

平成25年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「新規高熱伝導性複合材料を用いる
環境に優しいLED放熱部品の研究開発」

研究開発成果等報告書

平成26年3月

委託者 中部経済産業局

委託先 一般財団法人金属系材料研究開発センター

目次

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	2
1-2	研究体制.....	4
1-3	成果概要.....	7
1-4	当該研究開発の連絡窓口	8

第2章 本論

2-1	LED 放熱部品用材料の製造技術の研究開発	9
2-2	LED 放熱部品の放熱設計	12
2-3	LED 放熱部品の成形加工技術の研究開発および LED ランプの試作・検証	18
2-4	原料の選択および高度な熱伝導性パス形成の最適化	19
2-5	100～500W/mK の超高熱伝導性複合材料の研究開発	22
2-6	30～200W/mK の高熱伝導性複合材料の研究開発	27

第3章 全体総括

3-1	環境に優しい LED 放熱部品開発課題への対応.....	30
3-2	研究開発後の課題および事業化展開	33

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) 研究開発の背景

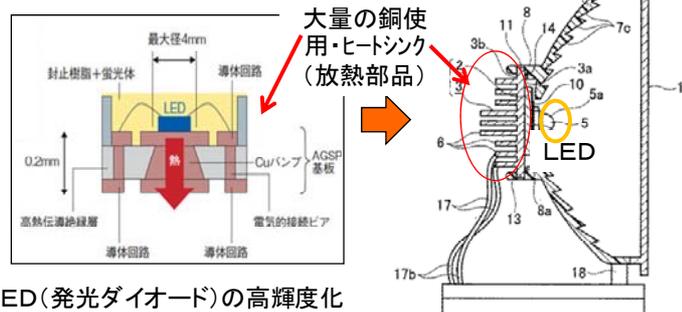
自動車用ヘッドランプは、現在、ほとんど放電式ヘッドランプ(キセノンおよび HID ランプ)を使用しているが、高輝度・パワーLED 素子の開発とともに、省電力、高寿命、デザインの自由度、制御性、環境負荷が少ないことから高輝度・パワーLED ランプが注目を浴び、一部、高級車に搭載されるようになってきた。また、屋内・屋外向けにも光束 14,000 ルーメンのハイパワーLED ランプの出現や、オール樹脂製 LED ランプの開発など、高輝度・パワーLED ランプが注目を集め、開発競争は激化している(図 1-1-1 参照)。しかし、素子のジャンクション温度が 10℃ 上がると素子寿命は半分、故障率は約 2 倍になることから、高輝度・パワー化に伴う LED 素子からの放熱の問題が大きな課題となっている。

自動車用ヘッドランプ：消費電力、高寿命、デザインの自由度、制御性(点滅自由)、環境負荷が少ない。

放電式(キセノン、HID)ヘッドランプ



高輝度・パワーLEDランプ



LED(発光ダイオード)の高輝度化

※ 一部高級車に搭載：高輝度化に伴う発熱による効率低下と劣化⇒放熱の問題、コストダウンが課題
-素子のジャンクション温度が10℃上がると素子寿命は半分、故障率は約2倍になる。-



・光束 14,000ルーメン
・ハイパワーLEDランプ
⇒重いアルミフィン

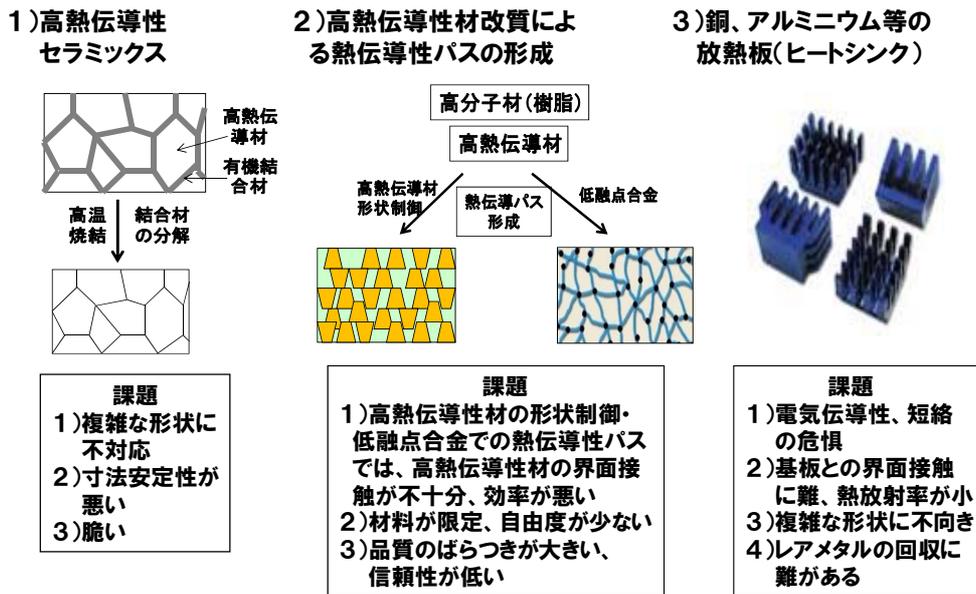


・光束 1,300ルーメン
・オール樹脂製LEDランプ (世界最軽量)
⇔従来技術駆使

図 1-1-1 高輝度・パワーランプの技術動向

放熱部材には、セラミックス、高熱伝導性材(充填剤)、金属などの従来から存在する熱伝導性材料が広く用いられ、その改良がなされているが、それぞれに、図 1-1-2 に示すような様々な課題が存在し、いまだ、市場の要求を充分満足するものが得られていない。このようなことから新規素材の開発が切望されている。

従来技術



従来技術の改良 ⇒ 市場の要求を満足できない ⇒ 新規素材の開発

図 1-1-2 高熱伝導性材料の従来技術

(2) 研究開発の目的および目標

前述のように省エネ、環境対策、高信頼性が強く求められる次世代自動車において、電子機器の高出力化により、放熱の問題が喫緊の課題となっている。本研究開発では、LED 基板およびその周辺材料の高熱伝導化の課題に対応するため、原材料の選択および高度な熱伝導性パス形成の最適化、100~500W/mK の超高熱伝導性複合材料および 30~200W/mK の高熱伝導性複合材料の基盤技術開発、原料コンパウンドおよび高熱伝導性複合材料シート等の LED 放熱部品用材料の製造技術の研究開発によって、高度な熱伝導性パスを形成させ、かつ軽量化、複雑な形状付与、レアメタルリサイクルが容易で、広範な熱伝導率を有する新規材料を安価に提供できる技術体系を構築する。さらに、これらの新規材料を用いた LED 放熱部品の放熱設計、成形加工技術の研究開発、LED ランプの試作・検証により、省電力、長寿命、デザイン性に優れるオール樹脂製の高輝度・パワーLED ランプの放熱部品を開発する。

既存放熱部品の最大の欠点は、熱伝導性材料間の密着性や高熱伝導性材間の連結性の悪さから、本来持っている材料の特性を十分に発揮できないことにある。すなわち、高い熱伝導性材料を用いても、熱伝導率の極端に低い空気や樹脂が界面を覆うことにより本来の特性が十分に生かされていない。本研究開発では、下記のサブテーマを設定し、前記課題を解決するための目標を定めた。(図 1-1-3 参照)

初年度は、実験・測定方法に目処を付け、それぞれの課題を明確にし、プロジェクト全体が俯瞰できるレベルに、2 年度は界面接合に必要な接着剤等の材料を必要としない単一材料の組み合わせによる一体成形に目処を付け、最終目標であるコストパフォーマンスのよい LED 放熱部品プロトタイプを試作・検証に道筋を付けることとした。実施項目⑤の超高熱伝導性高絶縁性材料は、熱伝導性は高いが高価なダイヤモンド等の高熱伝導性材を使用するため、高熱伝導性高絶縁性材料だけでは、不十分なときの技術課題を解決できるように準備した。

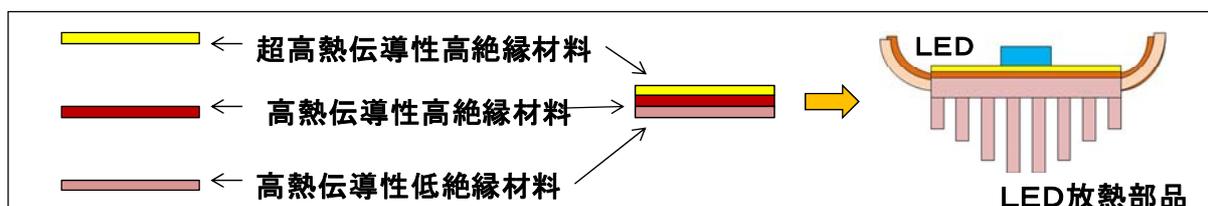
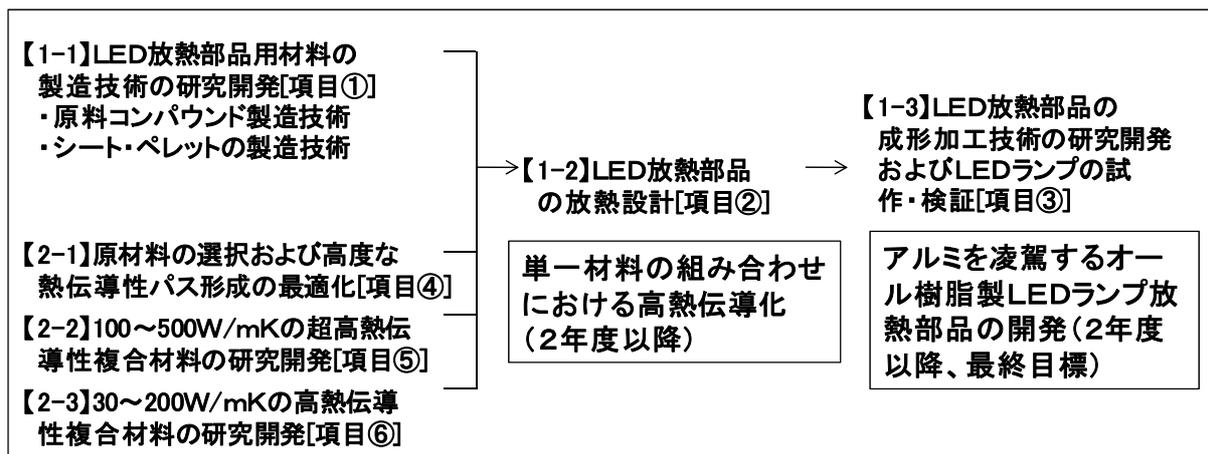
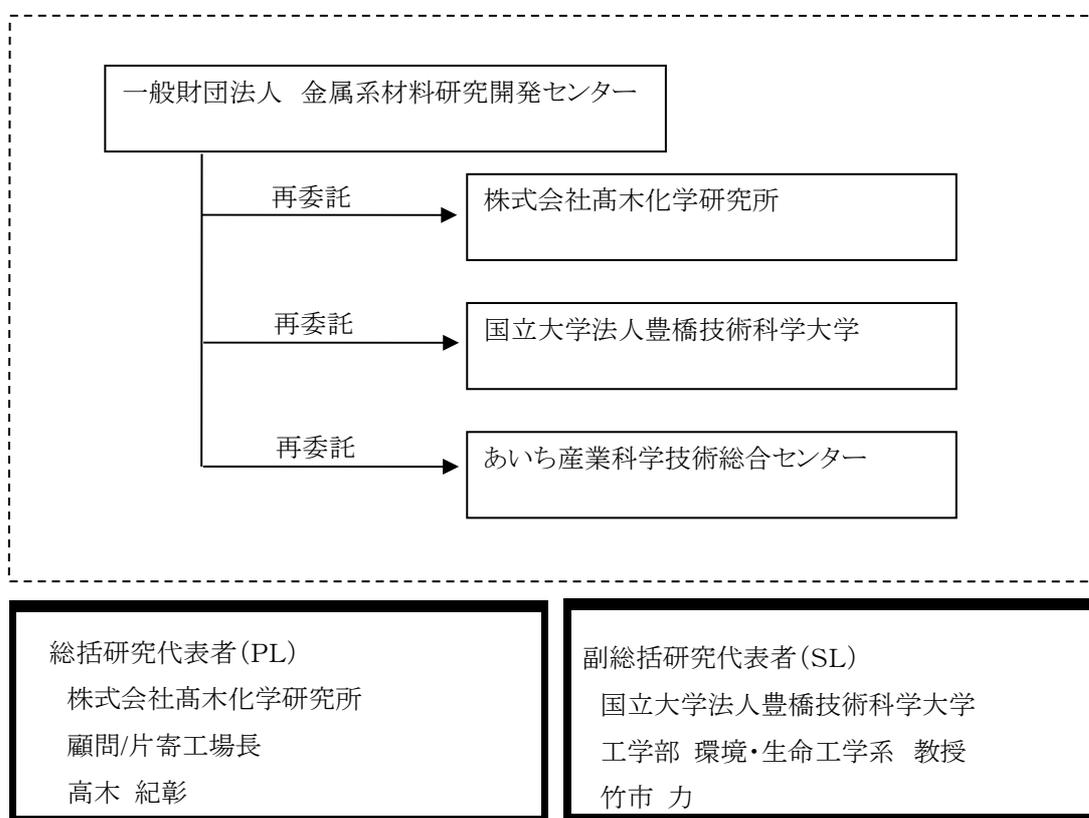


図 1-1-3 研究開発課題におけるサブテーマの関係と目標

1-2 研究体制

(1) 研究組織及び管理体制

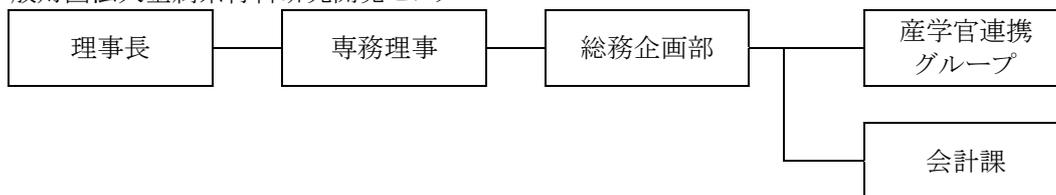
1) 研究組織(全体)



2) 管理体制

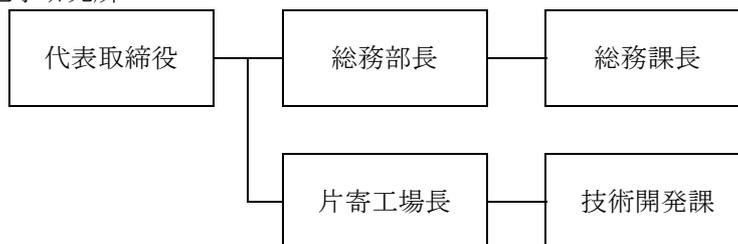
①事業管理機関

一般財団法人金属系材料研究開発センター

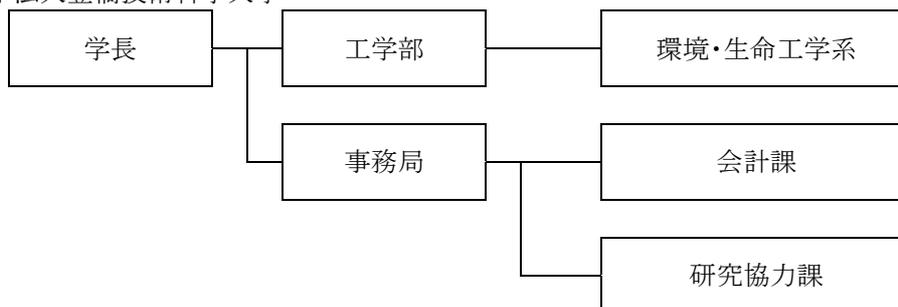


②再委託先

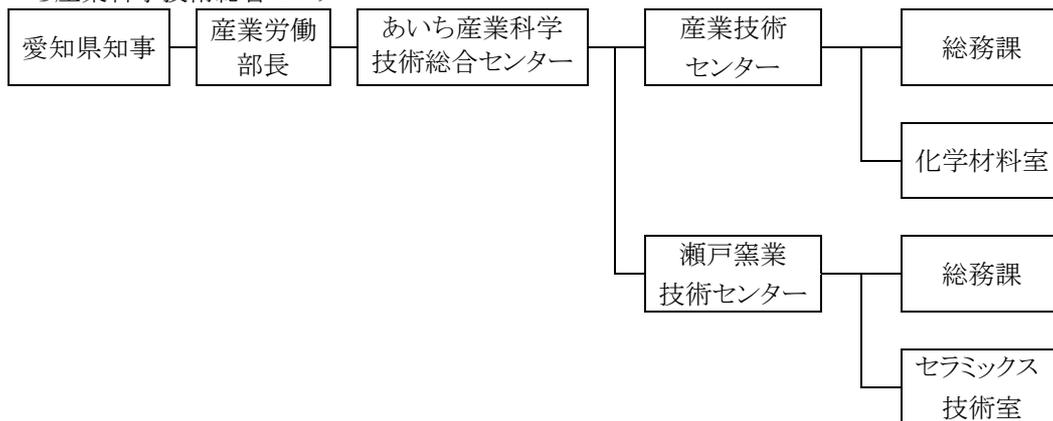
株式会社高木化学研究所



国立大学法人豊橋技術科学大学



あいち産業科学技術総合センター



(2) 管理員及び研究員

【事業管理機関】 一般財団法人金属系材料研究開発センター(管理員)

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
小紫 正樹	産学官連携グループ・グループ長	⑦
伊藤 瑛二	産学官連携グループ・主席研究員	⑦
浜田 ちひろ	産学官連携グループ・主任研究員	⑦

【再委託先】

株式会社高木化学研究所(研究員)

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
高木 紀彰(PL)	片寄工場・顧問	①②③④⑤⑥
松山 一夫	片寄工場・技術開発課主任研究員	①②③④⑤⑥
永谷 裕介	片寄工場・技術開発課員	①②③④⑤⑥
寺尾 雄太	片寄工場・技術開発課員	①②③④⑤

国立大学法人豊橋技術科学大学(研究員)

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
竹市 力(SL)	工学部環境・生命工学系 教授	②③④⑤⑥
松本 明彦	工学部環境・生命工学系 教授	④⑤⑥

あいち産業科学技術総合センター(研究員)

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
高橋 勤子	産業技術センター化学材料室・主任研究員	①②③④⑤⑥
岡田 光了	産業技術センター化学材料室・技師	①②③④⑤⑥
山口 知宏	産業技術センター化学材料室・主任研究員	①②③④
内田 貴光	瀬戸窯業技術センターセラミックス技術室・技師	④⑤
立木 翔治	瀬戸窯業技術センターセラミックス技術室・技師	④⑤

1-3 成果概要

本研究開発は、実施項目④、⑤、⑥の基盤研究によって、軽量化、加工性、成形性等に優れる高分子材（樹脂）を用いて、図 1-3-1 に示す新規高熱伝導性材料（超高熱伝導性および高熱伝導性材料）を開発した。さらに図 1-3-2 に示す高輝度・パワーLED ランプ放熱部品の開発に応用し試作・検証した（実施項目①、②、③）。

—界面での熱抵抗（空気:0.02W/mK、樹脂:0.2W/mK）改良—

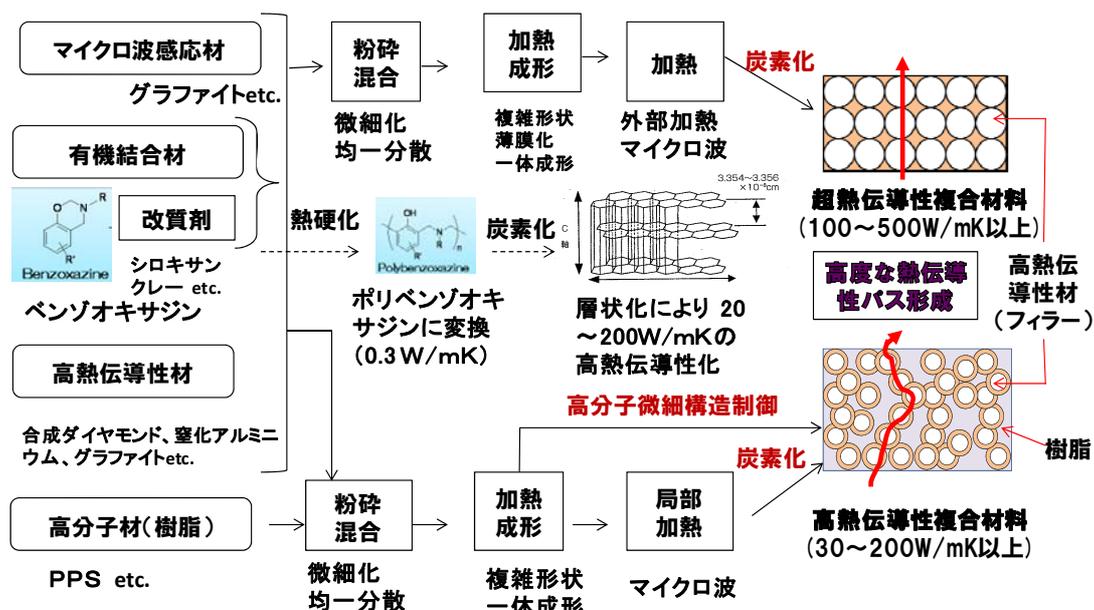


図 1-3-1 新規高熱伝導性材料の研究開発

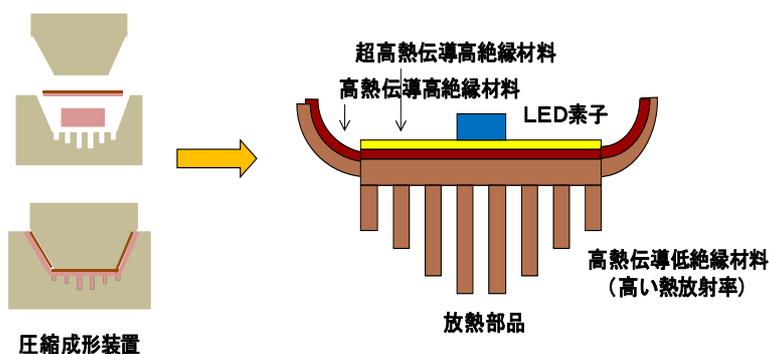


図 1-3-2 高輝度・パワーLED 放熱部品の研究開発

新規高熱伝導性材料の基盤研究(実施項目④～⑥)では、熱伝導性は高いが、球状であるダイヤモンド(1000～2000W/mK)や、窒化アルミニウム(200W/mK)よりも、熱伝導性は低いが、鱗片状のグラファイト(異方性がありバルクの熱伝導率は200W/mK)や、六方晶窒化ホウ素(異方性がありバルクの熱伝導率は60W/mK)の方が、熱伝導性に著しく優れた結果を示した。また、炭素化を経由して熱伝導性パスを形成させるよりは、「特定の装置を用いた粉体混合—粉体成形」による高分子微細構造の制御により熱伝導性パスを形成させる方が、より実用的で、十分なレベルの高熱伝導性材料の得られることがわかった。

本研究開発の特徴を生かした高熱伝導性複合材料(樹脂複合材料)の塗料液を作製することができ、塗付

乾燥後、成形することによって、1mm 厚以下の絶縁層を有する材料の作製や、金属放熱部品に塗付して熱放射率を高めることが可能となった(実施項目⑥)。

実施項目①～③項の実用化に向けた応用研究開発では、高熱伝導性材料をグラファイト(導電)および六方晶窒化ホウ素(絶縁)に絞り検討した(実施項目④)。導電および絶縁性材料の両者の一体成形、銅-グラファイト複合材料からなる銅張基板およびフィン構造を有するグラファイト放熱部品の作製や、高熱伝導性材料塗料液による絶縁層 1mm 以下の薄膜化に成功によって、構成材料・部品開発の目処が立った。これらの構成材料・部品を組み合わせた熱源-放熱材料・部品の放熱試験により熱抵抗を求めたところ、放熱材料・部品自身の熱伝導性よりは、熱源と放熱材料・部品との界面や放熱材料・部品からの熱放射の影響が非常に大きいことがわかり、放熱部品の最適設計指針を得ることができた(実施項目②)。

製造レベルの熱プレス機に用いる金型設計を行い、ブロック部品およびフィン構造を有する放熱部品の製造に成功し、真空下で成形することによって、部品の密度が高まり、熱伝導率の向上を確認できた。市販の大型 LED ランプ(LED 投光器)、LED ヘッドランプを分解し、構成部品からのそれぞれのコスト試算を行い、本研究開発の知見に基づいて試作した LED ランプのプロトタイプとの比較を行い、接着剤、グリース、ボルト締め等の部品点数および工数の削減、軽量化効果等によって、既存品に対抗できることを確認した(実施項目③)。

一方、炭素化による熱伝導性パスの形成については、炭素化温度(1000℃～2000℃)を上げることによって、熱伝導率が向上することを確認できた。しかし、炭素化に伴うガス発生を抑えることができず、製品中のボイド生成(空隙率)に基づく熱伝導率の低下を抑えることができず、当初予想した高い熱伝導率を有する材料を得ることができなかった(実施項目⑤)。炭素化により高熱伝導化を図る技術は未踏技術であるため、ここで得られた知見はネガティブであるが貴重な知見であり、今後有効活用できるように、課題と解決策をまとめ整理した。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

一般財団法人金属系材料研究開発センター
産学官連携グループ 主任研究員 浜田 ちひろ
Tel. 03-3592-1282 / Fax. 03-3592-1285
Email chamada@jrcom.jp

第2章 本論

2-1 LED 放熱部品用材料の製造技術の研究開発

2-1-1 高熱伝導性複合材料の原料コンパウンド製造技術の研究開発

原料コンパウンドを製品としてユーザーに供給する場合には、次の3点がポイントになる。

- ①製造設備の切り替えの際の準備時間などを減らした生産方法
- ②作業工程の単純化および簡素化
- ③多量で均一な品質の製品の製造方法

本項では、後述の2-6項における30～200W/mKの高熱伝導性複合材料の研究開発で評価した組成物のなかで商品化を目指す組成物を選定し、10～50倍規模(製造規模)にスケールアップした場合の工程、時間、歩留り、品質について明らかにした。

(1) 歩留まり(収率)の評価結果

特定の混合機を用いて原料を混合し、原料の歩留まり(収率)を表2-1-1に示す。

表 2-1-1 製造レベルで行った原料調整の歩留まり結果

項目	GF コンパウンド			BN コンパウンド		
	I	II	III	I	II	III
材料投入量 (g)	2000	2000	2000	1000	1000	1000
材料取り出し量 (g)	1999	1993	1989	860	971	88.5
混合排出歩留まり (%)	99.9	99.7	99.4	86.0	97.1	88.5
平均歩留まり (%)	99.6			90.5		

グラファイト(GF)ーポリフェニレンスルフィド(PPS)コンパウンド(60:40wt%)においては、平均歩留まりは非常に良い。装置内での原料の残りが少なく、ふるい時における原料のロスもほとんど見られなかった。六方晶窒化ホウ素(BN)ーPPSコンパウンドにおいては、GFーPPSコンパウンドに比べて歩留まりは良くない。装置内の壁面または部品への付着が所々に見られた事から、装置内に原料の取りこぼしていると考えられる。このことから、装置内の改善および取り出し時における改良を行うことによって更なる歩留まりの向上が期待できる。

(2) 製造レベルでのコンパウンドを用いた物性評価

製造レベルでの原料コンパウンドを後述の熱プレス成形装置を用いて成型した試験用成形品の物性を測定することによって、コンパウンドの評価を行った。表2-1-2にGFーPPS、BNーPPSコンパウンドを用いて作製した成形品の物性評価結果を示す。

この結果から、実験レベルから量産レベルに拡大したコンパウンド製造において、十分な物性を有していることがわかった。なお、この結果を用いて、後述の2-2項、2-3項の検討を行った。

表 2-1-2 コンパウンドを用いて作製した成形品の物性評価

項目	単位	I	II	III	IV
GF	wt%	60	60	60	-
BN	wt%	-	-	-	80
PPS	wt%	40	40	40	20
作製方法	-	2-2 項	2-3 項	2-3 項	2-3 項
重量	g	1298	1899	1899	86.4
体積	cm ³	774	1078	983	42.75
成形品厚み	mm	34.4	47.9	44.2	1.9
理論密度	g/cm ³	1.76	1.77	1.77	1.98
実密度	g/cm ³	1.68	1.76	1.71	1.91
空隙率	%	5.3	0.5	2.5	3.6
センサー型式	-	6822	6822	6822	-
熱伝導率	W/mK	21.4	32.1	15.8	-
電気伝導度(表面)	(Ω cm) ⁻¹	16.1	28.7	30.4	< 10 ⁻¹²
電気伝導度(断面)	(Ω cm) ⁻¹	0.85	31.8	32.5	-

2-1-2 高熱伝導性複合材料シート等の製造技術の研究開発

樹脂材料として PPS (ペレット、パウダー) を、高熱伝導性材 (樹脂を含む場合には熱伝導性フィラーとも言う) としてグラファイトを用い、熱伝導性材を高濃度に含有するペレット、シートを製造する技術を確立することを目的とし、商品化を目指す組成物について、シート状 (またはペレット) 製品を作製した。また、押出成形可能な高熱伝導性材の最大濃度の確認および材料諸物性の把握を行った。

(1) PPS ペレット-グラファイトの混練および同ペレット作製結果

実験室レベルから、40wt%以上のグラファイト含有シートを製造するのに、グラファイト含有ペレットの製造が好ましいことがわかっていたので、製造レベルでも同様に 30wt%以上のグラファイト含有ペレット製造を行った。50wt%含有ペレットにおいては、今回の条件ではペレット化が難しく、途中でストランドが切れ、投入量に対する製造量が低くなった。各ペレット製造時における製造条件を表 2-1-3 に示す。

表 2-1-3 二軸押出機によるペレット化製造条件

PPS ペレット → グラファイト含有 PPS ペレット					
グラファイト含有量 (wt%)	本体フィーダ出力 (%)	容量式コイルフィーダ出力 (%)	スクリー回転数(本体・サイド) (rpm)	樹脂温度 (°C)	生産量 (kg/h)
0	30	-	170・50	304	13
10	30	11	170・50	304	13
20	30	22	170・50	304	13
30	30	33	170・50	309	19
40	22 (G30%)	13	170・50	315	10
50	22 (G30%)	24	170・50	325	×

※表中、フィーダ出力とは、最大出力に対する割合、スクリー回転数とは、本体およびサイドスクリーの回転数、および G30%とはグラファイト 30wt%含有 PPS ペレットのこと。

(2) PPS ペレット→グラファイトの2軸押出混練およびシート作製

製造レベルでのシート作製の製造条件を把握するため、まずは PPS ペレットのみでの製造の確認を行い、その後、10～40wt%のグラファイト含有量になるようにサイドフィーダからのグラファイト投入量を増やしていった。この条件では、本体スクリューの回転数を 170rpm、サイドスクリューの回転数を 50rpm で製造を行った。表 2-1-4 にシート化の製造条件を示す。

表 2-1-4 二軸押出機によるシート化製造条件

PPS ペレット → グラファイト含有 PPS シート					
グラファイト含有量 (wt%)	本体フィーダ出力 (rpm)	容量式コイルフィーダ出力 (rpm)	スクリュー回転数(本体・サイド) (rpm)	樹脂温度 (°C)	生産量 (kg/h)
0	30	-	170・50	304	13
10	30	11	170・80	304	13
20	30	22	170・80	304	13
30	30	33	170・50	309	19
40	30 (G40%)	0	170	315	10
50	24 (G40%)	24	170	330	8
60	12 (G40%)	24	170	340	×

※表中、フィーダ出力とは、最大出力に対する割合、スクリュー回転数とは、本体およびサイドスクリューの回転数、および G40%とはグラファイト 40wt%PPS ペレットのこと。

(3) 製造結果

表 2-1-5 に 2 軸押出成形装置を用いた製造レベルでの製造結果を示す。熱伝導率 3.25W/mK のグラファイト含有量 50%の高含有 PPS シートの得られることがわかった。

表 2-1-5 製造レベルの製造結果のまとめ

グラファイト含有量 (wt%)	ペレット	シート			
	生産性	生産性	密度 (g/cm ³)	熱伝導率 (W/mK)	電気伝導度 (Ω・cm) ⁻¹
10	○	×	-	-	-
20	○	△	-	-	-
30	○	○	1.04	0.55	<10 ⁻⁷
40	○ (30wt%を使用)	○	1.22	0.75	-
50	×	○ (30wt%を使用)	1.48	3.25	0.1

2-2 LED 放熱部品の放熱設計

実用的な LED 放熱部品の作製を目指した。後述の 2-6 項で得られた単一材料を組み合わせた多層一体成形品(銅張・多層・一体成形)、様々な形状の放熱部品評価ならびに表面温度測定による簡便な放熱試験、熱流体解析装置を用いたシミュレーションにより、放熱設計および LED 放熱部品の最適設計を行った。

(1) 絶縁／導電性材料の一体成形結果

六方晶窒化ホウ素 (BN)-PPS 樹脂系絶縁材料とグラファイト (GF)-PPS 樹脂系導電材料の一体成形を行った。成形は、市販接着剤(アロンアルファ)で絶縁性成形品と導電化成形品を張り合わせたもの(接着剤接合)、絶縁/導電性材料を一体成形したもの(2 層一体成形)、絶縁性材料にフィラー濃度が異なる導電性材料を積層させて成形したもの(4 層一体成形)、および絶縁性材料にフィラー濃度の異なる導電性材料を積層させる際に充填量を変えたものを成形した(4 層一体成形)。これらの成形品の組成および物性評価を表 2-2-1 に示した。熱伝導率および電気伝導度は絶縁側および導電側の両面から測定、電気伝導度は成形品の断面の測定を行った。

絶縁/導電性 2 層材料は、絶縁性材料に六方晶窒化ホウ素 90wt%、PPS10wt%の原料コンパウンドを使用し、導電性材料に鱗片状黒鉛 60wt%、PPS40wt%の原料コンパウンドを使用し、それぞれの原料コンパウンドを 20vol%、80vol%を金型に装填して行った成形品である。絶縁/導電性 4 層一体成形は、1 層目に絶縁性材料の六方晶窒化ホウ素 90wt%、PPS10wt%の原料コンパウンドを 1mm 厚に積層し、2 層目に鱗片状黒鉛 90wt%、PPS10wt%の原料コンパウンドを 1mm 厚に積層し、3 層目に鱗片状黒鉛 75wt%、PPS25wt%の原料コンパウンドを 4mm 厚に積層し、4 層目に鱗片状グラファイト 60wt%、PPS40wt%の原料コンパウンドを 4mm 厚に積層した成形品である。

表 2-2-1 導電性材料および絶縁性材料の多層モデル評価結果

項目	単位	接着剤接合	2 層 一体成形	4層 一体成形	4層 一体成形
BN(90)-PPS(10)(wt%)	vol%	20	20	10	10
GF(90)-PPS(10)(wt%)	vol%	-	-	30	10
GF(60)-PPS(40)(wt%)	vol%	80	80	30	40
GF(40)-PPS(60)(wt%)	vol%	-	-	30	40
絶縁層(BN-PPS)厚み	mm	2	2	1	1
導電層 (GF-PPS)厚み	mm (組合せ)	8	8	9 (1,3,3,3)	9 (1,1,4,4)
密度	g/cm ³	1.69	1.62	1.79	1.77
絶縁側熱伝導率	W/mK	4.44	23.2	22.4	20.8
導電側熱伝導率	W/mK	16.2	25.3	20.3	18.2
絶縁側電気伝導度(表面)	(Ω cm) ⁻¹	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷
導電側電気伝導度(表面)	(Ω cm) ⁻¹	12.9	33.6	7.93	6.21
電気伝導度(断面)	(Ω cm) ⁻¹	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷	<10 ⁻⁷
曲げ強さ	MPa	25.1	15.1	37.4	-
曲げ弾性率	GPa	0.8	1.1	2.3	-

項目 2-6 で検討した(BN-PPS-Oxz)塗料液を用いてグラファイト(GF)-PPS 成形品(40×40×9.5(mm))に0.1mmの銅箔を貼った銅張基板成形品の物性評価結果を表 2-2-2 に示す。

表 2-2-2 銅張基板成形品の物性評価結果

項目	No.	1	2	3	4	5
絶縁層組成	BN wt%	80	80	80	80	80
	PPS wt%	20	15	10	5	0
	Oxn wt%	0	5	10	15	20
貼付	可/不可	不可	可	可	可	可
熱伝導率	W/mK	-	31.4	27.2	25.7	29.8
電気伝導度	(Ωcm) ⁻¹	-	6.8×10^{-9}	3.2×10^{-10}	3.0×10^{-9}	2.6×10^{-10}
残留マス目	マス	-	8	7	21	9
残留率	%	-	68	72	16	64

絶縁/導電性複合材料の一体成形の結果をまとめると以下ようになる。

- ①接着モデル、一体成形モデルの比較により、一体成形モデルのほうが高い熱伝導率を得られることが明確になった。接着剤を用いて張り合わせた場合、熱の伝わりが接着面で途切れてしまうからだと考えられる。
- ②絶縁性複合材料および導電性複合材料の組合せた成形品は、断面方向の電気伝導度が $10^{-7}(\Omega\text{cm})^{-1}$ 以下になることが明らかとなった。この結果から、絶縁材料を導電材料に組み合わせることで、電気絶縁性が求められる用途での利用が期待できる。
- ③高分子材が同種のものであれば、接着剤を用いずに絶縁/導電材料を積層させて成形品を作製する事が可能であるとわかった。熱伝導率、電気伝導度および諸物性の測定からは、一体成形品は接着モデルよりも、熱伝導率および強度が優れていることがわかった。
- ④銅箔、BN を含む絶縁層およびグラファイトを含む導電層からなる銅張基板成形品を作製することができ、断面方向の電気伝導度は、 $7 \times 10^{-9}(\Omega\text{cm})^{-1}$ 以下の絶縁性を示し、かつ優れた放熱特性を示すことがわかり、銅張基板として利用できることを確認した。
- ⑤熱膨張係数の異なる材料を積層させて一体成形することによって、材料間の熱膨張係数の差を少なくするような配合設計が可能であり、サーマルショックによる材料界面での剥離、欠陥等の改善が期待できる。

(2) 簡易放熱試験

アルミニウムとグラファイトブロックの簡易放熱試験を行った。その結果を表 2-2-3 および図 2-2-1 に示す。

表 2-2-3 ブロックの簡易放熱試験結果

	アルミニウム ブロック (t=35mm)	グラファイト ブロック (t=35mm)
熱伝導性グリス (3.8W/mK)	あり	あり
T ₁ (°C)	56.3	62.4
T ₃ (°C)	49.4	45.6
T ₄ (°C)	33	37.2
R _(T1-T3)	0.90	2.19
λ (T1-T3)	1.73	0.91
R _(T3-T4)	2.14	1.09
ϵ (T3-T4)	0.87	1.83

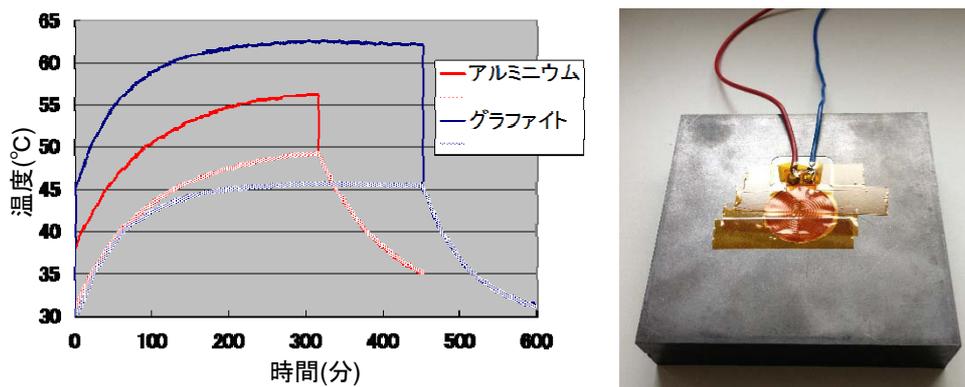


図 2-2-1 アルミニウム及びグラファイトブロックの昇温挙動(左)とグラファイトブロック簡易放熱試験(右)

次に後述する 2-3 項でグラファイトブロックをフィンに切削加工したグラファイトフィン(放熱面積: $A=1544(\text{cm}^2)$ 、重量: $584(\text{g})$)の熱伝導性グリスの有無における簡易放熱試験結果を表 2-2-4、図 2-2-2 にそれぞれ示す。

表 2-2-4 グラファイトフィンの簡易放熱試験結果

	グラファイトフィン	
	無し	あり
$T_1(^{\circ}\text{C})$	97.6	66.9
$T_2(^{\circ}\text{C})$	47.8	49.8
$T_3(^{\circ}\text{C})$	44.7	46.9
$T_4(^{\circ}\text{C})$	37	37
$R_{(T1-T2)}$	6.48	2.23
$\lambda_{(T1-T2)}$	0.69	2.00
$R_{(T2-T3)}$	0.40	0.38
$\lambda_{(T2-T3)}$	192	205
$R_{(T3-T4)}$	1.00	1.29
$\varepsilon_{(T3-T4)}$	0.78	0.57

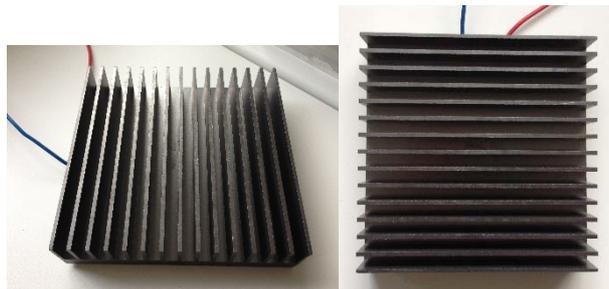
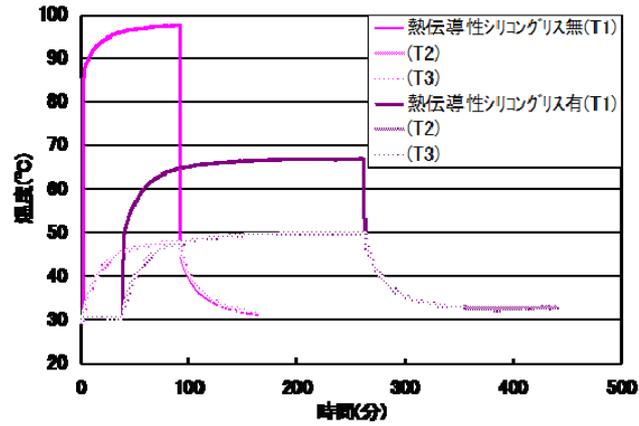


図 2-2-2 グラファイトフィンの昇温挙動(上)と使用したグラファイトフィン(下)

更にヒーター界面の熱抵抗を下げることによって、放熱特性が向上すると考えられる。そこで、ヒーター界面の熱抵抗を下げる為に、ヒーターの埋込を行った。その簡易放熱試験結果を表 2-2-5 および図 2-2-3 に示す。

表 2-2-5 グラファイトフィン埋込の簡易放熱試験結果

埋込方法	グラファイトフィン	
	粉体 (320°C)	塗料液 (225°C)
T ₁ (°C)	70.1	63.5
T ₂ (°C)	54.3	47.9
T ₃ (°C)	48.6	44.6
T ₄ (°C)	38	36
R _(T1-T2)	2.06	2.03
λ _(T1-T2)	2.16	2.19
R _(T2-T3)	0.74	0.43
λ _(T2-T3)	104.80	181.01
R _(T3-T4)	1.38	1.12
ε _(T3-T4)	0.51	0.69

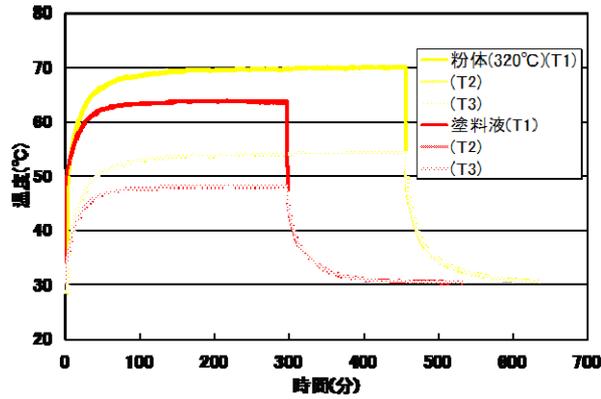


図 2-2-3 グラファイトフィン埋込の昇温挙動

粉体(BN:PPS=80:20wt%)による埋込よりも、塗料液(BN:PPS:Oxz=80:15:5wt%)を用いた埋込(2-6 項参照)の方がヒーター界面における熱抵抗は減少した。また、前述している熱伝導性グリスを用いた簡易放熱試験の結果よりも、ヒーター界面における熱抵抗が減少することがわかった。

なお、 T_1 、 T_2 、 T_3 および T_4 は、それぞれ、図 2-2-4 に示すように、ヒーター部位、ヒーター直下のフィン部位、フィン先端部位および外気温度(雰囲気温度)である。また、熱抵抗、熱伝導率および放射熱は下記の式により求めた。

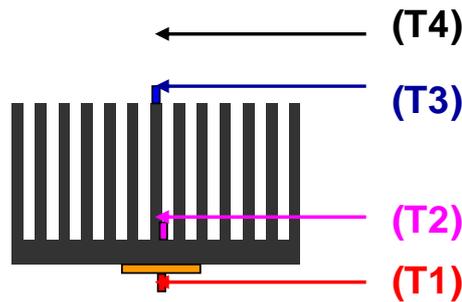


図 2-2-4 簡易放熱試験模式図

$$\text{熱抵抗 } R(T1-T2) = (T1-T2)/Q \quad \dots(1)$$

$$\text{熱伝導率 } \lambda (T1-T2) = Q/A \times L(T1-T2)/(T1-T2) \quad \dots(2)$$

$$\text{熱放射率 } \varepsilon (T1-T2) = Q / [\sigma A \{(T1+273)^4 - (T2+273)^4\} + \alpha A(T1-T2)] \quad \dots(3)$$

条件:ヒーター発熱量(Q)=7.68W

放熱面積(A)および測定間距離(L):各測定試験片の形状に依存

熱伝達率 (α)=1.0;自然対流と仮定

ステファン・ボルツマン定数 (σ)= 5.67×10^{-8} W/m²K⁴

(3) 熱流体解析結果

熱流体解析装置を用いて、ステンレスの簡易放熱試験と同じ形状および条件でのモデルを作製し、熱流体解析を行った結果を図 2-2-5 に示す。熱流体解析を行うことによって、熱流体の到達温度の値および温度挙動を得ることができた。このことから、熱流体解析装置を用いた放熱部品の温度挙動を把握できることがわかった。

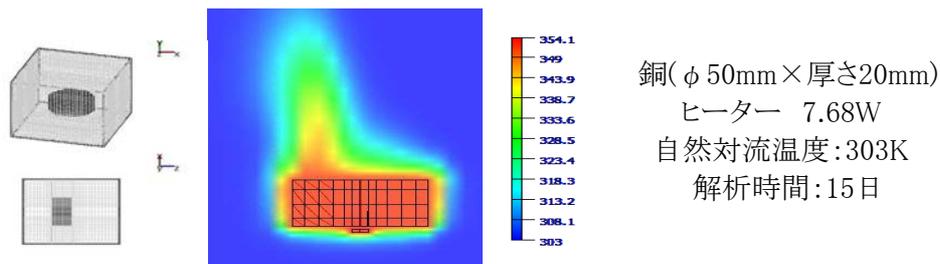


図 2-2-5 銅(φ50×20mm)モデルの熱流体解析結果

図 2-2-5 は、銅のブロック形状を用いた場合の熱流体解析結果である。解析結果から、ヒーターによって加熱された熱が銅材料へ熱移動している様子が確認できた。表 2-2-6 に簡易放熱試験との結果を比べた表を示す。

表 2-2-6 熱流体解析と簡易放熱試験の結果の比較

	熱流体解析結果	放熱試験結果
$T_1(^{\circ}\text{C})$	81	112
$T_2(^{\circ}\text{C})$	78.2	93.5
$R_{(T_1-T_2)}$	0.36	2.41
$\lambda_{(T_1-T_2)}$	27.95	4.23

この結果から、簡易放熱試験と熱流体解析の結果には、まだ差があることがわかった。また、定常状態での解析結果にも若干の差が見られた。そこで、再度メーカーと打合せを行うことによって、新規項目である熱放射率の項を含めた熱流体解析ソフトの更新を行った。その結果を図 2-2-6 に示す。

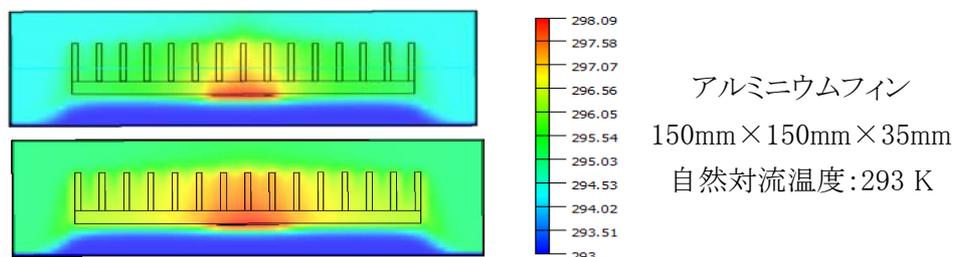


図 2-2-6 アルミニウムフィンモデルの熱流体解析結果
(上図:熱放射率 1.0 で解析、下図:熱放射率 0.2 で解析)

この結果から、熱流体解析ソフトを更新することによって、簡易放熱試験の結果と近い値を得ることができるようになった。また、熱放射率を設定する項目を増やすことによって、材料毎に異なる熱放射率を設定できる為、今後作製する放熱部品の放熱設計への展開ができるようになった。また、簡易放熱試験で得られた熱放射率を入力することによって、新規材料においても、熱流体解析をより正確に行うことができることがわかった。

(4) 考察

簡易放熱試験から、それぞれの試験片における放熱特性に関する知見を得ることができた。また、アルミニウムとグラファイトにおいては、アルミニウムに比べグラファイトの方が、熱放射率が総じて高いことがわかった。放熱においては、ヒーター界面の熱抵抗が非常に大きく、次に熱放射率であり、材料間の熱抵抗は少なかった。そこで、ヒーター界面に熱伝導性グリスを用いることによって、放熱特性が改善された。また、塗料液を用いるこ

とによって、更に熱抵抗が減少することがわかった。アルミニウムおよびグラファイトのいずれにおいても、素子温度であるヒーター部の温度は 90℃以下であった。

熱流体解析装置を用いて、構築したモデルでの熱流体解析を行うことによって、熱流体の到達温度の値が分かり、温度分布や温度挙動を知ることができた。また、熱流体解析装置を用いた放熱部品の温度挙動の把握が可能であることがわかった。熱放射率の項目を設定したことによって、更に簡易放熱試験の結果に近い値を得ることができた。しかしながら、モデルの構築条件や熱流体解析装置の特性から、より最適な設定値をつめていく必要と更なる解析精度の向上および解析時間の最適化が必要である。新規材料においては、簡易放熱試験とのマッチングを行っていくために、簡易放熱試験および熱流体解析を比較しながら、より精度の高い熱流体解析が行える最適なパラメーターの知見が必要である。

2-3 LED 放熱部品の成形加工技術の研究開発および LED ランプの試作・検証

熱プレス成形装置を用いた LED 放熱部品の成形加工技術の研究開発するとともに、LED ランプのプロトタイプ試作し、接着剤や熱伝導性シートを用いないことによる部品点数削減、組立工程削減に基いたコスト試算の比較、軽量化比較等、本技術の特徴を明確にすることによって、アルミ製品より優れている事を立証し、車載用 LED ヘッドランプメーカーに本技術を提案できる体制を構築した。

2-3-1 放熱部品の成形加工技術

(1) 熱プレス成形装置を用いた成形品の製作

GF:PPS=60:40wt%の GF コンパウンドおよび BN:PPS=80:20wt%の BN コンパウンドを原料に、ブロック形状成形品用金型②およびフィン形状成形品用金型①を用いて熱プレス成形したときの製造条件および結果を表 2-3-1 に示す。

表 2-3-1 製造レベルで行った原料調整の歩留まり結果

項目	単位	GF コンパウンド				BN コンパウンド	
		金型②			金型①	金型②	
		I	II	III	I	I	II
投入量	g	1336	1905	1940	1673	45.0	90.0
成形品重量	g	1331	1899	1405	1618	43.2	86.4
寸法	mm	150×150			150×150	150×150	
高さ	mm	33.8	47.9	36.5	61.9	1.1	2.0
表面積	cm ²	653	737	669	1783	456	462
密度	g/cm ³	1.75	1.76	1.71	-	1.75	1.91
空隙率	%	1.2	0.5	2.5	-	11.6	3.6
成形品歩留り	%	99.6	99.7	72.4	96.7	96.0	96.0
平均歩留り	%	90.6			96.7	96.0	

ブロック形状成形品については、熱プレス成形装置の真空機構を用いることにより、空隙率が低下し、熱伝導率が向上した(表 2-1-2 参照)。フィン形状成形品については、表面が滑らかな成形品を得ることが出来き、金型①を用いた成形においては、コンパウンドの漏れはほとんど見られなかった。

(2) 銅-BN-GF 一体成形シート

図 2-3-1 に銅 - (BN - PPS) - (GF - PPS) の一体成形シート成形により得られた銅張基板成形品

(150×150×1.5mm(銅:0.1mm、BN:1.1mm、GF:0.3mm))の断面図の写真を示す。側面部の観察からは、成形によるBN層とGF層の欠損は見られなかった。



図 2-3-1 一体成形シート(側面部)

2-3-2 LED ランプ放熱部品の試作・検証

LED ランプの試作では、市販されている LED 投光器で用いる LED アルミ基板(ユーシンテクノ製 LED 使用のアルミ基板 ELA-100NM)のうち1枚を、センサーである熱電対を放熱部品に取り付け測定を行った。その結果を表 2-3-2 に示す。なお、市販の LED 投光器はアルミ基板2枚を搭載しており、LED アルミ基板の発熱量の値は、カタログ値の消費電力(一枚:50W)と同等と仮定し算出した。結果から、LED ランプのプロトタイプは、市販の LED 投光器に近い放熱性能を有することがわかった。

表 2-3-2 LED アルミ基板を用いた LED 放熱試験の結果

	アルミニウム フィン形状 (切削加工品)	グラファイト フィン形状 (切削加工品)	グラファイト フィン形状 (熱プレス成形品)	市販の LED 投光器	LED アルミ 基板のみ	
接合界面	熱伝導性シート	熱伝導性シート	熱伝導性シート	熱伝導性シート	熱伝導性シート	
放熱 部 品	寸法 (mm)	150×150×35	150×150×35	150×150×61	222×225×80	170×90×2
	表面積 (cm ²)	1544	1544	1783	8276	306
	重量(g)	1102	658	1618	3551	66
T ₁ (°C)	47.5	54.9	52.5	34.3	106.6	
T ₂ (°C)	43.5	47.8	41.8	33	106	
T ₃ (°C)	43.1	39.8	39.9	32.2	-	
T ₄ (°C)	11.5	11.5	14.5	12.7	14.5	
R(T ₁ -T ₂)	0.08	0.14	0.21	0.01	0.01	
R(T ₂ -T ₃)	0.01	0.16	0.04	0.01	-	
λ(T ₂ -T ₃)	9791	489	1754	1829	-	
R(T ₃ -T ₄)	0.63	0.57	0.51	0.20	1.83	
ε(T ₃ -T ₄)	1.50	1.73	1.63	0.89	-0.12	

2-4 原材料の選択および高度な熱伝導性パス形成の最適化

原料として用いるマイクロ波感応材、高熱伝導性材(高熱伝導性フィラー)高分子材(熱可塑性樹脂)および有機結合材について、熱重量分析(TGA)および示差熱分析(DSC)による熱および重量変化、マイクロ波に対する感応性、得られた高熱伝導性材料の熱伝導率、電気伝導度、強度等の物性ならびに SEM 等による微小観察などの原料の基本特性を求めるとともに、周辺情報を検証しながら最終目的に合った原料を選択する。

(1) マイクロ波感応材、高熱伝導性材および高分子材の選択の最適化

小型マイクロ波オーブンをを用いたマイクロ波に対する感応性、示差走査熱量測定装置(DSC)および熱重量分析装置(TGA)を用いた熱に対する感応性、ならびに SEM を用いた微小観察の測定によって、原料の基礎特性を求め共通課題を抽出し、材料の高熱伝導化に応用した。その結果、高熱伝導性材としては、材料自身の熱伝導率は高いが、形状が粒状(球状)でかつ平均粒径の小さな合成ダイヤモンドや、窒化アルミニウムよりも、板状で平均粒径の大きなグラファイトや、六方晶窒化ホウ素の方が優れていることがわかった。また、高分子材(樹脂)としては、ポリフェニレンスルフィド(PPS)だけでなく、PET、ポリカーボネート(PC)、PE 等、原料および成形品において融点を有する幅広い樹脂に応用できることがわかった。

(2) 有機結合材の選択と最適化

ベンゾオキサジン を 1000°C まで加熱して炭素化すると、多量の揮発性ガスが発生し、焼成中にボイドを生成させて、高熱伝導化を阻害していることがわかった。このため、ナフタリン、フェナントレンおよびアントラセンを含む多環芳香族化合物ならびに o-フェニルフェノールおよび p-フェニルフェノールを含む多環式フェノール類からなる高炭素化剤を用いて、TGA を用いる残炭率(チャー生成率)の測定や、炭素化成形品の作製を行ったが、あまり改善されなかった。さらにチタンパウダーのような相溶化剤の併用や、1600~2000°C のチタンの融点以上での焼成を試みたがあまり効果がなく、空隙率の低減は依然大きな課題となった(2-5 項参照)。

(3) 高度な熱伝導性パス形成の最適化

成形品の熱伝導率、電気伝導度、機械強度および熱膨張係数の測定によって、高度な熱伝導性パス形成を予測するとともに、DSC による融解熱の測定、元素分析を含む SEM や TEM の微小観察を行い、ビジュアルな方法によって高度な熱伝導性パスが形成されていることを立証できた。その結果、特定の装置を用いた混合粉体熱プレス成形により得られた複合材料においては、グラファイトおよび六方晶窒化ホウ素のような板状の高熱伝導性材が、高分子材(樹脂)との絡み合い構造を有する高度な熱伝導性パスのネットワークを形成し(高分子微細構造制御)、優れた熱伝導性、熱膨張係数の制御および機械強度を示すことが明らかになった。また、異種材料の一体成形においても熱伝導性パスが形成されることをビジュアルに観察することができた。このように、高分子微細構造制御は有機材料の高熱伝導化に優れた方法であることがわかった。

図 2-4-1 に、高熱伝導性材(フィラー)濃度と各種原料および各種混合方法によって成形し得られた成形品の樹脂当たりの融解熱との関係を示す。これによって、熱伝導率との相間のあることが示された。また、図 2-4-2 には、粉体混合および熔融混合のよって得られた GF-PPS(60:40wt%)の成形品のプレス方向およびプレス方向に垂直な面を観察した SEM 写真を、図 2-4-3 には、BN-PPS(80:20wt%)と GF-PPS(60:40wt%)とを一体成形して得られた成形品のプレス方向に垂直な面を観察した SEM 写真を示す。その結果、粉体混合と熔融混合とでは明らかな相違が見られ、熔融混合では樹脂が海、高熱伝導性材(フィラー)が島の海島構造を有するのに比べ、粉体混合では樹脂とフィラーが絡み合い構造を有していることが示され、その結果、高い熱伝導率を示すことがわかった。また、絶縁/導電性材料の一体成形品については、元素分析からも、その界面においては、2つのフィラーに沿った樹脂の結晶化により連続相を形成しているのが見られ、界面での熱抵抗を下げ、かつ機械的強度を高めていることが明らかになった。

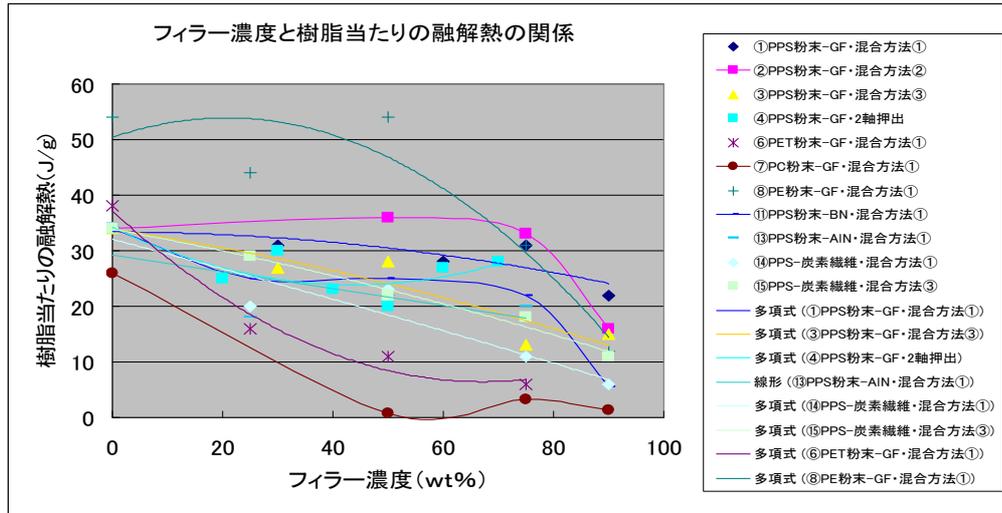


図 2-4-1 高熱伝導性材(フィラー)濃度と成形品の樹脂当たりの融解熱との関係

成形方法		粉体混合	熔融混練
観察方向	沿層面 プレス 押出 観察方向		
	貫層面 プレス 押出 観察方向		
フィラー		~100 μ m、高アスペクト比 不均一・ランダム・三次元的な広がり	~40 μ m、低アスペクト比 均一・高分散・二次元的な流れ
構造イメージ		からみあい 有機ポリマー 熱伝導性フィラー 熱伝導性パス	海島 有機ポリマー 熱伝導性フィラー

図 2-4-2 粉体混合および熔融混合のよって得られた GF-PPS 成形品の SEM 写真

混合方法	粉体混合 PPS+(導電層:GF60wt%、絶縁層:BN80wt%)
成形方法	熱プレス一体成形
観察方向 (貫層面)	
フィラー	~100 μ m (GF)、~20 μ m (BN) 不均一・ランダム・三次元的な広がり
構造イメージ	からみあい

図 2-4-3 BN-PPS と GF-PPS とを一体成形して得られた成形品の SEM 写真

2-5 100~500W/mK 超高熱伝導性複合材料の研究開発

高熱伝導性材として、単結晶ダイヤモンド、窒化アルミニウム、六方晶窒化ホウ素、有機結合材としてベンゾオキサジン、相溶化剤としてチタンパウダーを用い、特定の混合機により均一混合し、試験用金型で試験片を作製し、熱伝導率および電気伝導度を測定する。単結晶ダイヤモンドおよび窒化アルミニウムまたは六方晶窒化ホウ素の単独製品からなる、熱伝導率が 100~500W/mK の超熱伝導性複合材料製品の開発を目指した。

(1) 単結晶ダイヤモンド、窒化アルミニウムおよび六方晶窒化ホウ素の高熱伝導化

熱伝導性材として、単結晶ダイヤモンド(DIA)、窒化アルミニウム(ALN)、六方晶窒化ホウ素(BN)、相溶化剤としてチタンパウダー(TiC 生成が理論量の 20%および 50%に相当する量)、有機結合材としてベンゾオキサジン(Oxz)を用い、チタンを含む熱伝導性材濃度 80、85、90wt%において、特定設備を用いる均一混合、次いで約 200°Cでの熱プレス成形(金型寸法:4x4cm)を行った。その後、ガラス製電気炉による 1000°C炭素化、更に、セラミックス電気炉による 1600 または 1700°Cでの焼成、ならびにチタンを完全に融解させるためグラファイト電気炉による 2000°Cでの焼成を行ない、成形品の空隙率、熱伝導率および電気伝導度を測定した(図 2-5-1 参照)。

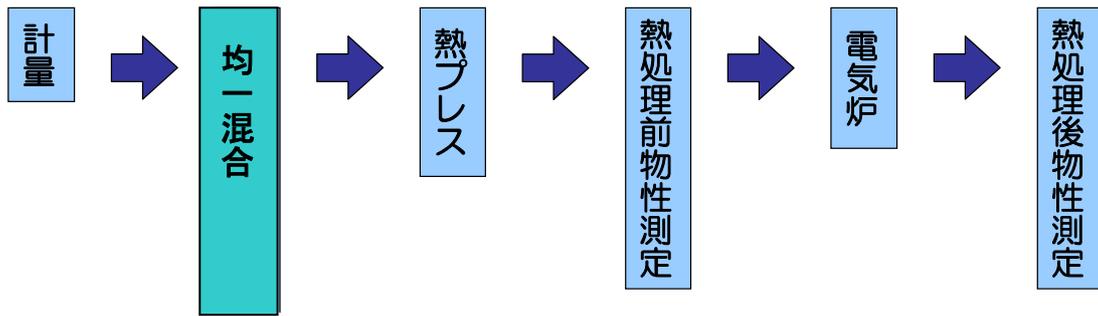


図 2-5-1 成形品の作製および評価手順

相溶化剤チタンパウダーについては、添加なし、炭化チタン(TiC)が理論量の20%生成に相当する量の添加、さらにTiC50%生成について検討した。TiC20%生成した場合の単結晶ダイヤモンド、窒化アルミニウム、六方晶窒化ホウ素の高熱伝導化における熱伝導率と処理温度との関係、空隙率と熱伝導率の関係、電気伝導度に及ぼす熱伝導率および空隙率等の影響を調べ、それぞれ、図 2-5-2~2-5-9 に示す。

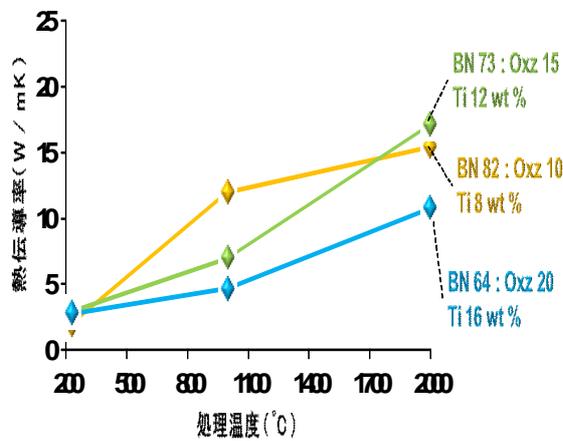


図 2-5-2 DIA 高熱伝導化における熱伝導率と処理温度との関係

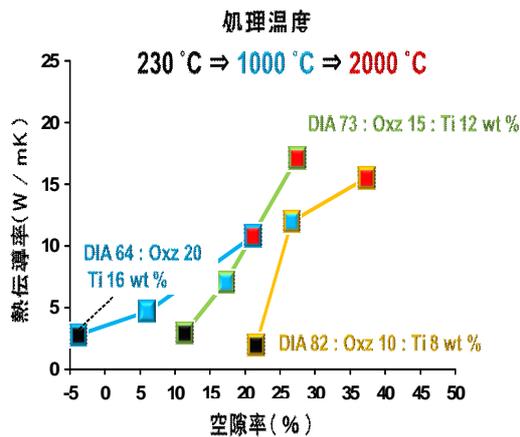


図 2-5-3 DIA 高熱伝導化における熱伝導率と空隙率との関係

温度条件：230 °C ⇒ 1000 °C ⇒ 2000 °C

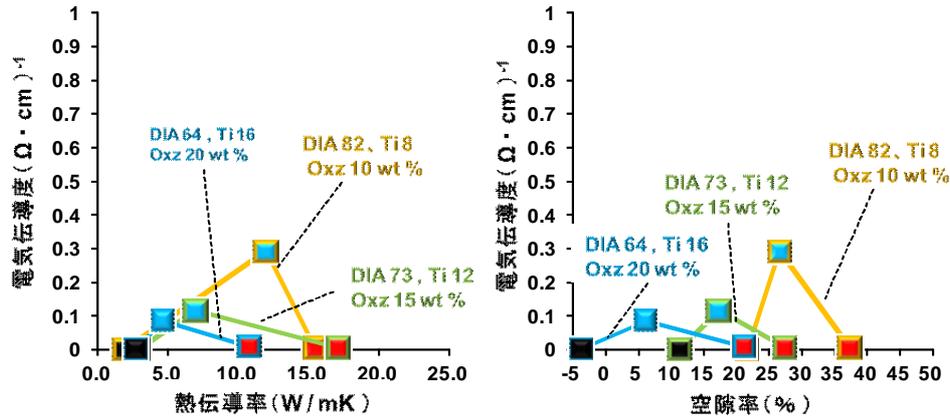


図 2-5-4 DIA 高熱伝導化における電気伝導度に及ぼす熱伝導率および空隙率の影響

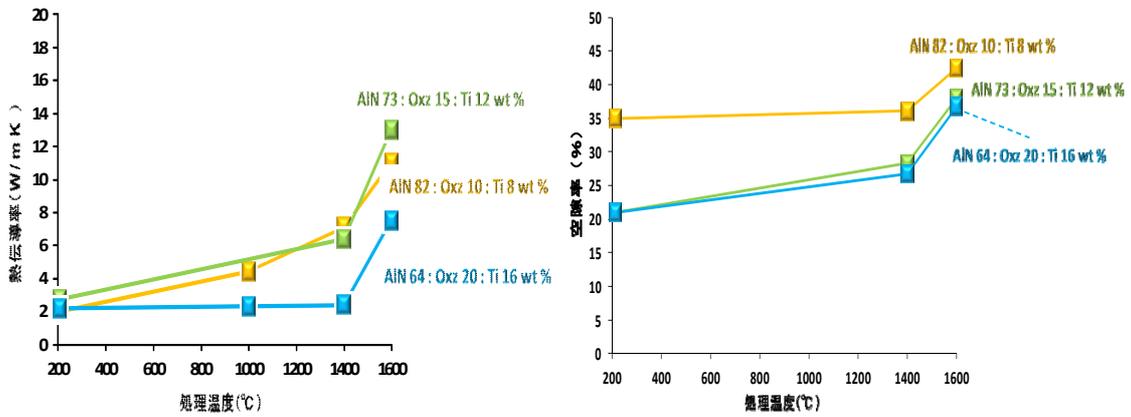


図 2-5-5 ALN 高熱伝導化における熱伝導率および空隙率と処理温度との関係

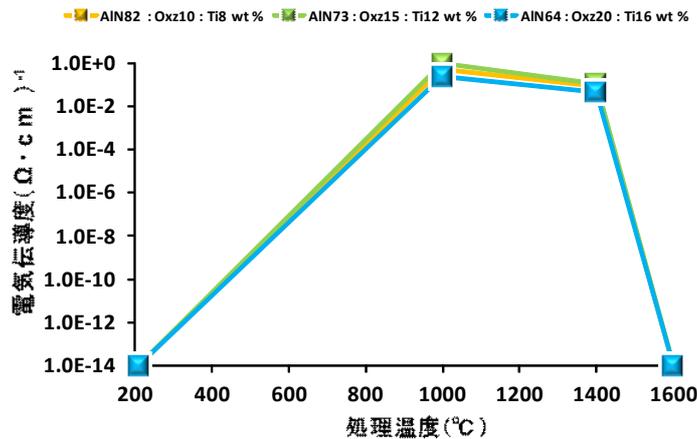


図 2-5-6 ALN 高熱伝導化における電気伝導度と処理温度との関係

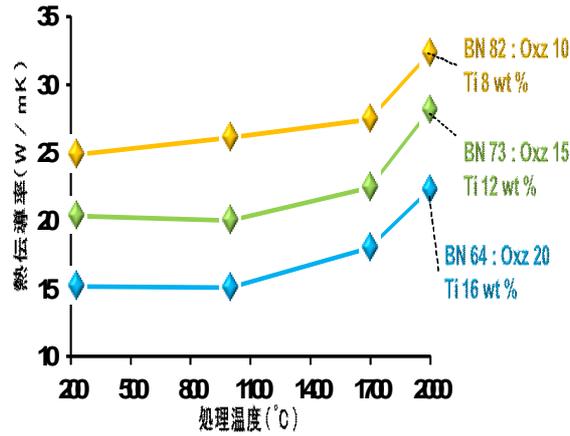


図 2-5-8 BN 高熱伝導化における熱伝導率と処理温度との関係

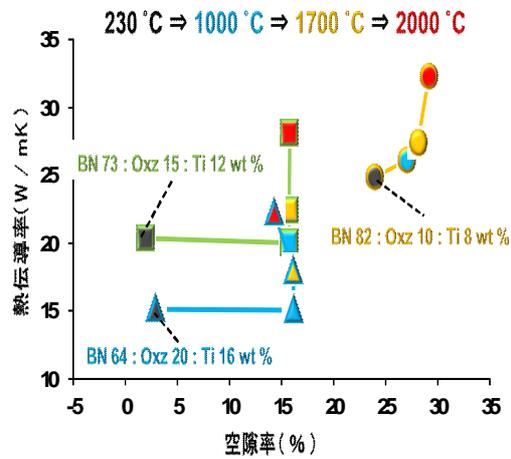


図 2-5-9 BN 高熱伝導化における熱伝導率に及ぼす空隙率の影響

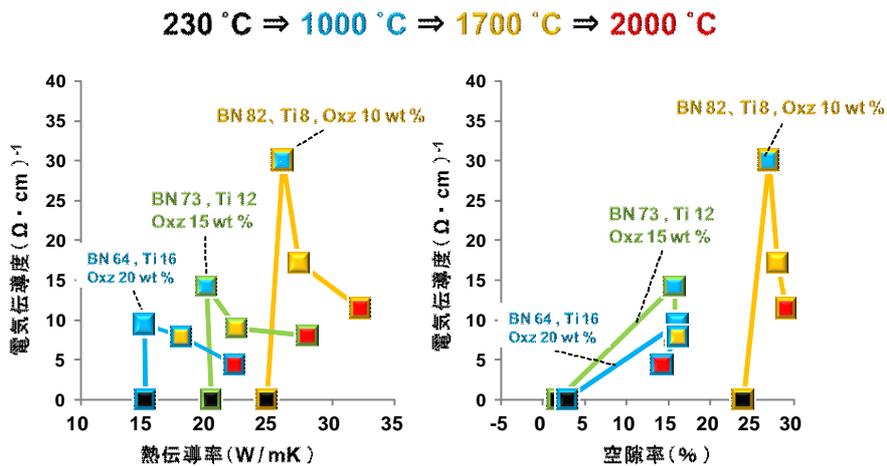


図 2-5-10 BN 高熱伝導化における電気伝導度に及ぼす熱伝導率および空隙率の影響

(2) 六方晶窒化ホウ素－ベンゾオキサジン系でのマイクロ波による高温加熱

前述において高い熱伝導率の得られた BN:Oxz が 90:10 (wt%) の 1000°C 焼成 (炭素化) 品を用いて、酸化アルミニウム (AlO) 粉で覆い非酸素雰囲気下でマイクロ波による高温加熱を行った。その結果を表 2-5-1 に、マイクロ波照射時間と、測定温度、熱伝導率および空隙率の変化を図 2-5-10 に示す。左図から AlO 粉単独品に対するマイクロ波照射時よりも、試料を包埋した場合のほうが高い温度を示している。このことから、試料にマイクロ波のエネルギーが伝わり試料の加熱ができていると思われる。

また、包埋に用いた酸化アルミニウム粉のすき間から試料が、オレンジ色または白色に発光していることが伺え、マイクロ波照射時の試料温度は 1000°C 以上に達していると思われる。右図から、マイクロ波照射の累積時間増加に伴い、試料量が低下し、熱伝導率が低下する。マイクロ波照射後の試料は次第に白く変色した。試料量の低下、熱伝導率の低下および試料の変色は、AlO 粉では試料の酸化を防ぐのが困難であり、表面が酸化されたためであると思われる。

表 2-5-1 外部加熱後の試料に対するマイクロ波照射試験結果

BN:Oxz=90:10(wt%)	出発試料	実験 1	実験 2	実験 3
加熱方式	外部加熱	マイクロ波		
重量 (g)	16.7	16.5	16.0	15.2
体積 (cm ³)	10.04	9.91	9.91	9.66
かさ密度 (g/cm ³)	1.66	1.67	1.62	1.57
熱伝導率 (W/mK)	27.4	23.7	21.3	17.4
表面の電気伝導度 (Ω cm) ⁻¹	1.50	1.55	4.05x10 ⁻¹³ (*1)	10 ⁻¹⁴ 以下(*1)
断面の電気伝導度 (Ω cm) ⁻¹	0.38	0.27	-	-

*1 2 重リンク法による体積電気抵抗値から算出

※実験 2 は実験 1 試料を、実験 3 は実験 2 試料を照射

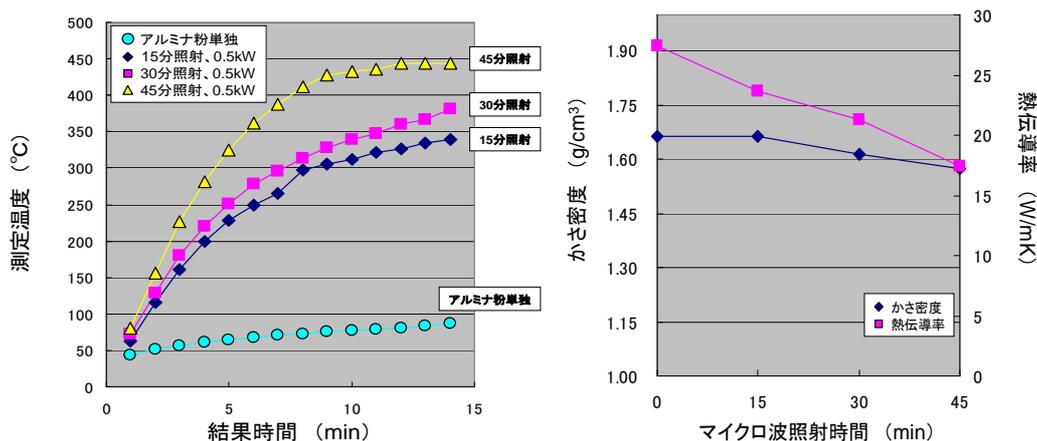


図 2-5-11 (左) 経過時間と測定温度の関係、(右) マイクロ波照射時間とかさ密度の関係

(3) 考察

単結晶ダイヤモンド (1000~2000W/mK、平均粒径 9μm)、窒化アルミニウム (180~200W/mK、平均粒径 3μm) は、材料自身の熱伝導率は高いが、僅かな樹脂 (10~20% のオキサジン) の存在で、約 200°C での成形

品は、極端に低い熱伝導率と大きな空隙率を示す。両者の高熱伝導性材に共通して言えることは、粒径の小さな粒状(球状)のフィラーである。図 2-5-12 に示すように、球状高熱伝導性材は、高熱伝導性材同士が接触する面積は非常に少なく、接触する周辺は空隙になりやすい。このため、極端に低い熱伝導率を示すものと考えられる。

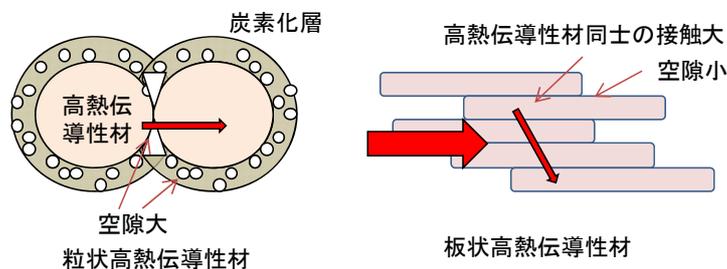


図 2-5-12 粒状(球状)および板状高熱伝導性材と熱伝導性

一方、六方晶窒化ホウ素(異方性があり、バルクの熱伝導率は 60W/mK 、平均粒径 $10.5\mu\text{m}$)は板状であるため、球状の前二者に比べ、高熱伝導性材自身の接触面積は大きく、空隙率も小さくなる。このため、熱伝導率が低い割には、異方性はあるが 30W/mK 以上の高い値を示すものと思われる。

結論としては、高い熱伝導率の高熱伝導性材を使用しても、高熱伝導性材同士の接触面積が小さく、熱伝導性の極端に小さい空気や、樹脂が周辺を覆うために高い熱伝導性材料を得ることができない。また、 1000°C 以上の温度で焼成し有機結合材(オキサジン)を炭素化すれば熱伝導性パスを形成させることができるが、ポイド生成を抑えることができず、当初目標とした $100\sim 500\text{W/mK}$ の超高熱伝導性材料を得ることができなかった。ポイド生成および相溶化に効果があると予想されるチタンを併用しても、相溶化層となる TiC 生成は認められるが、効果が見られなかった。また、マイクロ波加熱による焼成では完全な非酸化雰囲気にすることが困難であることがわかった。残された方法として、超高压で成形および焼成・炭素化し、空隙率を低減することが考えられるが、高価な設備を必要とし、研究の継続を断念し早期事業化を目指し高分子微細構造による高熱伝導パス形成に焦点を絞った。

2-6 30～200W/mK の高熱伝導性複合材料の研究開発

高熱伝導性材として合成ダイヤモンド、窒化アルミニウム、六方晶窒化ホウ素(BN)、グラファイト(GF)、有機結合材としてベンゾオキサジン(Oxz)、高分子材(樹脂)としてポリフェニレンスルフィド(PPS)を用いて、 $30\sim 200\text{W/mK}$ の熱伝導性複合材料の開発を目指した。

(1) グラファイトによる PPS 樹脂の高熱伝導化

高熱伝導性材にグラファイト(GF:鱗片状グラファイト)および高分子材(樹脂)に PPS を用い、図 2-6-1 のように、熔融混合押出しシート化—熱プレス成形からなる熔融混合法(2-1 項参照)および特定の装置を用いる粉体混合—熱プレス成形からなる粉体混合法によって各種 GF 濃度の成形品を作製し、ホットディスク法による熱伝導率、四端子法による表面および断面電気伝導度、曲げ試験による機械的強度(曲げ強度および曲げ弾性率)および TMA による熱膨張係数の測定を行い、その結果を図 2-6-2～2-6-6 示す。

● 溶融混合法



● 粉体混合法

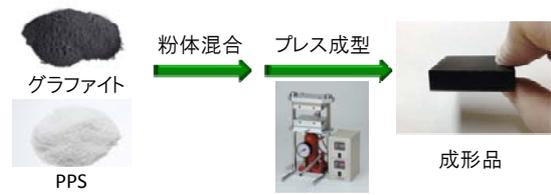


図 2-6-1 溶融混合法および粉体混合法による成形品の作製

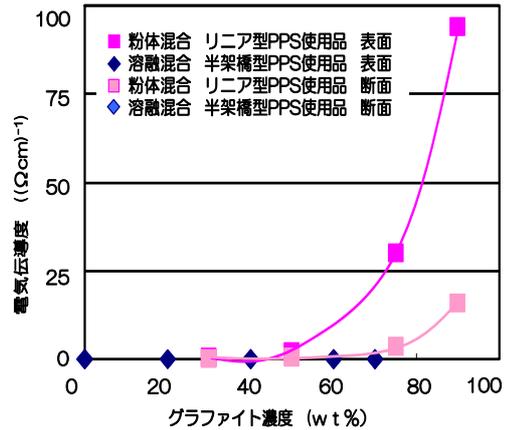
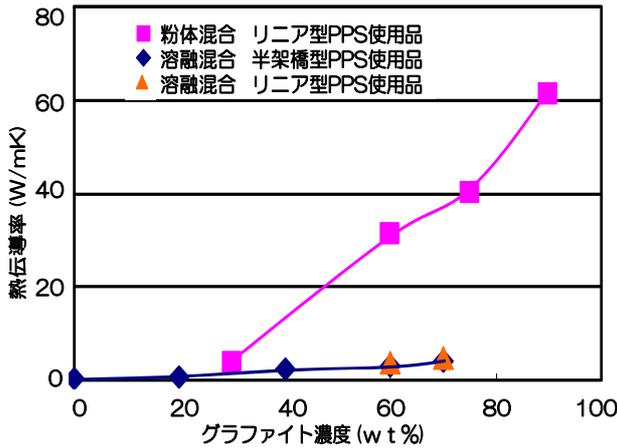


図 2-6-2 熱伝導率とグラファイト濃度との関係 / 図 2-6-3 電気伝導率とグラファイト濃度との関係

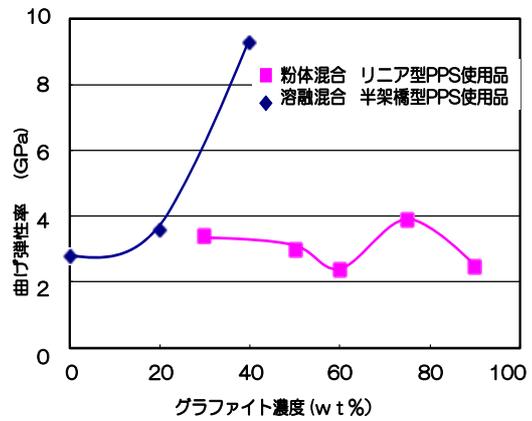
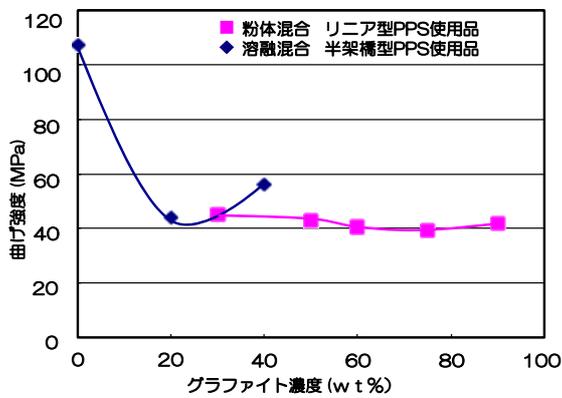


図 2-6-4 曲げ強度とグラファイト濃度との関係 / 図 2-6-5 曲げ弾性率とグラファイト濃度との関係

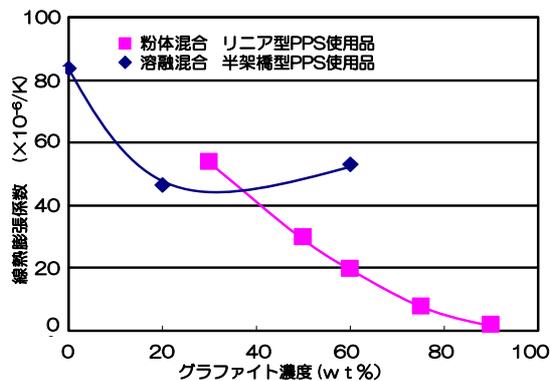


図 2-6-6 熱膨張係数とグラファイト濃度との関係

(2) セラミックスによる PPS 樹脂の高熱伝導化

前述と同様に粉体混合法によって、セラミックス高熱伝導性材として六方晶窒化ホウ素、窒化アルミニウムを用い PPS 樹脂の高熱伝導化を行った。その結果を図 2-6-7 および 2-6-8 に示す。

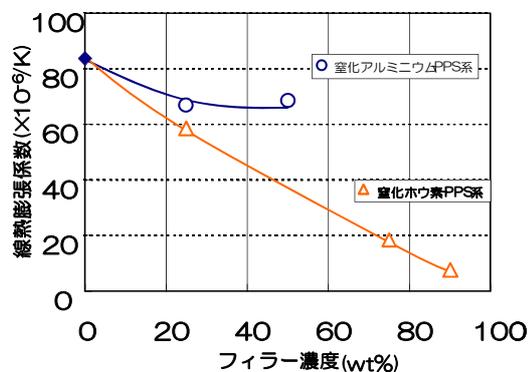
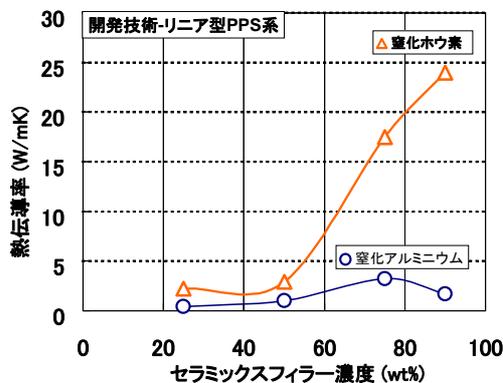


図 2-6-7 熱伝導率とフィラー濃度との関係 / 図 2-6-8 熱膨張係数とフィラー濃度との関係

(3) 塗料液の作製および評価

1mm 以下の薄膜を作製できるように、高熱伝導性材として BN(絶縁性)、GF(導電性)を、高分子材として PPS、ベンゾオキサジンを用い、各種溶媒の組み合わせにより安定な塗料液を作製できた。前者については、GF-PPS 成形品に塗付・成形して、1mm 厚以下の絶縁薄膜層を作製することができた(2-2、2-3 項参照)。後者については、金属に塗付・成形して金属の熱放射率向上に寄与することが期待される。

(4) 考察

板状高熱伝導性材(フィラー)として、グラファイト、六方晶窒化ホウ素を用い、粉体混合法による各種フィラー濃度における PPS 樹脂の高熱伝導化を検討した。その結果、2 軸押出シート化による熔融混合法や、粒状(球状)フィラーである窒化アルミニウムに比べて、フィラー高充填濃度にもかかわらず PPS 樹脂と同程度の機械的強度を維持しながら、著しく高い熱伝導率を発現でき、かつフィラー濃度に依存する熱膨張係数制御ができることを示した。グラファイト成形品では、表面と断面では異なる電気伝導度を示し異方性のあることがわかった。また、六方晶窒化ホウ素の電気伝導度測定では $10^{-10}(\Omega\text{cm})^{-1}$ 以下の高絶縁性材料であることがわかった。このような結果は、フィラーと樹脂とが絡み合い構造のネットワークによって高度な熱伝導性パス(高分子微細構造制御)が形成されていることを示唆するものであり、2-4 項における SEM 観察によって実証された。一方、塗料液を作製することができ、1mm 以下の薄膜化が可能となった。

第3章 全体総括

3-1 研究開発成果

熱伝導性は高いが、粒または球状であるダイヤモンド(1000~2000W/mK)や窒化アルミニウム(200W/mK)よりも、熱伝導性は低い、鱗片状のグラファイト(異方性;バルクの熱伝導率:200W/mK)や、六方晶窒化ホウ素(異方性;バルクの熱伝導率:60W/mK)の方が、熱伝導性に著しく優れた結果を示した。高温焼成による炭素化を経由して熱伝導性パスを形成させるよりは、「特定装置を用いる粉体混合-粉体成形」による高分子微細構造の制御による熱伝導性パスを形成させる方が、より実用的で十分なレベルの高熱伝導性材料が得られ、かつ有機複合材料のもつ軽量性、加工性、成形性等に優れることがわかった。また、本研究開発の特徴を生かした高熱伝導性複合材料(樹脂複合材料)の塗料液を作製することができ、塗付乾燥後、成形することによって、1mm厚以下の絶縁層を有する材料の作製や、金属放熱部品に塗付して熱放射性を高めることが可能となった。

このため、応用研究開発では、高熱伝導性材原料をグラファイト(導電)および六方晶窒化ホウ素(絶縁)に絞り検討し、導電および絶縁の両者の一体成形、銅-セラミックス-グラファイト複合材料からなる銅張基板およびフィン構造を有するグラファイト放熱部品の作製や、高熱伝導性材塗料液による絶縁層1mm以下の薄膜化に成功し、構成材料・部品開発の目処が立った。これらの構成材料・部分を組み合わせた熱源-放熱材料・部品(組み合わせ部品)の放熱試験により熱抵抗を求めたところ、放熱材料・部品自身の熱伝導性よりは、熱源と放熱材料・部品との界面や放熱材料・部品からの熱放射の影響が非常に大きいことがわかり、放熱部品の最適設計指針を得た。また、製造レベルの熱プレス成形装置に用いる金型の設計を行い、ブロック部品およびフィン構造を有する放熱部品の製造に成功し、部品密度および熱伝導率が向上することを確認できた。市販の大型LED投光器およびLEDヘッドランプを分解し、構成部品からそれぞれのコスト試算を行い、本研究開発の知見に基づいて試作したLEDランプのプロトタイプとの比較を行い、接着剤等の部品点数の削減、軽量化効果等によって、既存品に対抗できることを確認した。

以上の研究成果を、展示会に出展、学会発表および雑誌への投稿(表3-1-1)を行ったところ、川下ユーザーである自動車および関連部品メーカーや、LED照明メーカーから高い関心が寄せられた。表3-1-2に示すようにモデルサンプルをラインアップし、これらの材料・部品を組み立て使用することによって、デバイスのパッケージ化に向けた放熱部品の製造(図3-1-1)を提案できる体制ができた。現在、数社からデバイス製造に向けたサンプルの評価を受けている。

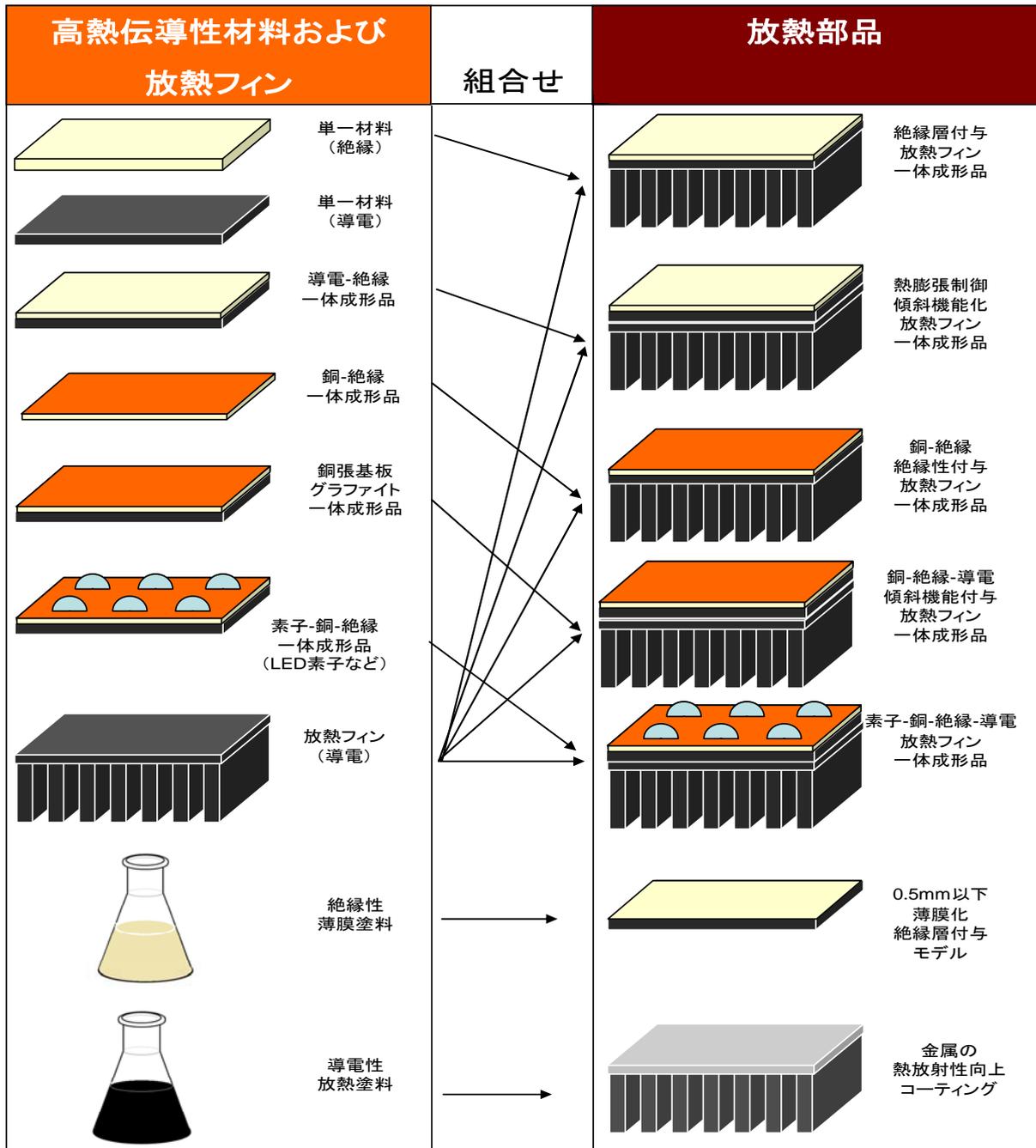
表 3-1-1 学会発表等

媒体	タイトル	年月日
JRCM ニュース No.316	平成 23 年度戦略的基盤技術高度化支援事業報告	平成 25 年 2 月
第 62 回高分子学会年次大会(京都市)ポスター発表	グラファイト含有新規高熱伝導性 PPS 樹脂材料の作製およびその特性 (2Pf086)	平成 25 年 5 月 30 日
第 63 回ネットワークポリマー討論会(千葉市)口頭発表	ポリベンゾオキサジンの炭素化	平成 25 年 10 月 23 日
第 22 回 高分子学会ポリマー材料フォーラム(東京都江戸川区)ポスター発表	セラミックス含有新規高熱伝導性材料の作製およびその特徴 (2PB06)	平成 25 年 11 月 29 日
第 21 回日本ポリイミド・芳香族系高分子会議(岡山市)ポスター発表	ポリベンゾオキサジンを原料とした炭素化フィルムの作製と特性評価	平成 25 年 12 月 6 日

表 3-1-2 モデルサンプルのラインアップ

No.	名称	仕様	製造原価	単位	機能
1	グラファイトコンパウンド	GF:PPS = 60 : 40	3,500-5,500	円/kg	導電性($1.4 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$)、粉体
2	セラミックスコンパウンド	BN : PPS = 80 : 20	6,000-22,000	円/kg	絶縁性($<10^{-7} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$)、粉体
3	グラファイト塗料液	GF:PPS = 60 : 40	5,000-6,000	円/kg	導電性、液体
4	セラミックス塗料液	BN : PPS = 80 : 20	6,500-16,000	円/kg	絶縁性、液体
5	グラファイトブロック	GF:PPS = 60 : 40 150×150×50 (mm)	17,000-21,000	円/個	導電性($35 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 30W/mK
6	グラファイトシート (シート押出成形)	GF: PPS = 30 : 70 300×300×5 (mm)	800-1,700	円/枚	導電性($<10^{-7} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 1W/mK
7	グラファイトシート (熱プレス成形)	GF: PPS = 60 : 40 150×150×5 (mm)	6,000-6,300	円/枚	導電性($13 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 30W/mK
8	セラミックスシート	BN : PPS = 80 : 20 150×150×1 (mm)	6,500-7,300	円/枚	絶縁性($<10^{-7} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 20W/mK
9	一体成形シート	GF:PPS = 60 : 40 BN : PPS = 80 : 20 150×150×2 (mm)	9,000-10,000	円/枚	導電/絶縁性($<10^{-7} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 20W/mK
10	グラファイト銅張基板	GF:PPS = 60 : 40 BN : PPS = 80 : 20 150×150×2 (mm)	10,000-11,000	円/枚	導電/絶縁性 ($<10^{-7} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$) 25W/mK
11	放熱フィン	GF:PPS = 60 : 40 150×150×45 (mm)	14,000-16,000	円/個	導電性($20 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$)

図 3-1-1 組み合わせによる放熱部品の作製



3-2 研究開発後の課題および事業化

本研究開発では、高分子微細構造制御によって得られた絶縁／導電性の新規高熱伝導性複合材料が、電子・電気デバイスのパッケージ化に向けた放熱部品として利用できることを提案できた。しかし、まだ、以下の研究課題が残されている。

- ①熱源との界面での熱抵抗がアルミ材料に比べても高いので、改良・確認が必要である。
- ②フィラー高充填材料であるため、靱性・柔軟性に欠け、かつ流動性がないので改良・改善、あるいは新タイプの樹脂の開発が必要である。
- ③アルミ放熱材料・部品や、射出成型法に比べ、まだ高価である。原料や、製法・設備の見直しによりコストダウンを図る必要がある。

自動車部品を含め、あらゆる電気・電子製品が高性能化、高効率化、軽量化等を喫緊の課題としており、今後、益々その傾向は高まって行く。外部 PR を積極的に行い、川下ユーザーでのサンプル評価を受けて、川下ユーザーのニーズに合うように摺り合わせおよび改善を行う。また、生産設備にも課題が残っているので、塗料液や銅張基板のようなそれほど設備をかけなくとも製造できる商品から、実用化を図る。川下メーカーとはできるだけ、共同研究開発に持ち込み、弊社でも製造できる部分を獲得する。