。脱水・分解・酸化・還元等の化学変化、昇華・蒸発・吸脱着など質量変化を伴う物理変化の検出に利用され、変化前後の重量差(減量率)を求めることにより定量的測定が可能となる。装置は熱天秤とも呼ばれ、DTA (示差熱分析)、ガスクロマトグラフィ、質量分析計などの分析装置と組み合わせた複合型としても使われる。

第3章 本論— (2)

3-1 放熱シート製造法に関する課題への対応

従来の放熱シートの製造方法は押出成形法が用いられているが、フッ素樹脂は他の材料に非常に濡れ難く押出成形では作ることが難しい。そのためフッ素樹脂を母材として成形できる新技術として、プラスチック成形に用いられている熱圧着法を採用した。先ず、その製造条件を確立する必要がある。更に、熱圧着法では硬いフィラーを挟むため熱圧着機のプレス盤の表面が損傷し易く、その防止対策が必要である。また、放熱シートの機能に関して、放熱シートと接触する部品（発熱源、放熱器）との間は隙間無く接触することが必要で、シートに密着性を付与する技術が求められる。

3-2 目的と目標

熱圧着法の主要工程である混合、塗布成形、熱圧着に於いて、混合機による混合、専用成形機による塗布成形、熱圧着機による熱間高圧プレス of 各々の操作条件及び作業手順を確立し、均一かつ大判サイズ(A4 サイズ以上)のシートを作製する。熱的特性の向上以外に、耐電圧 10kV/mm 以上の緻密シートや 100 μ m $\pm$ 15 μ m 以下の薄膜シート作製も目標とする。熱圧着機のプレス盤表面損傷防止についてはその損傷程度の軽減対策、低コストで取替え容易なメンテナンス方法を考案し効果を実証する。シートの密着性付与については放熱シート表面に粘着膜を形成することにより実現する。その際、シート表面との良好な接着性を有しかつ熱伝導率を低下させないことが必須であり、最終的には開発した粘着材を(株)PAT 作成の放熱シート上に実際に塗布し、密着性が付与された試作シートとしての総合評価(密着性、熱伝導率)を行う。

3-3 実験方法

(1) 混合・塗布成形・熱圧着の最適条件の確立

シート作製条件に関しては、先ず混合機による混合、専用成形機による塗布成形、熱圧着機による熱間高圧プレス of 各工程の機器操作条件、手順、等の最適化を図る。同時に、シートの均一化(肉厚、物性値バラツキ)、大判サイズ(A4 サイズ以上)シートの作製条件、緻密度改善により耐電圧目標(10kV/mm 以上)の達成及び薄肉(膜厚 100 $\pm$ 15 μ m 以下)シート作製条件を確立する。並行して商品化に近づけるためにサンプルワークを開始し、顧客ニーズの把握に努める。

(2) プレス盤表面損傷防止技術の開発

熱圧着時に無機フィラーの様な硬い物質が含まれていると、プレス盤が損傷する。そこで、プレス盤材質を変えて表面の損傷状況を比較し、傷が付きにくい材質を選定し、プレス盤の耐久性を改善しシート性能の安定化を図る。また、プレス盤を低コストで容易に取替え可能なメンテナンス方法を考案し、選定材質の妥当性を実験的に確認後、設計及び試作を行う。実機にて下記項目の有効性評価試験を行う。

評価項目： 1. 熱伝導性 2. 温度分布 3. 硬度維持 4. 変形・歪み 5. シート厚みへの影響

(3) 放熱シートに密着性を付与する技術の開発

フッ素ゴムを母材とし熱伝導性フィラーを充填した粘着材をフッ素樹脂シート上に膜形成する。そのために、適切な材料の選定(フィラー、ゴム)、フィラーの最適粒度配合、フィラーを高充填しても適度な接着力を保持する粘着材を作製する。最終的に、左記の最適条件にて作製した粘着材をシート上に一定膜厚に形成し、母体シートと一体化した放熱シートとしての性能(密着性、熱伝導性)を評価する。

3-4 実験結果

(1) 混合・塗布成形・熱圧着の最適条件の確立

混合機による混合は、材料の分別混合方式(フィラー粒径別に小粒子から順に混合する)が良好な混合性を示し最適操作条件確立した。専用成形機による塗布成形は適度な塗布速度(治具の進行速度)、気泡巻き込み防止、成形後の生成形体の急乾燥を避けること等が重要である。更に、大判サイズの成形は治具の疵、変形を招かない様に保守点検を厳密にする必要がある。緻密度向上の為に、上記の塗布成形以外の成形法の可能性を検討した。スラリー塗布成形では水分量が多いため水分蒸発後の気孔が熱圧着後も残留し、緻密度が中々向上しない。故に、水分量が比較的少なくて済む坯土方式を検討し、実験可能な押出成形法を試すこととした。押出成形は佐賀県窯業技術センターのセラミック用押出成形機を用いた。その結果、押出成形は、潤滑剤をはじめ成形助剤研究が必要で坯土作製に長期間を要するので、現状での取り組みは断念し補完研究で再度検討することにした。

熱圧着は、加圧温度、加圧時間、加圧力等の条件最適化を図り作業手順を確立した。並行してサンプルワークを開始し、諸課題に取り組み、樹脂探索(フッ素樹脂の種類変更)により 250℃耐熱性不足解消、表面粗さ改善により接触熱抵抗低減などの成果を得た。一方、耐電圧測定(目標値: 10kV/mm)、薄膜シート作製(目標: 100 $\mu\text{m} \pm 15 \mu\text{m}$)については、緻密度改善が不十分であるため実施を延期した。

(2) プレス盤表面損傷防止技術の開発

従来のプレス盤の材質を調査した処、SK 材(炭素工具鋼)であることが判明した。炭素工具鋼は高 C% で高硬度を獲得しているものであり、本研究の使用条件(室温~300℃前後の熱サイクル)では焼き戻し脆性により劣化が速いと思われる。傷が付きにくい材質を検討した結果、焼き戻し温度が高い熱間金型鋼(合金)を選定し、実機にて評価を行い新材質として妥当と判断した。一方、メンテナンスを容易にするため、従来のプレス盤の構造を2分割方式(従来プレス盤研削+プレス板)に変え、プレス板を上記材質として設計した。試作品を作り、実機にて下記項目の有効性評価試験を行なった。

評価項目: 1. 熱伝導性 2. 温度分布 3. 硬度維持 4. 変形・歪み 5. シート厚みへの影響

1) 特性評価

以下に第3回目(最終調査)の評価試験結果を示す。

○熱伝導性: 測定開始から 300℃に到達するまでのプレス板昇温速度を、第1回試験結果と比較した。

第1回目の60分から70分へやや遅れ気味であるが、僅差であり実用上全く問題無い。

○温度分布: 300℃到達後、別の簡易温度計にて上・下のプレス板の表面温度を測定しプレス機盤面表示器の温度と比較したところ、微少差である事から良好と判断した。

○硬度維持性: 全く変化が見られない。

○変形・歪: 上板の歪が比較的大きいが後述のシート厚への影響が見られないことから、問題無し。

○シートの厚み: 前回と今回の間に約300回の熱プレスを実施しているが、同一条件で作製したシートの厚さに殆ど差が見られなかった。

許容範囲内の変化であり、その後の長期間経過後の観察評価に於いても問題なしと判断した。

2) メンテナンス基準の設定

測定値の評価結果から、メンテナンスの周期を、下記の様に設定した。

- i プレス 100 回毎のシート厚み測定((株)PAT)
- ii プレス 1000 回毎のシート厚み測定 ((株)AQUAPASS)
- iii プレス 2000 回 or 半年毎のプレス板検査 ((株)AQUAPASS)

(3) 放熱シートに密着性を付与する技術の開発

材料選定は、低粘性のフッ素ゴム、Al2O3 及び AlN とし、フィラーの最適な粒度配合、フィラー高充填、膜厚制御、粗粒割合の及ぼす表面状態と密着性、熱伝導性の相関性の解明、2 液混合の配合比を検討しフィラーを高充填しても粘度上昇を抑制、適度な接着力を保持する粘着材の最適作製条件を確立した。最終的に、上記の条件にて作製した粘着材をシート上に一定膜厚に形成し、母体シートと一体化した放熱シートとしての性能(密着性、熱伝導性)を評価した。以下にその事例を示す。

350 μ m 厚のフッ素樹脂シート上に 100 μ m 厚みで上記の粘着材を塗布した試作品を作り性能評価した。この放熱シートの表面は触感で十分な密着性があり、放熱素材としても比較的高い 1.92W/m $\cdot$ K の熱伝導率を有する放熱シートである。ベースの 350 μ m 厚のフッ素樹脂シートは 2W/m $\cdot$ K の熱伝導率であるので上記粘着膜による熱伝導率低下は殆ど無いと言える。

3-5 研究成果と今後の課題

(1) 混合・塗布成形・熱圧着の最適条件の確立

1) 研究成果

シート作製条件に関しては、混合機による混合、専用成形機による塗布成形、熱圧着機による熱間高圧プレスの各工程の機器操作条件、手順、等の最適化を図り、シートの均一性、大判化を達成することが出来た。並行してサンプルワークを開始し、樹脂探索(フッ素樹脂の種類変更)により耐熱性不足解消、表面粗さ改善により接触熱抵抗低減等の成果を得た。一方、耐電圧測定(目標値: 10kV/mm)、薄膜シート作製(目標: 100 μ m $\pm$ 15 μ m)については、緻密度改善が不十分であるため実施を延期した。

2) 今後の課題と取組

サンプルワークの継続課題である接触熱抵抗の更なる低減、密着性向上、外観向上を進めるとともに、緻密度を改善し耐電圧達成(目標値: 10kV/mm)、薄膜シート作製(目標: 100 μ m $\pm$ 15 μ m)を行う。

(2) プレス盤表面損傷防止技術の開発

1) 研究成果

新プレス板材質かつ 2 分割方式の試作品を長期間使用した後の有効性実証試験の結果、「熱伝導性」「温度分布」「硬度維持性」「変形・歪み」「シート厚みへの影響」など、懸念された問題は全てクリアした。また、メンテナンス周期を設定した。

2) 今後の課題と取組

設定したメンテナンス周期毎に、今後も調査継続し耐用限界を確認する。

(3) 放熱シートに密着性を付与する技術の開発

1) 研究成果

密着性付与はシート表面に粘着膜を形成して密着性を付与する技術であるが、形成膜により熱伝導率が低下しないことが必須条件である。そのため、熱伝導性フィラーをフッ素系高分子材料の粘着剤に高充填する技術を研究し、密着材としての最適成形条件を確立することが出来た。左記の条件で作製した粘着材をシート上に膜形成し性能評価したところ、表面は触感で十分な密着性があり、放熱素材としても本体シートとほぼ同じ熱伝導率を有し、形成膜による熱伝導率低下は殆ど無いことを確認した。

2) 今後の課題と取組

製品としては放熱シート面積の拡張や更なる熱伝導率の向上などが求められるが、今後は本事業の成果を基に更なる作成条件を確立して製品化につなげたい。

【用語の解説】

○HS, HRC: HS とはショアー硬度計で測った値であり、HRC とはロックウェルCスケール硬度計の値である。
テスト板ではショアー硬度計を用いて計測、正式なプレス平板の方はロックウェルCスケール硬度計を用いて計測されており、本文中ではその値をショアー硬度に換算した値を（ ）で示している。その為数値の多少の差はあり得る。

第4章 本論一（3）

4-1 プロジェクトの管理運営

総括研究代表者は副総括研究代表者や事業管理機関と連携を取りながら、全体の研究進捗状況の把握や研究計画等の見直しを研究者と討議しながら進めた。特に、進捗が遅れているサブテーマについては、原因を調べるとともに今後の進め方について助言を行った。

事業管理機関である公益財団法人佐賀県地域産業支援センターは本プロジェクトの円滑な推進と研究の進捗管理のため、研究推進委員会及びプロジェクト会議を主催し、必要に応じて技術情報の調査収集、研究実施機関間の連絡調整、予算執行等の事務管理を行った。また、中間評価や確定検査のための資料を作成し、研究成果報告書のとりまとめを行った。

本事業は小規模事業者型として採択された課題であり、小規模企業では研究部門や経理部門の体制が不十分で、事業管理機関としても当初は戸惑いがあったが、徐々に慣れて一般型と同様の管理運営を進めることが出来た。

4-2 実施概要

(1) 研究推進委員会

本委員会は各年度2回開催し、研究の進捗状況や今後の方針について研究分担者から詳細に説明し、各委員から今後の研究開発を進めるに当たっての助言を頂いた。また、アドバイザーから実証試験の協力の発言もあった。必要に応じて本事業の委託者である九州経済産業局や中小企業基盤整備機構九州本部、佐賀県からもオブザーバーとして出席頂いた。

委員は外部推進委員3名と内部推進員8名の計11名であり、委員長は(株)PATの栗田社長が務めた。

(2) 研究プロジェクト会議

研究分担者及び事務局から構成する本会議を年2回開催し、研究の進捗状況や今後の進め方について討議を行って意思統一を図った。討議結果を基に、次年度の研究計画を作成し、中間評価ヒヤリングや研究推進委員会等に臨んだ。

(3) その他の管理運営

事業管理機関は毎年度ごとの実施計画を作成し、機械設備等の調達・管理を行った。また、中間検査や確定検査に向けて予算管理業務を遂行し、適正な予算運営のための指導・助言を行った。さらに、年度ごとの研究成果報告書の取りまとめを行い、必要に応じて研究分担機関を相互に訪問して研究開発の詳細を打ち合わせた。

4-3 今後の課題と取り組み

本事業は、25年度～27年度の3年計画の事業であり、研究の進め方や経理処理に関してある程度の相互理解の下に進めることができた。放熱シートの量産化や熱伝導特性に関しては残された課題もあり、事業終了後の補完研究でさらに検討を続けることにした。また、サンプルワークを積極的に行い、顧客ニーズに積極的に対応して事業化を進めていくことを確認した。今後の事業化に向けては国や佐賀県の補助金等の活用も検討していきたい。

第5章 全体総括

5-1 研究成果の全体総括

特性について、熱伝導率の目標値 $5\text{W/m}\cdot\text{K}$ に対し実績最高値では $4\text{W/m}\cdot\text{K}$ に到達したが、当該試料はフィラー充填率が高過ぎて強度、柔軟性が劣るためシートとしては不完全で、実用的な試料の実績最高値は $3.32\text{W/m}\cdot\text{K}$ である。放熱特性向上のための素材に関する課題では、九州大学による組織解析によりフィラーばかりでなくフッ素樹脂の組織形態が大きな熱伝導率影響因子であることが判明した。プレス盤損傷防止では、(株) AQUAPASS の的確なプレス板材質の選定により、当該防止技術が完成した。密着性付与では、佐賀県窯業技術センターの丁寧な研究により十分な密着性を有しかつ熱伝導率が低下しない粘着膜が形成されたシートが完成した。

5-2 サブテーマの総括

(1) 放熱特性向上のための素材に関する課題への対応

本研究の素材はシート母材のフッ素樹脂と熱伝導パスを形成するフィラーで構成される。フィラーに関しては、フッ素樹脂との親和性を有する表面処理法を A1203 と A1N で確立、フッ素樹脂に関しては耐熱性の高い F2、F3 の使用によりシートに於ける目標 250°C 耐熱性を達成した。

高密度充填メカニズムは、物性データの解析、組織観察から熱伝導率を支配する因子とその材料設計指針(粒子径、最適配合比)を解明することを目的として解析を進め、空隙形態が熱伝導率に大きな影響を与えており、緻密度向上を図る必要があることを確認した。また、組織観察の結果、フッ素樹脂の種類に起因する性能阻害要因が判明し、先ず最適樹脂探索を行い、樹脂特性とフィラー粒子間の緻密化設計を進めた。フッ素樹脂 F1、F2、F3 の微細構造に違いが見られ、特に F3 は繊維化により高強度を獲得出来る反面、熱可塑性、分散性が低く、繊維化で生じる空隙が、熱伝導率向上の阻害要因となっていることが判った。フィラー・樹脂両面の実験結果からフッ素樹脂 F2、F3 及びフィラー A1N、A1203 の相関モデルを構築した。

(2) 放熱シート製造法に関する課題への対応

シート作製条件に関しては、混合機による混合、専用成形機による塗布成形、熱圧着機による熱間高圧プレスの各工程の機器操作条件、手順、等の最適化を図り、シートの均一性、大判化を達成することが出来た。並行してサンプルワークを開始し、樹脂探索(フッ素樹脂の種類変更)により耐熱性不足解消、表面粗さ改善により接触熱抵抗低減などの成果を得た。

プレス盤表面損傷防止は、被圧物(つまりシートの粗成形体)に接触する熱プレス盤の材質変更、2 分割方式の設計により、耐久性に優れメンテナンス簡便な方法を確立した。

密着性付与はシート表面に粘着膜を形成して密着性を付与する技術であるが、形成した膜により熱伝導率が低下しないことが必須条件である。そのため、熱伝導性フィラーをフッ素系高分子材料の粘着剤に高充填する技術を研究し、密着材としての最適成形条件を確立することが出来た。左記の条件で作製した粘着材をシート上に膜形成し性能評価したところ、表面は触感で十分な密着性があり、放熱素材としても本体シートとほぼ同じ熱伝導率を有し、形成膜による熱伝導率低下は殆ど無いことを確認した。

5-3 今後の事業化に向けての取り組み

事業化に向けての取り組みは、サンプルワークの展開、補完研究による性能向上、生産体制の構築の3つに大別して考えている。サンプルワークは顧客ニーズの正確な把握、販売を主目的とする。補完研究では、特性向上、他のシート作製方法の検討、高熱伝導のメカニズム解明などを実施する。サポイン事業の共同研究各機関に協力を仰ぎ、高耐熱性シート作製技術の完成、商品価値の追求などを行う。生産体制は、

生産設備の整備と品質保証システムの構築をする必要がある。大量生産の車載用途など（株）PAT の能力を超える案件はライセンス生産や技術供与で対応し、設備の整備は（株）PAT の能力範囲内で検討する。