

公開版

平成 30 年度

戦略的基盤技術高度化・連携支援事業

戦略的基盤技術高度化支援事業

「次世代自動車部品用の新規高熱伝導性複合材料分散液の研究開発」

研究開発成果等報告書

平成 31 年 4 月

担当局 中部経済産業局

補助事業者 一般財団法人金属系材料研究開発センター

法認定事業者 株式会社高木化学研究所

## 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	3
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	9
第2章	本論 一次世代自動車部品用の新規高熱伝導性複合材料分散液の研究開発—	
2-1	新規高熱伝導性複合材料分散液に対する課題への対応	10
2-1-1	分散安定性、流動性等に優れた高熱伝導性複合材料分散液の研究開発	10
(1)	高熱伝導性複合材料分散液の製品設計及び評価方法	
(2)	絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液の研究開発	
(3)	導電性熱硬化性樹脂複合材料分散液の研究開発	
(4)	導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液の研究開発	
(5)	熱硬化性樹脂複合材料分散液の製造技術の確立及び硬化・成形技術の研究開発	
2-2	新規高熱伝導性複合材料成形品に対する課題への対応	13
2-2-1	熱伝導性および電気的特性に優れた高熱伝導性複合材料の研究開発	
2-2-2	耐衝撃性、耐熱性および熱サイクル性に優れた高熱伝導性複合材料の研究開発	
(1)	絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発	
(2)	導電性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発	
(3)	導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発	
2-2-3	新規な放熱特性測定方法並びにモルフォロジー解析の研究開発	16
(1)	分散液成形品の熱伝導率及び熱輻射率の新規な測定方法の研究開発	
(2)	分散液成形品のモルフォロジー解析	
2-3	成形加工技術に対する課題への対応	18
2-3-1	リアクトル用モールド樹脂成形加工技術の確立	
2-3-2	ステータ用モールド樹脂成形加工技術の確立	
2-3-3	二色成形・加工技術及び射出成形技術の確立	
2-4	環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化課題への対応	21
2-4-1	環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化の研究開発	
(1)	樹脂モールドリアクトルプロトタイプを用いるリアクトルの評価	
(2)	樹脂モールドステータプロトタイプを用いるモーターの評価	
2-4-2	市場動向の把握および販路開拓	
第3章	全体総括	
3-1	複数年の研究開発成果	26
3-1-1	新規高熱伝導性複合材料分散液に対する課題への対応	
3-1-2	新規高熱伝導性複合材料成形品に対する課題への対応	
3-1-3	成形加工技術に対する課題への対応	
3-1-4	環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化課題への対応	
3-2	研究開発後の課題・事業化展開	28

# 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

電気・電子機器の小型化、軽量化及び高性能化に伴い、パワーデバイスや、高輝度 LED ランプにおける「半導体素子からの発熱の問題」が喫緊の課題となっている。株式会社高木化学研究所は、この問題に注目し、平成 18 年度には、NEDO 委託事業地域研究開発技術シーズ育成調査に採択され、この分野におけるニーズが高いことを知り、独自に放熱材料の開発を進めてきた。その後、平成 23 年度に、一般財団法人金属系材料研究開発センター、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及びあいち産業科学技術センターからなる産学官連携プロジェクト「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」によって、画期的な樹脂の高熱伝導化に成功し、一定の成果を挙げた。

一方、パワーデバイスや、LED 高輝度ランプ以外に、次世代自動車の普及に伴って、モーターや、リアクトルの小型化・高出力化が急速に進み、コイル部の発熱の問題が喫緊の課題となり、最近では自動車の電動化及び自動運転がこの動きに拍車をかけている。開発の方向は、駆動モーターは、ATF を用いる冷却方法から注型樹脂(ポッティング材とも言われる)を用いる放熱方法に、リアクトルは、金属筐体内装型から樹脂モールド型に向かい、それに伴う革新的な注型樹脂の開発が急務になっている。注型樹脂に対する要求は、熱伝導率だけでなく、耐衝撃性、耐熱性、耐溶剤性、高温耐水性、熱サイクル安定性など、様々な面で厳しくなっており、流動性と高熱伝導化というトレードオフの関係を克服しなければならない。この課題の解決には、前記サポイン事業において開発した高熱伝導性材料を応用し、前記サポイン事業構成員に、新たに放熱特性及び硬化シミュレーションに詳しい国立大学法人鹿児島大学を加えて、ソリューションビジネスを目指した本研究開発を進めるに至った。

### (2) 研究開発の目標及び目的

本研究開発の研究目標及び目的は、以下の 3 項からなる。

(i) 熱伝導性(1~10 W/mK の範囲内で、2 W/mK、5 W/mK 及び 9 W/mK の 3 点)及び電気特性(絶縁性又は導電性)や、耐衝撃性、耐熱性及び熱サイクル性に優れる低粘度、中粘度、高粘度及びグリスの 4 グレードからなる分離安定性のよい高熱伝導性複合材料分散液の開発(駆動モーターのステータ及びコンバーター用のリアクトルの内装及び外装注型樹脂としての利用を想定)

(ii) 異種材料界面での熱抵抗の低い二色成形技術を確立し、ステータ及びリアクトルのデバイス全体としての放熱性を格段に高める(高価な絶縁性高熱伝導性複合材料分散液を内装成形用注型樹脂に安価な導電性高熱伝導性複合材料分散液を外装成形用注型樹脂に使用)

(iii) 高熱伝導性複合材料分散液の組成と、粘度及び硬化反応性、並びに成形品の機能性及び耐

久性との関係を体系化し、該分散液の硬化・成形・加工技術を確立するとともに、デバイスのプロトタイプを作製し放熱特性を把握することによって、ユーザーの様々な要求に答えられる体制を構築し、ソリューションビジネスを目指す。

### (3) 目標及び目的に対しての実施結果

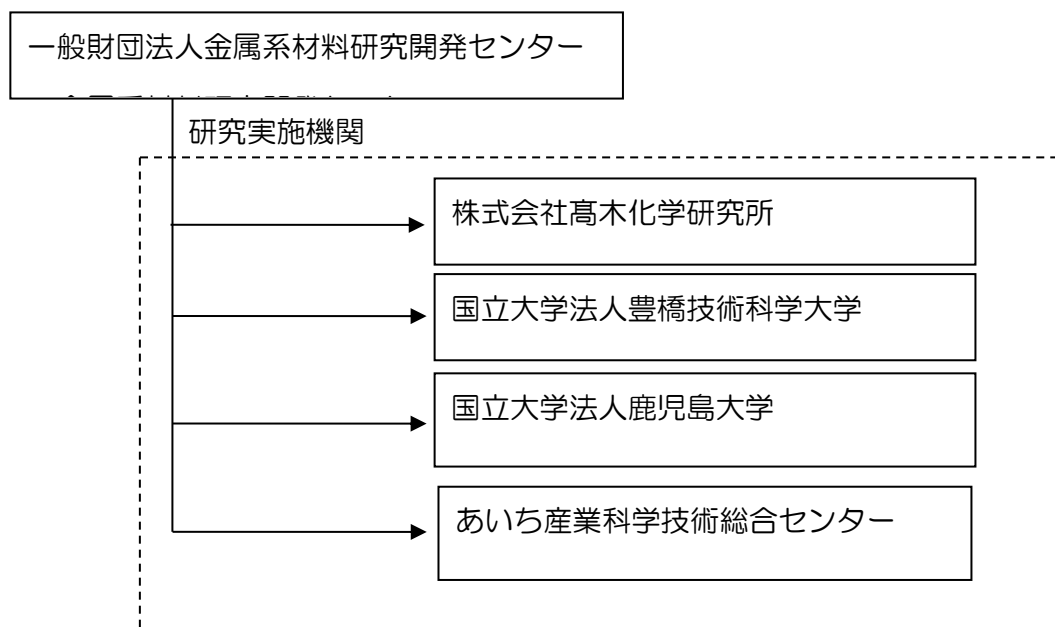
事業計画書には、それぞれの研究課題における目標値とともに、各年度における全体の年度目標を定め、初年度には研究環境及び技術基盤の整備、次年度には基盤技術の確立及び応用技術の整備、及び最終年度には基盤技術の体系化、応用技術の確立&販路開拓を実施し、当初の目標及び目的はほぼ達成できた。販路開拓では展示会でのPRや、学会発表、学会誌投稿等により技術資料としてまとめた。そして高熱伝導性複合材料分散液の国際出願を行い、権利の確保と同時にサンプルワークを実施し販路開拓に活用した。これらの成果として、川下ユーザー数社から具体的な開発製品の仕様を得て、具体的な開発ターゲットや開発スケジュールを確認することができ、共同開発に向けて継続実施している。

## 1-2 研究体制

### (1) 研究組織及び管理体制

#### 1) 研究組織全体

事業管理機関



総括研究代表者（PL）  
 株式会社高木化学研究所  
 上席顧問/片寄工場長  
 高木 紀彰

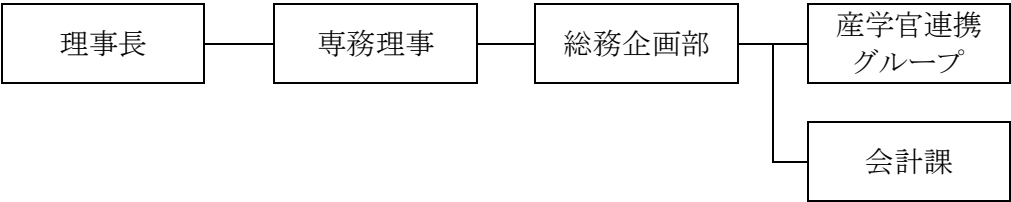
副総括研究代表者（SL）  
 国立大学法人豊橋技術科学大学  
 工学部 環境・生命工学系 教授  
 松本 明彦

2) 管理体制

①体制図

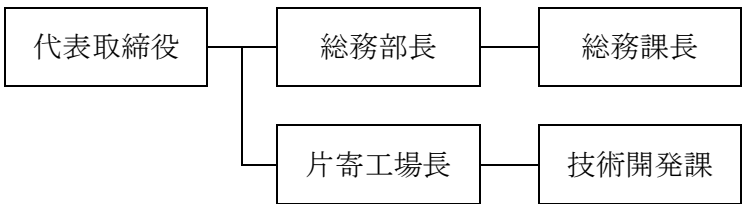
事業管理機関：

一般財団法人金属系材料研究開発センター

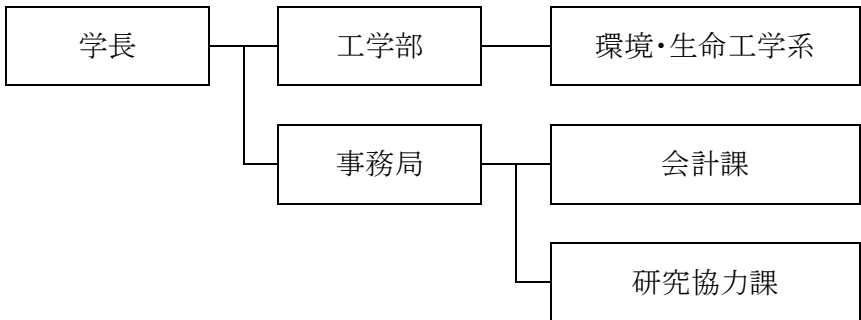


研究実施機関

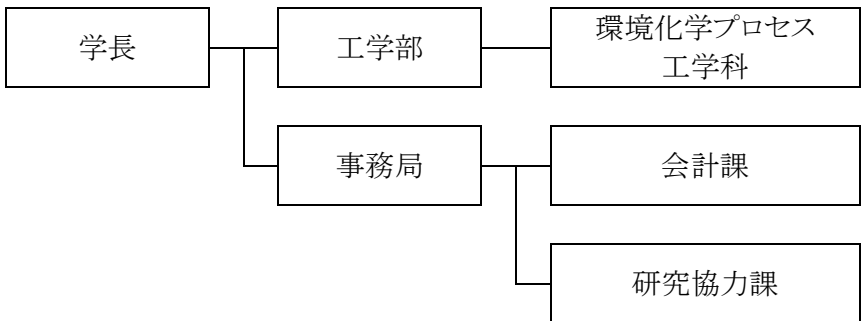
株式会社高木化学研究所



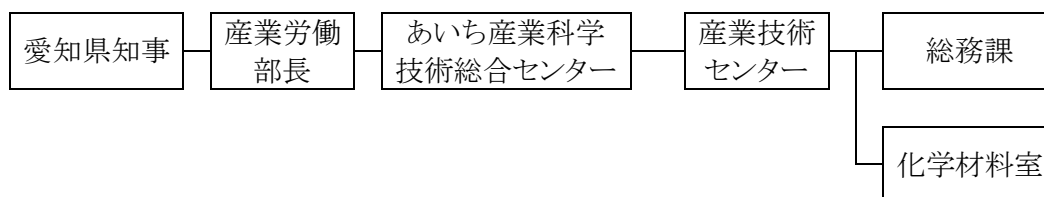
国立大学法人 豊橋技術科学大学



国立大学法人 鹿児島大学



あいち産業科学技術総合センター 産業技術センター



(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

氏名	所属・役職	実施内容
小紫 正樹	総務企画部産学官連携 グループ長	4-1, 5
山崎 章	総務企画部産学官連携グループ 特別研究員	4-1, 5
浜田 ちひろ	総務企画部産学官連携グループ 主任研究員	4-1, 5

研究実施機関

株式会社高木化学研究所

氏名	所属・役職	実施内容
高木 紀彰	上席顧問 兼 片寄工場長	1-1,3-1,3-2,4-1
高木 優州	代表取締役社長	4-1
寺尾 雄太	片寄工場 工場長付き	3-1,3-2,4-1
松山 一夫	片寄工場技術開発課 主任研究員 工学博士 高分子学会フェロー	全て
永谷 裕介	片寄工場技術開発課 主任	全て
渡邊 大輔	片寄工場技術開発課 課員	全て

国立大学法人豊橋技術科学大学

氏名	所属・役職	実施内容
松本 明彦	環境・生命工学系 教授	1-1,2-1,2-2,3-1,3-2
伊藤 博光	環境・生命工学系 助教	1-1,2-1,2-2,3-1,3-2

国立大学法人鹿児島大学

氏名	所属・役職	実施内容
二井 晋	学術研究院理工学域工学系 化学生命・化学工学専攻 教授	1-1
水田 敬	同工学系 化学生命・化学工学専攻 助教	2-1,3-1,3-2

あいち産業科学技術総合センター 産業技術センター

氏名	所属・役職	実施内容
岡田 光了	化学材料室 主任	1-1,2-1,2-2,3-1,3-2
福田 徳生	化学材料室 主任研究員	1-1,2-1,2-2,3-1,3-2
松原 秀樹	環境材料室 室長 工学博士	1-1,2-1,2-2,3-1,3-2

アドバイザー

氏名	所属・役職	実施内容
竹市 力	国立大学法人 豊橋技術科学大学 環境・生命工学系名誉教授 高分子学会フェロー	材料関連
森本 雅之	学校法人 東海大学 工学部 電気電子工学科 非常勤講師 工学博士 電気学会フェロー	デバイス関連
高橋 俊	東海エレクトロニクス株式会社 マーケティング本部 S セグメント推進部 部長	販路開拓

### 1-3 成果概要

従来検討されているステータ及びリアクトル用の注型樹脂は、熱伝導性フィラーを熱硬化性樹脂に分散させただけのものであり、注型の際の粘度及び熱伝導性等の性能の面で限界がある。デバイスの小型化・高性能化が急激に進むなかで相応しいものがなく、画期的な注型樹脂が求められている。一方、熱硬化性樹脂を用いて二色成形した場合、界面でのバインダーとなるものが存在しないため、界面の熱抵抗が高く、強度的にも弱いものしか得られていない。

本研究開発の製造プロセス、並びに評価方法及び装置を、分散媒に熱硬化性樹脂を用いた場合を例に、図 1-3-1 に示す。

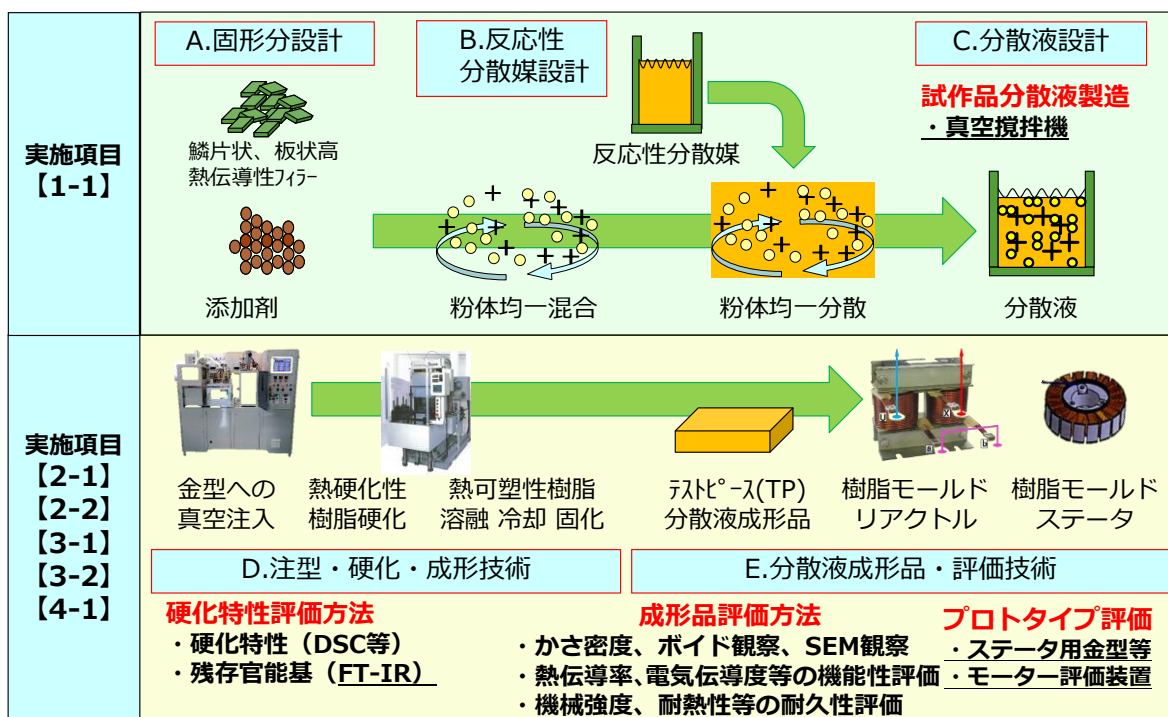


図 1-3-1: 熱硬化性樹脂分散液及び分散液成形品の製造プロセス並びに評価方法及び装置

(A) 高熱伝導性フィラー及び添加剤の混合物を、せん断力、摩擦力等を用い板状フィラーを均一混合する固形分設計、(B) 様々な熱硬化性樹脂を組成物とする反応性分散媒設計、(C) 固形分及び反応性分散媒を均一に分散する分散液設計を行って、最適な高熱伝導性複合材料分散液を開発する段階、(D) 該分散液を金型に注型、硬化及び成形加工、又は射出成形するときの硬化・成形加工技術を開発する段階、並びに(E) 得られた分散液成形品及びコイル部を樹脂モールドした部品と、それぞれの段階における評価設備及び方法とを示した。

本研究開発は、熱伝導性フィラーおよび添加剤を反応性分散媒に分散・混合し、流動性(粘度特性)、分離安定性、熱伝導性及び電気的特性(絶縁及び導電性)、耐衝撃性、耐熱性及び熱サイクル性に優れた高熱伝導性複合材料分散液を開発するものである。

本研究開発の特徴は、低粘度化、分離安定化、高熱伝導化等の分散液設計をし易くするための反応性(熱硬化性)分散媒、又は熱可塑性樹脂分散媒と、高熱伝導性フィラーに加え、バインダーとして作用する添加剤を使用していることにある。図 1-3-2 には、熱硬化性樹脂分散液を例にした熱伝導性パス形成過程について示す。図中、図(C)は分散液の状態、図(D)は反応性分散媒が硬化し熱伝導性パス前駆体が形成された状態、図(E)は熱可塑性樹脂が溶融・冷却固化して熱伝導性パスを形成したときの状態を示した。固形分に添加剤を加えることによって、流動時にフィラーと樹脂とが同じ状態で移動し形状を保ち、良好な分散安定性を示す。次いで加熱硬化によって分散媒硬化相が形成されることにより(該前駆体形成)、その後、加熱により溶融した添加剤はフィラーの周辺を覆った状態を保ち、さらに冷却固化によってフィラーを固定化し熱伝導性パスを形成する。この際に、フィラー、熱硬化性樹脂及び添加剤のモルフォロジーは、それぞれの成分の表面自由エネルギーの差、すなわち、界面での付着仕事や、それぞれの成分の移動のし易さ、結晶化等の条件、によって左右され、図 1-3-3 のようなフィラーリッチ相及びフィラー非リッチ相が並存した状態で形成され、フィラーリッチ相による熱伝導性パス形成による高い熱伝導率を有すると共に、それぞれの成分を均一に分散させることによって、高い機械的特性を発現することができた。

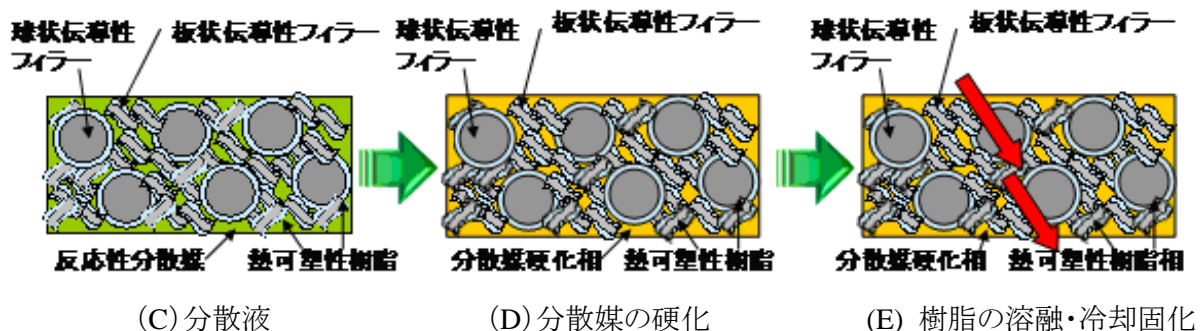


図 1-3-2: 硬化及び溶融・冷却固化における熱伝導性パス形成過程



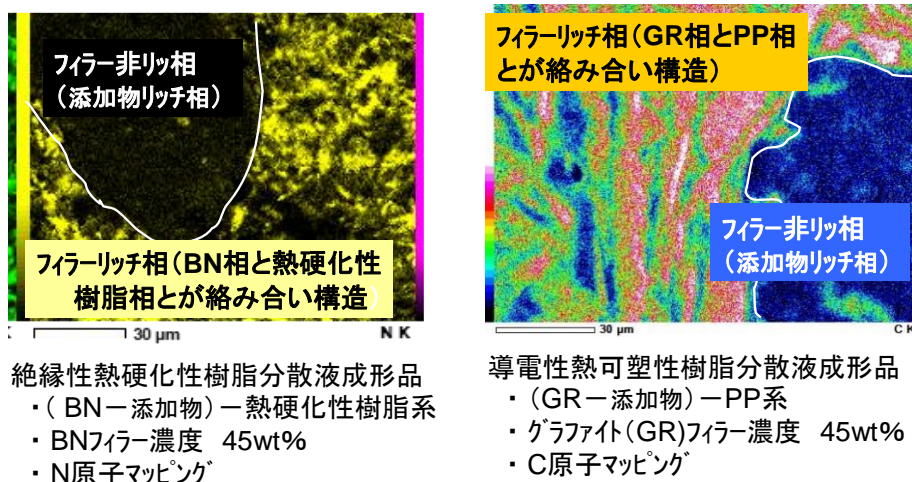


図 1-3-3: 分散液成形品の SEM・EDX 分析におけるモルフォロジー解析

また、セラミックスを用いる絶縁性材料分散液や、グラファイトを用いる導電性材料分散液のような異種材料を使用して、二色成形した際には、添加剤がバインダーとなり、界面での熱抵抗の低減及び強度の維持を可能にし、デバイス全体としての放熱性を格段に高めることができる。

本研究開発では、ファイラー濃度を変えることによって、真空注型や、加圧注型、或いは射出成形できる低粘度、中粘度及び高粘度分散液の粘度の異なるグレードや、熱伝導率が 1~10 W/mK 以上の低熱伝導率、中熱伝導率及び高熱伝導率の3グレード、組成を変えることによって、絶縁性又は導電性の熱硬化性樹脂分散液や、射出成形できる熱可塑性樹脂分散液グレードを揃えることができた。

また、分散媒組成や、ファイラーの種類及び濃度と、熱伝導率及び電気特性の機能性、並びに耐衝撃性、耐熱性及び熱サイクル性の耐久性との関係を体系化し、顧客の要望に速やかに対応できる体制を構築できた。更に、コンバーター用リアクトル及びモーター用ステータの樹脂モールドプロトタイプを作製し、樹脂モールドしていない従来品と比較して、放熱面で優れていることを立証し、高効率化や、小型化に寄与できることを示し、ソリューションビジネスを目指した販路開拓を進めることができた。

#### 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

## 第2章 本論

### 2-1 新規高熱伝導性複合材料分散液に対する課題への対応

#### 2-1-1 分散安定性、流動性等に優れた高熱伝導性複合材料分散液の研究開発

##### (1) 高熱伝導性複合材料分散液の製品設計及び評価方法

本研究開発の高熱伝導性複合材料分散液の製品設計及び評価方法は、A)高熱伝導性フィラー及び添加剤の混合物を、せん断力、摩擦力等を用い板状フィラーを均一混合する固形分設計、(B)様々な熱硬化性樹脂を組成物とする反応性分散媒設計、(C)固形分及び反応性分散媒を均一に分散する分散液設計を行って、最適な高熱伝導性複合材料分散液を開発する段階、(D)該分散液を金型に注型、硬化及び成形加工、又は射出成形するときの硬化・成形加工技術を開発する段階、並びに(E)得られた分散液成形品及びコイル部を樹脂モールドした部品と、それぞれの段階における評価設備及び方法である。分散媒に熱可塑性樹脂を用いた場合を、図 2-1-1:熱可塑性樹脂分散液及び該分散液成形品の製造プロセス並びに評価方法及び装置に示す。このように、本研究開発は、固形分設計、分散媒設計及び分散液設計によって顧客が求める様々な要求特性に応じた分散液製品を製造し提供することが目的である。

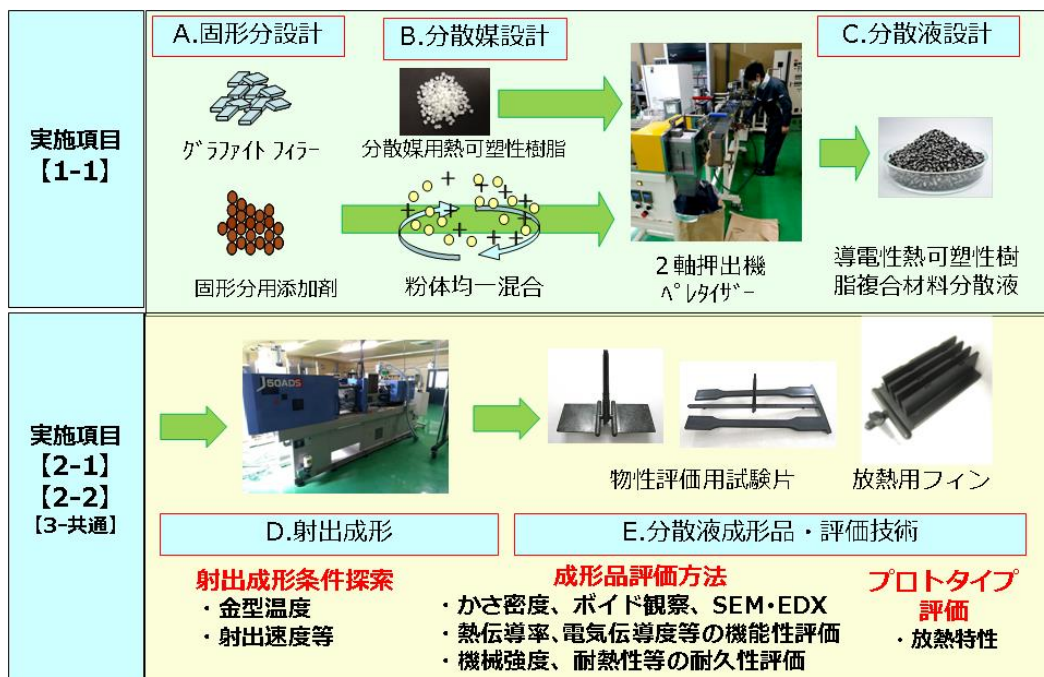


図 2-1-1:熱可塑性樹脂分散液及び分散液成形品の製造プロセス並びに評価方法及び装置

##### (2) 絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液の研究開発

熱伝導性フィラーとして、六方晶窒化ホウ素 (BN)を用い、反応性分散媒については、ベンゾオキサジン(A)ーフェノール系エポキシ化合物(B)及び／又はシリコン系エポキシ化合物(S)ー反応性

希釈剤(D)の3元系又は4元系分散媒、並びに触媒を用い、固形分に 20 wt%の添加剤A又は添加剤Bを含む、BN フィラー濃度 30 及び 40 wt% (低粘度タイプ)、45 及び 50 wt% (中粘度タイプ)並びに 60 wt% (高粘度タイプ)の分散液を作製し諸物性を測定した。反応分散媒の組成を表 2-1-1、分散液の諸物性を表 2-1-2 に示す。また、分散媒 D を用いフィラー濃度 45 wt% における分散液の諸物性を表 2-1-3 に示す。

表 2-1-1:反応性分散媒の構成成分、粘度及び硬化発熱量

構成成分	分散媒A	分散媒B	分散媒C	分散媒D	分散媒E	分散媒F
ベンゾオキサジン (wt%)	22	11	5	5	5	5
フェノール系エポキシ樹脂 (wt%)	56	67	73	55	55	55
エポキシ系シリコン樹脂 (wt%)	0	0	0	0	10	20
反応性希釈剤 (wt%)	22	22	22	40	30	20

表 2-1-2:分散液の諸物性

分散液	BDF30	BDF40	BDF50	BDF60	BFF40	BFF60
分散媒	D	D	D	D	F	F
BNフィラー濃度 (wt%)	30	40	50	60	40	60
分散液密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>注1)</sup>	1.27	1.52	-	-	1.37	-
回転粘度計粘度 (mP・s) <sup>注2)</sup>	560	17,500	-	-	12,200	-
フローテスタ流出速度 (ml/s) <sup>注3)</sup>	5.21	4.96	4.83	3.89	4.91	4.93
フローテスタ粘度 (mP・s) <sup>注3)</sup>	1.39×10 <sup>5</sup>	1.45×10 <sup>5</sup>	1.50×10 <sup>5</sup>	1.86×10 <sup>5</sup>	1.47×10 <sup>5</sup>	1.46×10 <sup>5</sup>
硬化発熱ピーク温度 (°C) <sup>注4)</sup>	154, 225	152, -	157, -	162, -	165, -	183, 219
硬化発熱量 (J/g分散媒) <sup>注4)</sup>	320	340	330	380	200	260

注1) : 100 °Cで脱泡分散させ、室温まで冷却して測定した。注2) : ブロックフィールド社製回転粘度計を用いて、100 °Cにおいて測定した粘度。注3) : 細管式レオメーター (島津製作所製フローテスタを用いて、口径 1 mm、長さ 1 mm のノズルを用いて、荷重 300 kg および 100 °Cにおいて測定した。注4) : DSCを用いて、窒素雰囲気およびイミダゾール触媒存在下、加熱速度 10°C/min において測定した。硬化発熱量については、PPS樹脂の融点分を補正した。

表 2-1-3:フィラー濃度 45wt% における分散液の諸物性

分散液	BAF45	BBF45	BCF45	BDF45
分散媒	A	B	C	D
フローテスタ流出速度 (ml/s) <sup>注1)</sup>	4.99	4.81	5.04	4.84
フローテスタ粘度 (mPa・s) <sup>注1)</sup>	1.45×10 <sup>5</sup>	1.50×10 <sup>5</sup>	1.43×10 <sup>5</sup>	1.49×10 <sup>5</sup>
硬化発熱ピーク温度 (°C) <sup>注2)</sup>	152, 275	143, -	139, 240	137, -
硬化発熱量 (J/g分散媒) <sup>注2)</sup>	260	270	340	360

注1 および2) : 表2-1-2の注3および4) と同じ。

固形分 (BN-添加剤A) 及び反応性分散媒からなる分散液の粘度については、フィラー濃度 30 及び 40 wt% では、回転粘度計を用いて測定でき、100 °Cにおいて、フィラー濃度 30 wt% 品は 560 mPa・s、40 wt% 品は 12,200~17,500 mPa・s であった。フィラー濃度が 40 wt%を超えると回転子が空回りし測定できなかつたので、フローテスターを用いて測定した。100°C、荷重 300 kg におけるフ

ローテスター粘度は、30 wt% 品が  $1.39 \times 10^5$  mPa・s、40 wt% 品は  $1.45 \times 10^5 \sim 1.47 \times 10^5$  mPa・s、45 wt% 品が  $1.43 \times 10^5 \sim 1.50 \times 10^5$  mPa・s、50 wt% 品が  $1.50 \times 10^5$  Pa・s、及び 60 wt% 品が  $1.47 \times 10^5$  mPa・s であった。フィラー濃度 30～40 wt% 品はポットイングによって金型に分散液を注入できるが、フィラー濃度 45～60 wt% 品は金型には加圧注入によって装填する必要がある。固形分に添加剤Aの代わりに添加剤Bを用いた場合も同様な結果が得られた。同表には、DSC による硬化発熱挙動も示した。エポキシ樹脂及びベンゾオキサジンに由来する2つの発熱ピークが認められた。

当該分散液については、分散媒組成及びフィラー濃度を変えることによって、固形分に添加剤A又は添加剤Bを含む低粘度タイプ、中粘度タイプ及び高粘度タイプ、並びに反応性希釈剤の一部を低粘度シリコン系エポキシ化合物に変えることによって耐衝撃性タイプ、ベンゾオキサジンの使用量を増すことによって高強度タイプの8グレードの品揃えができた。

### (3) 導電性熱硬化性樹脂複合材料分散液の研究開発

熱伝導性フィラーとして、グラファイト(GR)を用い、反応性分散媒については、ベンゾオキサジン(A)－フェノール系エポキシ化合物(B)－反応性希釈剤(D)の3元系分散媒、並びに触媒を用い、固形分に 20 wt% の PPS 樹脂を含む、GR フィラー濃度 40 wt% (低粘度タイプ)、50 wt% (中粘度タイプ)及び 60 wt% (高粘度タイプ)の分散液を作製し諸物性を測定した。その結果を表 2-1-4 に示す

表 2-1-4:分散液の諸物性

分散液	GDF40	GDF50	GDF60
分散媒	D	D	D
GRフィラー濃度 (wt%)	40	50	60
分散液密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>注1)</sup>	1.32	—	—
回転粘度計粘度 (mPa・s) <sup>注2)</sup>	9,000	—	—
フローテスト流出速度 (ml/s) <sup>注3)</sup>	5.01	4.62	4.12
フローテスト粘度 (mPa・s) <sup>注3)</sup>	$1.45 \times 10^5$	$1.56 \times 10^5$	$1.76 \times 10^5$
硬化発熱ピーク温度 (°C) <sup>注4)</sup>	158	159, 249	168
硬化発熱量 (J/g 分散媒) <sup>注4)</sup>	350	310	330

注1～4) : 表2-2と同じ。

分散液の粘度については、フィラー濃度 40 wt% については、回転粘度計を用いて測定でき、100 °Cにおいて、フィラー濃度 40 wt% 品は 9,000 mPa・s であった。フィラー濃度が 40 wt% を超えると回転子が空回りし測定できなかつたので、フローテスターを用いて測定した。100 °C、荷重 300 kg におけるフローテスター粘度は、40 wt% 品は  $5.01 \times 10^5$  mPa・s、50 wt% 品が  $4.62 \times 10^5$  mPa・s、及び 60 wt% 品が  $4.12 \times 10^5$  mPa・s であった。フィラー濃度 40 wt% 品はポットイングによって金型に分散液を注入できるが、フィラー濃度 50～60 wt% 品は金型には加圧注入によって装填する必要がある。

当該分散液については、フィラー濃度を変えることによって、低粘度タイプ、中粘度タイプ及び高

粘度タイプの3グレードの品揃えができた。

#### (4) 導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液の研究開発

グラファイト(GR)及び添加剤として添加剤A又は添加剤Bを用いて得られる固形状コンパウンド(グラファイト 80 wt% : 添加剤 20 wt%)に、分散媒としてナイロン樹脂又はPP樹脂からなる熱可塑性樹脂を用いて、GR フィラー濃度 40~64 wt% 導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液を作製した。

分散液の粘度の測定は、フローテスターを用いて、荷重 300 kg で行い、分散媒がPP樹脂の場合は 170℃、ナイロン樹脂の場合は 260 °Cで行った。(GR-ナイロン)-PP系においては、フィラー濃度フィラー濃度 40 wt% 品では  $1.47 \times 10^5$  mPa·s、50 wt% 品では  $1.61 \times 10^5$  mPa·s 及び 64 wt% 品では  $1.72 \times 10^5$  mPa·s であった。また、(GR-PPS)-ナイロン系においては、フィラー濃度 60 wt% 品の場合、 $1.85 \times 10^5$  mPa·s となった。射出成形できる導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液を、低粘度、中粘度及び高粘度の3グレードと、分散液の異なる2グレードを揃えることができた。

#### (5) 熱硬化性樹脂複合材料分散液の製造技術の確立及びの硬化・成形技術の研究開発

##### (i) 熱硬化性樹脂複合材料分散液の製造技術の確立

2-1-1の(2)及び(3)項における分散液の作製は、試作用の真空注入装置によって行った知見に基づいて、10倍スケールの攪拌混合機を設計し、試作評価した結果、少量スケートと同様な結果が得られ、熱硬化性樹脂分散液の試作品製造体制を構築できた。

##### (ii) 熱硬化性樹脂複合材料分散液の硬化・成形技術の研究開発

熱硬化性樹脂複合材料分散液の硬化・成形技術に関しては、反応性分散媒及び分散液の硬化発熱データに基づいて、キュラストメーターの試験条件を決め、加熱による反応性分散媒及び分散液の粘弾性(トルク)特性を求め、熱プレス機の硬化・成形条件を決定した。これらの結果を基に、既存の混合機、真空デシケータ及び手動の組み合わせ、又は真空注入装置を用いて、混合・脱泡及び金型への分散液の注型を行い、真空熱プレス機を用いて加熱成形を行った。

#### 2-2 新規高熱伝導性複合材料成形品に対する課題への対応

2-2-1 熱伝導性及び電気特性に優れる高熱伝導性複合材料の研究開発(機能性評価)

2-2-2 耐衝撃性、耐熱性及び熱サイクル性に優れた高熱伝導性複合材料の研究開発(耐久性評価)

##### (1) 絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発

上記2-1-1の(2)項において得られたBNフィラー濃度 30 及び 40 wt% (低粘度タイプ)、45 及び 50 wt% (中粘度タイプ)並びに 60 wt% (高粘度タイプ)の分散液を金型に装填して、真空プレス機によって熱硬化、次いで、更に加熱し成形して、成形品を得た。得られた成形品について、成形品密度及び体積収縮率や、機能性評価として、ホットディスク(HD)法熱伝導率、定常法(ST)法熱伝

導率、表面電気伝導度及び断面電気伝導度を、耐久性評価として 5 wt% 重量減少温度(耐熱性)、曲げ強度、曲げ弾性率及びアイゾット衝撃値を測定し、その結果を表 2-2-1 及び 2-2-2 に示した。

成形品密度は 1.40~1.69 g/cm<sup>3</sup>、HD 法熱伝導率は 3.7~18 W/mK、ST 法熱伝導率は 1.8~9.7 W/mK、と BN フィラー濃度と共に増加し、5 wt% 重量減少温度は 381~398 °C、曲げ弾性率は 4.1~8.6 GPa となり、BN フィラー濃度と共に増加し、電気伝導度は表面及び断面とも 10-14 (Ωcm)<sup>-1</sup> 以下の絶縁性を示し、曲げ強度は 54~34 MPa と、BN フィラー濃度と共に減少した。また、BN フィラー濃度 45 wt% において、体積収縮率は 1.12~0.67 %、曲げ強度は 28~35 MPa となり、分散媒組成におけるベンゾオキサジン濃度を増やすことによって増加した。また、比較のために添加剤を含まない絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品を作製し、熱伝導率を測定したところ、同一フィラー濃度において、フィラー濃度 30wt% を超えると、添加剤を含む効果が顕著に見られた。また、反応性希釈剤の一部をエポキシ系シリコン化合物に変えることによって、曲げ強度は 8.6 から 8.2 MPa と僅かに減少するが、アイゾット衝撃値は 1.3 から 2.3 kJ/m<sup>2</sup> と大幅に増加し耐衝撃性向上に繋がった。

表 2-2-1: 絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の諸物性

分散液成形品	絶縁性高熱伝導性材料					
	BDF30	BDF40	BDF50	BDF60	BFF40	BFF60
分散液						
フィラー濃度 (wt%)	30	40	50	60	40	60
成形品密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>注1)</sup>	1.40	1.48	1.65	1.69	1.46	1.66
HD法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注2)</sup>	3.7	5.7	13	18	4.8	12
ST法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注2)</sup>	1.8	2.6	6.9	9.7	2.0	6.9
表面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注2)</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>
断面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注2)</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>
5 wt%重量減少温度 (°C) <sup>注3)</sup>	381	385	397	398	348	368
曲げ強度 (MPa) <sup>注4)</sup>	54	52	35	34	38	35
曲げ弾性率 (GPa) <sup>注4)</sup>	4.1	5.4	7.7	8.6	4.6	8.2
アイゾット衝撃値 (kJ/m <sup>2</sup> ) <sup>注5)</sup>	-	-	-	1.3	-	2.3

注1) : 室温において体積および重量測定により求める。注2) : 引用文献1) 参照。注3) : 熱重量分析装置 (TGA) を用いて求めた。注4) : 幅10 mm×厚さ4 mm×長さ40 mmの試験片を用い、JIS K7171 (2018) に準拠して求めた。注5) : 幅80 mm×厚さ4 mm×長さ10 mmの試験片を用い、JIS K7110 (1999) に準拠して求めた。

表 2-2-2: フィラー濃度 45 wt% での絶縁性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の諸物性

分散液成形品	絶縁性高熱伝導性材料			
	BAF45	BBF45	BCF45	BDF45
分散液				
フィラー濃度 (wt%)	45	45	45	45
成形品密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>注1)</sup>	1.43	1.52	1.47	1.47
体積収縮率 (%) <sup>注2)</sup>	0.67	0.75	1.06	1.12
HD法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注3)</sup>	6.9	8.4	8.2	8.5
ST法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注3)</sup>	3.8	4.6	5.1	4.7
表面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注3)</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>
断面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注3)</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>	<1.0×10 <sup>-14</sup>
5%重量減少温度 (°C) <sup>注4)</sup>	383	389	366	390
曲げ強度 (MPa) <sup>注5)</sup>	35	34	32	28
曲げ弾性率 (GPa) <sup>注5)</sup>	5.1	5.5	5.4	5.1

注1) : 表2-2-1と同じ。注2) : 島津製作所製キュラストメーターを用いて硬化し、次いで成形し、得られた成形品から体積収縮率を求めた。注3~5) : 表2-2-1の注2~4)と同じ。

## (2) 導電性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発

上記2-1-1の(3)項において得られたグラファイト(GR)フィラー濃度 40(低粘度タイプ)、50(中粘度タイプ)及び 60 wt%(高粘度タイプ)の分散液を金型に装填して、真空プレス機によって加熱成形し、成形品を得た。得られた成形品について、成形品密度や、機能性評価として、ホットディスク(HD)法熱伝導率、定常法(ST)法熱伝導率、表面電気伝導度及び断面電気伝導度を、耐久性評価として 5 wt% 重量減少温度(耐熱性)、曲げ強度及び曲げ弾性率を測定し表 2-2-3 に示した。

表 2-2-3:導電性熱硬化性樹脂複合材料分散液成形品の諸物性

分散液成形品	導電性高熱伝導性材料		
	GDF40	GDF50	GDF60
分散液			
フィラー濃度 (wt%)	40	50	60
成形品密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>注1)</sup>	1.35	1.50	1.66
体積収縮率 (%) <sup>注2)</sup>	-	-	-
HD法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注3)</sup>	5.9	13	27
ST法熱伝導率 (W/(mK)) <sup>注3)</sup>	3.5	6.9	13.9
表面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注3)</sup>	3.3×10 <sup>-4</sup>	8.6×10 <sup>-1</sup>	9.2.E+00
断面電気伝導度 ((Ωcm) <sup>-1</sup> ) <sup>注3)</sup>	1.4×10 <sup>-4</sup>	2.9×10 <sup>-1</sup>	3.2.E+00
5%重量減少温度 (°C) <sup>注4)</sup>	364	376	391
曲げ強度 (MPa) <sup>注5)</sup>	35	19	33
曲げ弾性率 (GPa) <sup>注5)</sup>	3.7	4.2	8.5

注) 表2-2-1と同じ。

成形品密度は 1.35~1.66 g/cm<sup>3</sup>、HD 法熱伝導率は 5.9~27 W/mK、ST 法熱伝導率は 3.5~13.9 W/mK、と GR フィラー濃度と共に増加し、5 wt% 重量減少温度は 364~391 °C、曲げ弾性率は 3.7~8.5 GPa、電気伝導度は表面が 3.3×10<sup>-4</sup>~9.2(Ωcm)<sup>-1</sup> 及び断面が 1.4×10<sup>-4</sup>~3.2(Ωcm)<sup>-1</sup> の導電性を示し、GR フィラー濃度と共に増加し、曲げ強度は 19~35 MPa の範囲内でバラツキを示し、GR フィラー濃度との関係は見出されなかった。同一フィラー濃度では、絶縁性材料分散液成形品に比べ、導電性材料分散液成形品の成形品密度、5 wt% 重量減少温度及び曲げ弾性率は低い値、熱伝導率及び電気伝導度は高い値となった。

## (3) 導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液成形品の研究開発

### (i) 熱プレス成形品

上記2-1-1の(4)項において得られたグラファイト(GR)及び添加剤Bを用いた固形状コンパウンド(グラファイト 80 wt%:添加剤B 20 wt%)に、分散媒となる熱可塑性樹脂には PP 樹脂を加えて、金型に装填し、GR フィラー濃度 40~64 wt%、金型温度 180~240°Cの範囲内で変化させて熱プレス成形を行った。得られた(GR-添加剤B)-PP 系成形品の密度は 1.25~1.63、表面電気伝導度は 4.8×10<sup>-1</sup> ~46(Ωcm)<sup>-1</sup>、断面電気伝導度は 7.8×10<sup>-2</sup> ~8.6(Ωcm)<sup>-1</sup>、HD 法熱伝導率は 6.6~

28.3 W/mK、ST 法熱伝導率は 4.4~16.2 W/mK、曲げ強度は 0.4~6.5 GPa 及び 5 wt% 重量減少温度は 404~412 °Cとなり、フィラー濃度と共に増加した。一方、曲げ弾性率は 1.3~18.3 MPa の範囲内にありフィラー濃度との明確な関係は得られなかった。

#### (ii) 小型射出成形品

上記(i)項において得られたグラファイト(GR)及び添加剤Bを用いて得られる固形状コンパウンド(グラファイト 80 wt%:添加剤B 20 wt%)に、分散媒として PP 樹脂を加え、二軸押出機を用いて混練りし、GR フィラー濃度 30~50 wt% の導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液((GR-添加剤B)-熱可塑性樹脂)ペレットを作製した。得られたペレットを用いて、射出成形を行い、成形時における最適条件を求めた。

#### (iii) 中型射出成形品

新規購入した中型射出成形機(株)日本製鋼所 J50ADS:型締め力 50 t)を用い、前述のあいち産業科学技術総合センター所有の小型射出成形機を用いて得られた知見を基に、GR フィラー濃度 30~50 wt% の(GR-添加剤B)-PP 系樹脂ペレットを射出成形した。

その結果、成形品の密度は 1.20~1.45、表面電気伝導度は  $1.0 \times 10^{-14} \sim 1.8 \times 10^{-6} (\Omega \text{ cm})^{-1}$ 、断面電気伝導度は  $6.7 \times 10^{-9} \sim 2.2 \times 10^{-6} (\Omega \text{ cm})^{-1}$ 、HD 法熱伝導率 2.4~ 7.1W/mK、ST 法熱伝導率は 0.8~3.1W/mK、曲げ強度は 24.5~31.1MPa、曲げ弾性率は 1.8~3.8GPa 及び 5 wt% 重量減少温度は 415~425 °Cとなり、同センターの小型射出成形機の結果に近い値となった。

### 2-2-3 新規な放熱特性測定方法並びにモルフォロジー解析の研究開発

#### (1) 分散液成形品の熱伝導率及び熱輻射率の新規な測定方法の研究開発

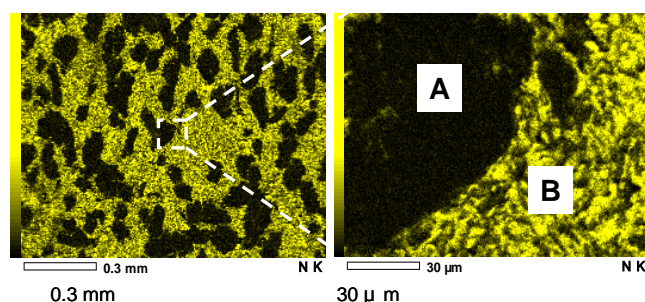
国立大学法人鹿児島大学が開発した熱伝導率の高い異方性材料の面方向及び深さ(断面)方向熱伝導率の同時測定法及び真空下での熱輻射率測定方法により、今まで HD 法(面方向)及び ST 法(断面方向)の熱伝導率をサーモグラフィーの温度分布測定のみでできるようになった。例えば、BN 及び酸化アルミニウム(AO)の混合フィラーを用い、フィラー及び PPS 樹脂の比率 80:20 wt% の固形分成形品の熱伝導率の測定において、BN フィラーの割合を 0~80 wt%に増やしていくと、HD 法熱伝導率は 2.5~20 W/mK 及び ST 法熱伝導率は 2.5~7.7 W/mK の範囲で増加するが、新規測定法では、面方向(HD 法に相当)が 1.3 ~11.5 W/mK 及び深さ方法が 0.7~8.2 W/mK となり、面方向は低めに、深さ方向は高めになったが、ほぼ近似した値となった。また、真空下での熱輻射率を測定したとき、真空度を増していくと、アルミヒートシンクの場合、熱抵抗が上昇し、発熱温度が測定限界温度に達し試験を中断したが、本開発技術に基づく GR-PPS 樹脂ヒートシンクの場合には、熱抵抗は一定レベルで留まり温度上昇も少なく定常状態まで測定可能であった。これらの新規測定法については、更に精査し、今後、JIS 標準化に向けた取組みも進める予定である。



## (2) 分散液成形品のモルフォロジー解析

### (i) SEM・EDX 分析による分散液成形品のモルフォロジー解析及び表面自由エネルギーによる相関

分散液成形品の SEM・EDX 分析及び表面自由エネルギーの測定によって、SEM・EDX 分析で得られた成形品のモルフォロジーと、表面自由エネルギーから求められる接着仕事との相関を行った。SEM-EDX 分析はフィラー濃度 30～60 wt%の(BN-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品、(BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液成形品、(GR-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品及び(GR-添加剤B)-PP 樹脂分散液成形品について行った。固形分に添加剤Aを含む場合には、フィラー及び熱硬化性樹脂からなるフィラーリッチ相に添加剤A相の微細なフィラー非リッチ相が均一に分散し、固形分に添加剤Bを含む場合には、比較的粒径が添加剤B相の比較的粒径が大きくなった非リッチ相が均一に分散し、フィラー濃度の増加と共にフィラーリッチ相が増加し、より熱伝導性パスが形成し易くなっていることがわかった。



A: 添加剤A相 (フィラー非リッチ相)  
B: フィラーと熱硬化性樹脂相の絡み合い構造 (フィラーリッチ相) .

図 2-2-1: フィラー濃度 50 wt%における(BN-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品の窒素原子マッピング

一方、分散液構成成分の固体表面に水又はジヨードメタンのような極性の異なる液滴を滴下して、液滴の接触角を測定することによって、分散液構成成分の表面自由エネルギーを分散力と極性力の寄与にそれぞれ分割することに成功し、分散液構成成分の表面自由エネルギーがそれぞれの成分の分散性や、凝集性に大きな影響を及ぼし、モルフォロジー形成、すなわち熱伝導性パス形成に大きく関わっていることがわかった。このことにより、材料設計の指針として役立つことができるようになった。

### (ii) 分散液成形品の3D X線顕微鏡によるモルフォロジー解析

フィラー濃度 40 wt%の BN-熱硬化性樹脂分散液成形品、(BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液成形品、(BN-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品、(GR-添加剤B)-PP 分散液射出成形品及び(GR-添加剤A)-ナイロン分散液射出成形品、並びにフィラー濃度 50 wt% の(GR-添加剤B) -PP 分

散液プレス成形品及び(GR-添加剤A)-ナイロン分散液プレス成形品の3D X線顕微鏡観と、裏づけのためのSEM・EDX分析を行った。その結果、3D X線顕微鏡観察からはフィラーと分散媒相とが絡み合い構造をとっているフィラーリッチ相の海に、フィラー非リッチ相が島として均一に分散しているような構造が立体的連続的に形成されているようなモルフォロジーが観察された。このことを確認するために、同試料のSEM・EDX分析を行ったところ、上記(i)項と類似した結果が得られ、3D X線顕微鏡観察の結果を支持するものとなった。図2-2-2はフィラー濃度40 wt%の(BN-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品の3D X線顕微鏡写真の一例を示す。

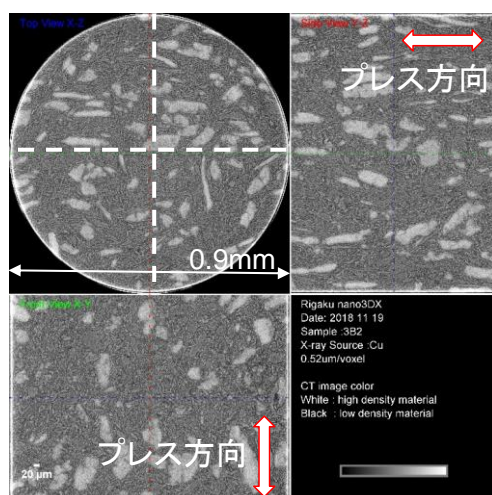


図 2-2-2: (BN-添加剤A)-熱硬化性樹脂分散液成形品の3D X線顕微鏡写真

円形内の図は試料上面のプレス方向に垂直な面、右上及び右下の図は、それぞれ、プレス方向に垂直な面に輪切りスキャンして得られる中央軸における連続面(側面図)である。なお、射出成形品とプレス成形品の差は明確に現れ、射出成形品の方が、フィラー非リッチ相がより微細な島として均一に分散していることがわかった。

## 2-3 成形加工技術に対する課題への対応

### 2-3-1 リアクトル用モールド樹脂成形加工技術の確立

上記(1-1)項記載の絶縁性及び導電性熱硬化性樹脂分散液、又は導電性熱可塑性樹脂分散液の中から、上記(2)項記載の機能性及び耐久性評価結果並びに下記(3)項記載の二色成形結果に基づいて、樹脂モールドリアクトルの外装樹脂及び内装樹脂を選択し、樹脂モールドリアクトルのプロトタイプを作製し、下記(4)(i)項において性能評価を行い、その結果を成形加工技術にフィードバックすることによって改善しながら成形加工技術の確立を行った。その結果、導電/絶縁材料二色成形によって、強度及び性能の優れた樹脂モールドリアクトルを作製することができた。

具体的には、上記導電性熱可塑性樹脂分散液を、熱プレス機を用いて、100mm角、厚さ2mmの

プレートを作製した。その後、樹脂モールドするためにリアクトルサイズにプレートを切り分け、接着剤で張り合わせて樹脂のケースを作製した。ケースとリアクトルコイルとの絶縁を確実に保つために、BN フィラー濃度 60wt% の (BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液 20 g を箱の内側に約 2 mm の厚さで積層し、その後、自動車搭載レベルのリアクトル(東京精電(株)製 TSL2T-15A-1mH)を設置し、その中に BN フィラー濃度 30 wt% の上記絶縁性熱硬化性樹脂分散液をポッティング注入した。分散液の注入工程は、3 回に分けて行い、全注入量は約 180 g であり、1 回の注入量を 60 g とし、1 回注入するごとに真空注入器で加熱、真空を行い、リアクトル内部に気泡が入らないようにした。注入が完了したのち、真空加熱プレス機を用いて、リアクトルに注入した絶縁性熱硬化性分散液の硬化を、加熱温度は 240 °C、3 時間にて実施し、導電/絶縁材料で二色成形した樹脂モールドリアクトルプロトタイプを作製した。

### 2-3-2 ステータ用モールド樹脂成形加工技術の確立

外装樹脂に (GR-添加剤A)-ナイロン樹脂分散液、内装樹脂に (BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液を用い、フィラー濃度を 30、40 及び 50 wt% の樹脂モールドステータのプロトタイプを作製し、外装樹脂に切削加工によりフィン構造を付与したのも揃えた。下記(4-1)項での性能評価によって、樹脂モールド無しの場合と比較して発熱が抑えられることが分かった。金型にフィラー濃度 64 wt% の (GR-添加剤A) ナイロン樹脂分散液を金型内に装填し熱プレス成形することで、厚さ 2 mm の円盤上成形品を作製した。次いで、フィラー濃度 30 wt% の (BN-添加剤B) 熱硬化性樹脂分散液を、真空注入機を用いて、コイル部に注入し、その上に、(GR-添加剤A) ナイロン樹脂分散液で作製した前記円盤状成形品を置く。このようにして、硬化・成形前の樹脂モールドステータプロトタイプを作製し、これを金型に入れた状態で熱プレス機を用いて温度 250°C、3 時間にて硬化・成形した。その後、下記(4)(ii)項のモーター性能評価装置を用い、モーター特性及び放熱特性を評価した。

### 2-3-3 二色成形・加工技術及び射出成形技術の確立

#### (i) 二色成形加工技術の確立

GR フィラー濃度 60 wt% の (GR-添加剤A)-ナイロン樹脂分散液(導電性)の熱プレス成形品 (HD 法熱伝導率 24 W/mK、ST 法熱伝導率 14 W/mK、表面電気伝導度  $25(\Omega\text{cm})^{-1}$ 、断面電気伝導度  $7.5(\Omega\text{cm})^{-1}$ 、曲げ強度 18 MPa 及び曲げ弾性率 5.4 GPa) を作製し、その上に、同じ体積になるように、BN フィラー濃度 50 wt% の (BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液(絶縁性:成形品の HD 法熱伝導率 13 W/mK、ST 法熱伝導率 6.6 W/mK、表面及び断面電気伝導度  $10^{-14}(\Omega\text{cm})^{-1}$  以下、並びに、曲げ強度 34 MPa 及び曲げ弾性率 7.3 GPa) を成形して、厚み約 100mm の二色成形品を得た。

得られた二色成形品の HD 法熱伝導率及び表面電気伝導度は、絶縁材料側では 12 W/mK 及

び  $10^{-14} (\Omega \text{ cm})^{-1}$  以下であり、導電材料側では  $23 \text{ W/mK}$  及び  $7.8 (\Omega \text{ cm})^{-1}$  であり、ST 法熱伝導率及び断面電気伝導度は  $10 \text{ W/mK}$  及び  $10^{-14} (\Omega \text{ cm})^{-1}$  以下、また曲げ強度及び曲げ弾性率は  $32 \text{ MPa}$  及び  $7.0 \text{ GPa}$  となり、それぞれの成形品の値を反映し、界面での損失のないものとなった。

上記絶縁材料・導電材料の二色成形品の SEM・EDX 分析結果を図 2-3-1 に示す。

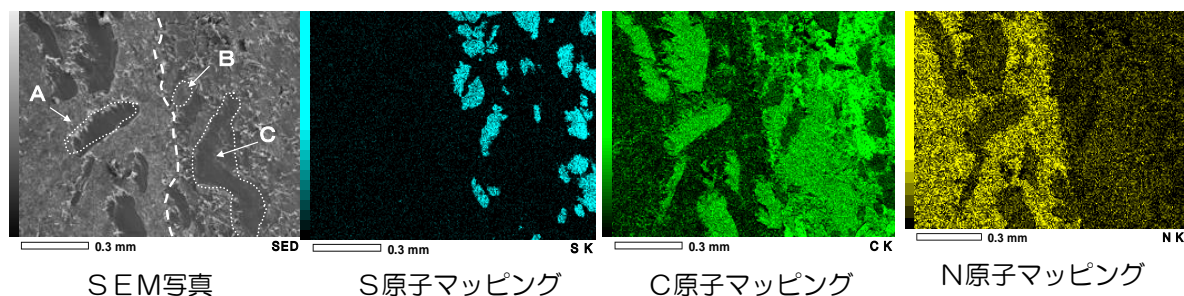


図 2-3-1: 絶縁材料・導電材料の二色成形品の SEM・EDX 分析結果

SEM 写真では、白点線で示した絶縁材料と導電材料の界面部分と、塊 A、B 及び C に見られる特徴的な海島構造の島部分が見られた。S 原子マッピングでは、塊 B に相当する顕著な島部分が見られ、これは添加剤 A に由来するものと思われる。C 原子マッピングでは、塊 A 及び C に相当するシグナルが見られ、絶縁材料の塊 A は添加剤 B に由来する島部分と思われる。導電材料の塊 C はそれよりもシグナルが強く、添加剤 B に GR フィラーが混じっているように思われ、C 原子マッピングが全体に広がって連続相を形成している。N 原子マッピングでは、絶縁材料については、BN フィラーに由来するシグナルが強く現れ、BN フィラーと反応性分散媒とが絡み合っって連続相を形成しているものと思われる。導電材料については、添加剤 A の島部分 (塊 B) を除く部分に、弱いシグナルとして広がっており、ナイロン樹脂と GR フィラーとが絡み合っって連続相を形成しているものと思われる。このように、SEM・EDX 分析では、絶縁材料においては、添加剤 B 部分が、導電材料では添加剤 A 部分がフィラー非リッチ相を形成し、また前者では BN フィラー及と反応性分散媒とがマイクロ分散しており、後者ではナイロン樹脂と GR フィラーとが絡み合い混合したフィラーリッチ相として連続相を形成し、かつ添加剤が界面におけるバインダーとしての役割を果たしながら両者が密に接触し、高い熱伝導率を発現しているものと思われる。

## (ii) 射出成形加工技術の確立

中型射出成形機 (株) 日本製鋼所 J50ADS: 型締め力  $50 \text{ t}$ ) を新規導入し、上記小型知見を基に、シリンダー温度 (成形温度)、射出速度、射出圧力及び金型温度を変化させて、導電性熱可塑性樹脂複合材料分散液を射出成形し、射出成形条件の探索を実施した。得られた成形品の物性を上記 2-2-(1・2) の (3) (iii) 項に示した。

あいち産業科学技術総合センター所有の射出成形における流動解析ソフトを用いて、ヒートシン

クの形状及びランナーのパターンを変えて、樹脂の流れをシミュレーションしながら条件探索を行い、変形及び収縮ひずみの解析を行った。その結果、反りや、ヒケの発生が少なくなるような条件設定ができ、実際の射出成形に応用できた。

## 2-4 環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化課題への対応

### 2-4-1 環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化の研究開発

#### (1) 樹脂モールドリアクトルプロトタイプを用いるリアクトルの評価

上記(3-1)項で作製した樹脂モールドリアクトルプロトタイプの評価をアドバイザーの指導を得ながら、図2-4-1に示す評価装置を組み立てた。リアクトルを作動させるための回路は、100V電源、ボルトスライダ、リアクトルからなる直列回路を組み、リアクトルの発熱状態を熱電対及びサーモグラフィを用いて観察した。図2-4-2には、樹脂モールド前後のステータの作動条件、各部位の温度測定の様子及びサーモグラフィでの発熱状況を示す。印可電圧はボルトスライダを用いて5Vに設定し、流れる電流値10Aはパワーメーターを用いて測定した。測定結果を図2-4-3に示す。図2-4-3より、樹脂モールドリアクトルは樹脂モールドしないリアクトルに比べ、コイル付近温度が約14度低下することが分かり、樹脂モールド化することによってリアクトルの小型化できることがわかった。

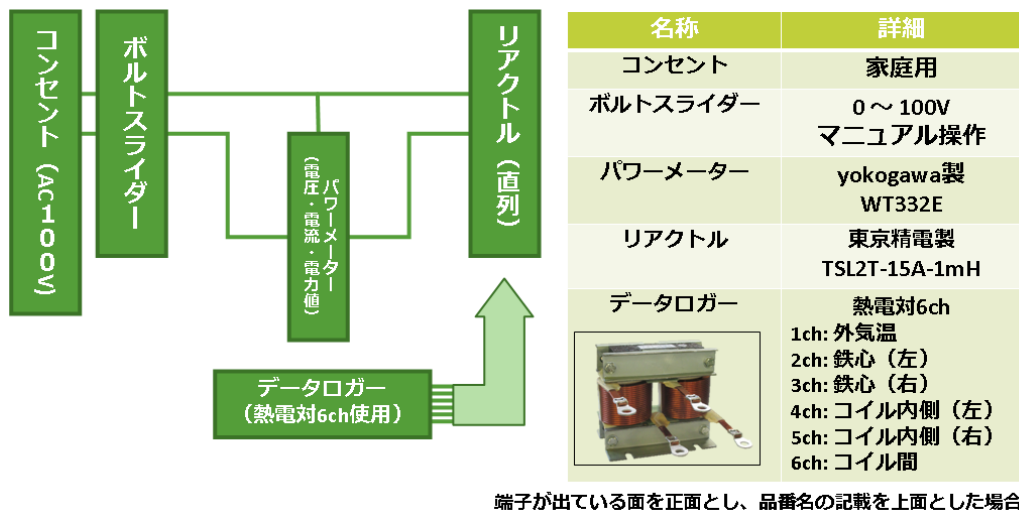


図 2-4-1:リアクトル評価用回路及び熱電対設置部位

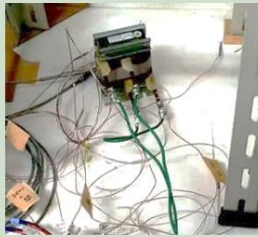
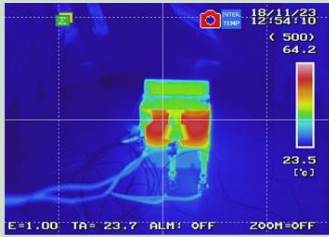

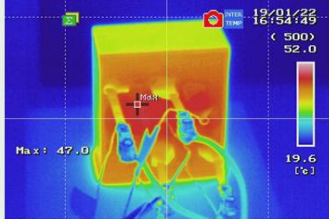
条件	熱電対による温度測定	サーモグラフィーカメラによる測定
<b>樹脂モールド前</b> 高周波リアクトル 東京精電社製 TSL2T-15A-1mH 印可電圧：5V 測定電流：10A 測定時間：3時間 直列回路		
<b>樹脂モールド後</b> 内装樹脂 30wt%分散液 (BN-Nyl)-TMS樹脂 外装樹脂 50wt%圧縮成形 (Gr-Nyl)-PP樹脂		

図 2-4-2: 樹脂モールド前後のリアクトル作動条件、各部位の温度測定の様子及びサーモグラフィーでの発熱状況

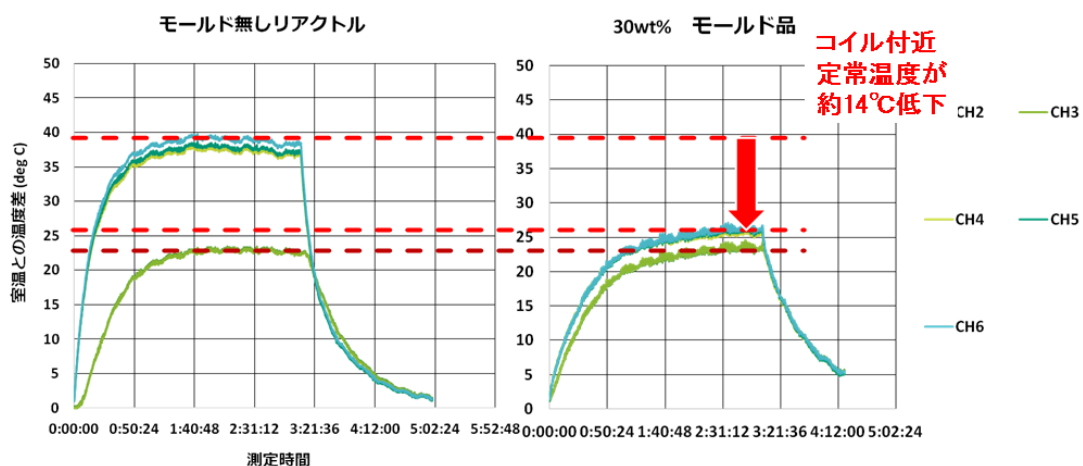
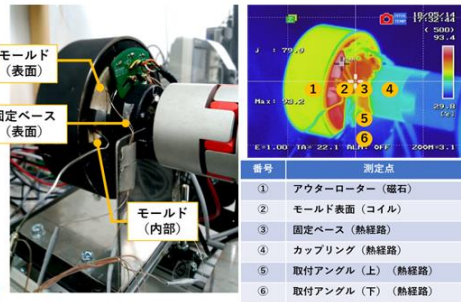
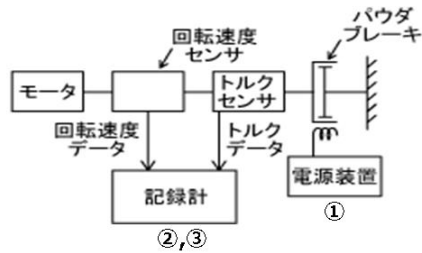


図 2-4-3: 樹脂モールドの有無によるコイル付近の温度上昇の変化

## (2) 樹脂モールドステータプロトタイプを用いるモーターの評価

図2-4-4の負荷装置を用いたモーター性能評価装置を用いて、上記(3-2)項で作製した樹脂モールドステータ(モーター能力:定格出力 30 W、最大出力 3 kW、アウターローター型)の評価をアドバイザーの指導を得ながら実施した。モーターへの負荷にはパウダブレーキを用い、トルクはトルクメーターで測定、ステータコイルなどの温度測定には熱電対及びサーモグラフィカメラを用いた。印可する電流は定電流電源を用い、モーター稼働時に負荷される電流、電圧はパワーメーターを用いて測定し、得られた測定値からモーター性能を把握した。



- モーター効率  $\eta$  [%] = 出力 / 入力 \times 100**  
 ①入力電力[W] = 電圧 [V] \times 電流 [A]  
 ②回転速度[N] = 回転速度 [rpm]  
 ③トルク[T] = 定格負荷、拘束負荷[Nm]  
 ④出力[P] =  $1.027 \times N \times T \times 10^{-5}$

熱電対による測定

サーモグラフィーカメラによる測定

図 2-4-4: モーター性能評価装置、温度測定部位及びサーモグラフィーでの温度分布

樹脂モールド有無及びBNフィラー濃度を变化させた場合における、入力電力に対するモーターコイル部の温度上昇(モーター作動してから平衡状態に達したとき)の变化を、回転数一定、出力一定及びトルク一定の 3 つの条件で測定した結果を、それぞれ図2-4-5、2-4-6及び2-4-7に示した。いずれにおいても、樹脂モールドしないものより、コイル温度が低下することが分かった。今回の比較では BN フィラー濃度は 30、40 及び 50 wt% に変えて測定したが、フィラー濃度による温度上昇の变化には、明確な差がみられなかった。モーターの性能評価を行う場合には、モーターの軸ずれないように細心の注意が必要であることが分かった。一方、モーター作動初期におけるコイル部付近の温度上昇を図2-4-8に示すが、温度上昇に及ぼす樹脂モールドの効果には著しいものがあり、モーターの ON/OFF による繰り返し運転の際の効果が期待でき、樹脂モールドによるモーターの小型化が期待できる。

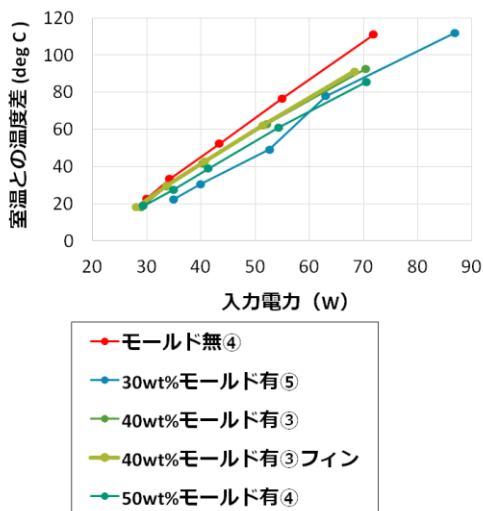


図 2-4-5: 出力一定における入力電力に対するコイル部の温度上昇の変化

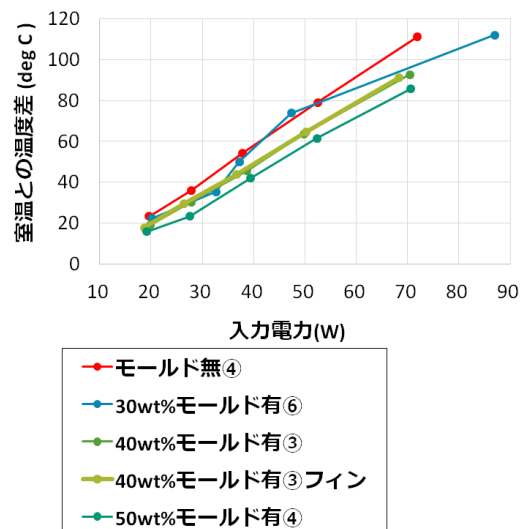


図 2-4-6: 回転数一定における入力電力に対するコイル部の温度上昇の変化

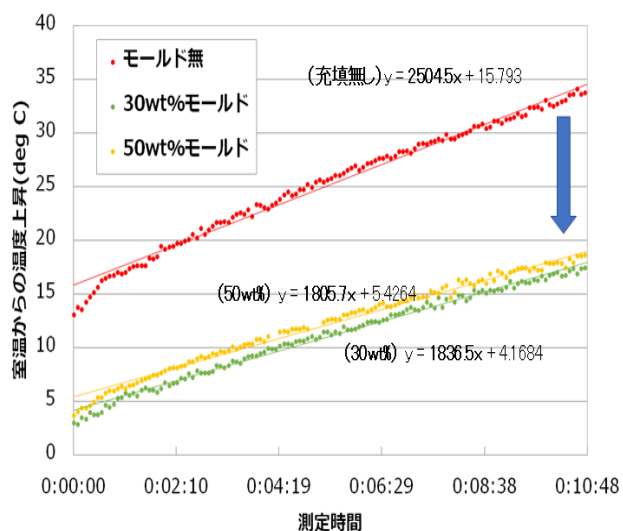
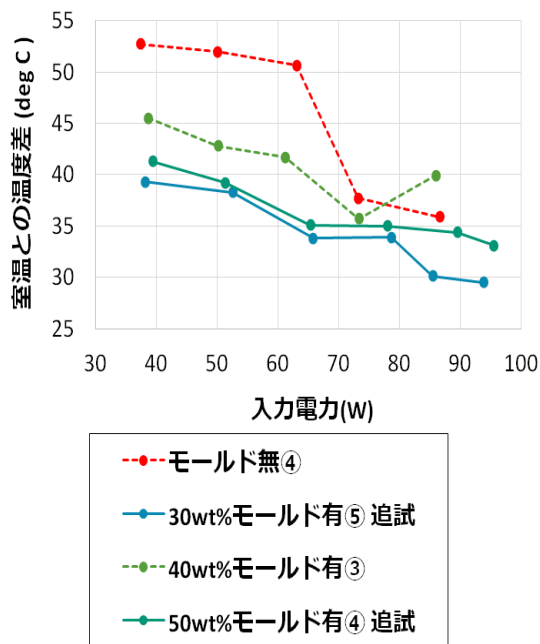


図 2-4-7:トルク一定における入力電力に対するコイル部の温度上昇の変化

図 2-4-8:モーターの初期におけるコイル部の温度上昇の変化

## 2-4-2 市場動向の把握および販路開拓

上記(1-1)項により、表2-4-1に示すような各種分散液の製品ラインアップができ、上記(2)項及び(3)項に示すように各分散液の特性値を求めることができた。上記(3)項並びに(4)項の(i)及び(ii)項に記載した具体的な使用方法を示すことができた。これら分散液製品のPR及びサンプルワークを通して、各分散液製品の可能な用途を表2-4-2にまとめて示す。

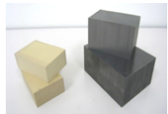
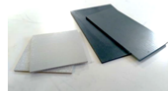


表 2-4-1:分散液製品のラインアップ及び特性値

電気特性	絶縁性				導電性								粘度		
	BN-添加剤A TMS (注入/加圧)		BN-添加剤B TMS (注入/加圧)		Gr-添加剤A TMS (注入/加圧)		Gr-添加剤B PP (プレス成形)		Gr-添加剤A ナイロン (プレス成形)		Gr-添加剤A ナイロン (50t射出成形)				
熱伝導率 測定方法	HD※法	定常法	HD※法	定常法	HD法	定常法	HD法	定常法	HD※法	定常法	HD※法	定常法	HD※法	定常法	
wt%	W/mK		W/mK		W/mK		W/mK		W/mK		W/mK		---		
30	4	2	1	2	-	-	-	-	5	2	-	-	-	-	低
40	5	3	5	3	6	4	7	4	8	4	7	2	-	-	中
45	8	5	7	4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	中
50	12	7	10	5	13	7	11	6	14	7	8	3	-	-	中
60	15	9	13	8	27	14	-	-	26	12	12	5	-	-	高
64	-	-	-	-	-	-	28	16	-	-	-	-	-	-	高

※HD法:ホットディスク法;BN:窒化ホウ素;Gr:グラファイト;PP:ポリプロピレン;TMS:熱硬化性樹脂



表 2-4-2: 熱伝導率及び電気特性ごとにまとめた各種製品の用途

名称	タイプ	熱伝導率 (W/mK)	用途	形態
粉体材料成形品 (厚みのある) 超高熱伝導性材料	絶縁	~40	筐体 熱伝導性基板 次世代自動車向け電池用部材	
	導電	~60		
粉体材料塗料液 (薄物・接着) 超高熱伝導性材料	絶縁	~40	TIM (熱伝達材料) 輻射コーティング 塗料液	
	導電	~60		
熱可塑性樹脂成形品 (射出・量産) 高熱伝導性材料	導電	~20	導電性射出成形品、 ノイズシールド筐体 ヒートシンク	
熱硬化性樹脂成形品 (封止・注型) 高熱伝導性硬化性樹脂	絶縁	~5	半導体やMOSFETの 熱拡散用封止材	

更に、中部経済産業局のハンズオン支援事業に採択され、販路開拓のための指導を受けて、試作品ビジネスを構築するために、図2-4-9のようなPR資料を作成し、販路開拓を進めた。

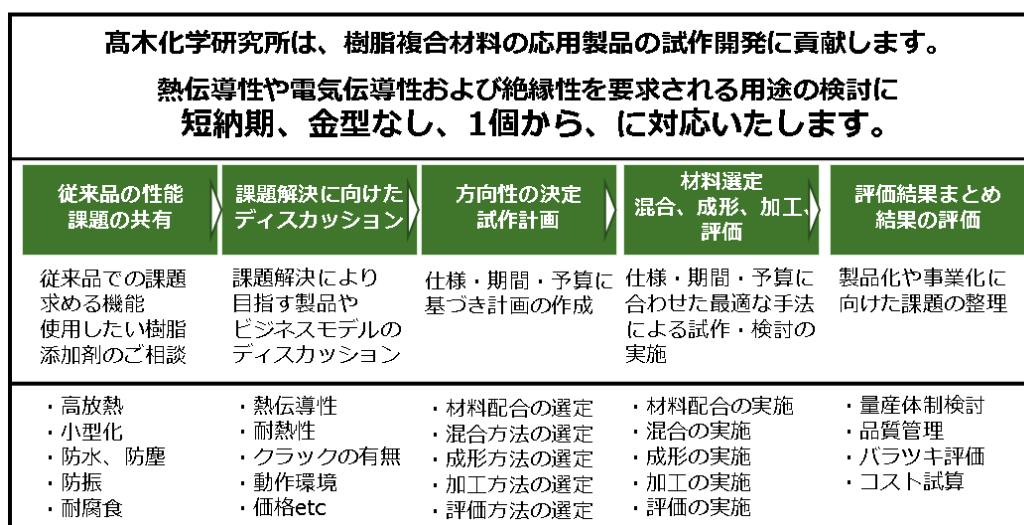


図 2-4-9: 販路開拓のための PR 資料の例

これらの販路開拓活動及び市場動向の把握によって、数件の試作依頼を受け対応している。

## 第3章 全体総括

### 3-1 複数年の研究開発成果

新規高熱伝導性複合材料分散液の研究開発初年度は、分散液の試作、物性評価及び硬化・成形、分散液成形品の物性評価、分散液を応用するデバイスの試作、デバイスの評価方法など、研究環境の整備及び基盤技術の整備を行い、2年度には基盤技術の確立及び応用技術の整備、最終年度には基盤技術の体系化、応用技術の確立及び販路開拓を主に実施した。以下に研究課題ごとに複数年の研究開発成果について述べる。

#### 3-1-1 新規高熱伝導性複合材料分散液に対する課題への対応

低粘度、中粘度及び高粘度の粘性が異なり、かつ絶縁性及び導電性の電気特性が異なる熱硬化性樹脂複合材料分散液、並びに導電性の熱可塑性樹脂複合材料分散液の様々なグレードの分散液の品揃えができた。固形分に添加剤を含むことによりフィラーの分離安定性が向上することの確認、最適な分散液組成及び硬化・成形条件の確立、硬化パラメーターの測定及び硬化シミュレーションにより、分散液組成による硬化・成形特性及び粘度特性への影響、分散液成分の接触角測定による成形品モルフォロジーへの影響など技術の体系化により、従来技術に対する優位性の確認及び顧客要求に対する迅速な対応への体制構築ができた。これらの知見を技術資料としてまとめ、川下ユーザーに PR すると共に、電源の封止材として、コストパフォーマンスを意識した顧客からの要求特性に答えた分散液を設計・試作し、軽量・小型化、耐水性等に優れた樹脂封止電源を供給できた。現在、客先において川下需要の掘り起こしを行っている。

#### 3-1-2 新規高熱伝導性複合材料成形品に対する課題への対応

上記3-1-1項の様々なグレードの分散液を硬化・成形又は射出成形することにより得られる成形品の密度、熱伝導率及び熱輻射率の熱的特性、並びに電気伝導度の電気的特性を測定し、これらの機能評価結果と、フィラー濃度及び硬化・成形又は射出成形条件との関係を求めた。当該性能の優れた分散液成形品を得るための最適条件を把握すると共に、SEM・EDX 分析、3D X 線顕微鏡観察及び成形品構成成分の接触角測定により、複合材料のモルフォロジー解析を行い、フィラーリッチ相とフィラー非リッチ相とが均一に併存し、フィラーリッチ相が効果的な熱伝導性パスを形成していることが確認できた。

同様に、成形品の 5 wt% 重量減少温度(耐熱性)、曲げ強度・曲げ弾性率(機械的特性)、アイゾット衝撃値(耐衝撃性)及び線熱膨張係数(熱サイクル性)を測定し、これらの耐久性評価の結果と、フィラー濃度及び分散媒組成並びに硬化・成形又は射出成形条件との関係を求めた。フィラー濃度による耐熱性及び機械的強度の低下は認められず、これらの性質は主に分散媒及び硬化度に

依存することがわかった。また、フィラーリッチ相及びフィラー非リッチ相が共存しても、均一に分布させることによって、耐久性に大きな低下は見られなかった。これらの技術の確立及び体系化によって、製品化の際に顧客の要望に迅速に対応できる体制が構築できた。

### 3-1-3 成形加工技術に対する課題への対応

#### (i) リアクトル及びステータ用樹脂モールド技術の確立

上記(3-1-1)及び(3-1-2)項で得られた知見に基づいて、外装樹脂ケースを(GR-添加剤A)-ナイロン分散液成形品で作製し、ケース内に自動車搭載レベルのリアクトルを置き、その中に内装樹脂として(BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液をポッティング注入し、その後、下記(ii)の知見に基づく二色成形によって、異種材料界面での熱抵抗及び亀裂・ボイドの少ない樹脂モールドリアクトルのプロトタイプが作製できた。また、同様に、外装樹脂に(GR-添加剤A)-ナイロン樹脂分散液、内装樹脂に(BN-添加剤B)-熱硬化性樹脂分散液を用い、フィラー濃度を30、40及び50 wt%の樹脂モールドステータのプロトタイプを作製し、外装樹脂に切削加工によりフィン構造を付与したものを揃えた。このようにして得られた樹脂モールドリアクトル及びステータを用いて、下記(3-1-4)項に従って、リアクトル及びモーター評価を行い、樹脂モールドの有無による影響を調べた。

#### (ii) 二色成形加工技術の確立

(GR-添加剤A)-ナイロン樹脂分散液と(BN-添加剤A)熱硬化性樹脂分散液との導電/絶縁材料の二色成形品において、固形分に添加剤を含ませることによって、導電/絶縁材料界面において、添加剤がバインダーとしての役割を果たし、界面での熱抵抗及び機械的物性の損失が少ないことが確認できた。このことにより、コイル部での発熱を、絶縁材料を通し、導電材料に効率的に伝達でき、かつ導電材料の持つ高い熱輻射率によって、外気に効率良く放出することによってコイル部の温度上昇を抑えることができた。

#### (iii) 射出成形加工技術の可能性探索

GR フィラー濃度(30~50 wt%)の異なる(GR-添加剤B)-ポリプロピレン(PP)樹脂及び(GR-添加剤A)ナイロン樹脂分散液組成物(ペレット)を、射出成形機を用いて射出成形したところ、実用的な成形品の得られることが分かった。このことにより、リアクトル及びステータの樹脂モールド品の外装樹脂として利用でき、量産対応できる目処が立った。

### 3-1-4 環境配慮、省エネルギーおよび低コスト化課題への対応

#### (i) 樹脂モールドリアクトルを用いるリアクトルの評価

リアクトルの性能評価設備を作製し、上記(3-1-3)項で作製した樹脂モールドリアクトルと、樹脂モールド無しの通常用いられているリアクトルとを評価した。その結果、リアクトル稼働後、定常温度に達したあと、約14℃コイル部付近の温度が低下していることがわかった。これは、コイル部の

発熱が、絶縁／導電材料界面での熱抵抗が少なく、かつ導電材料の高い熱輻射によって外気に放出されているためでありリアクトルの小型化に繋がる。これらの知見は本研究開発で得られた分散液の具体的な応用例であり、技術資料としてまとめ、販路開拓に利用している。

#### (ii) 樹脂モールドステータを用いるモーターの評価

モーター性能評価装置を作製し、上記(3-1-3)項で作製した樹脂モールドステータ(モーター能力:定格出力 30 W、最大出力 3 kW、アウターローター型)を用い、作動初期における樹脂モールドの有無の影響及び作動平衡時における内装樹脂の BN フィラー濃度及び外装樹脂フィン構造の影響並びに樹脂ボビンの影響について調べた。その結果、フィラー濃度及びフィン有無による影響は少ないが、樹脂モールド有無及び樹脂ボビンによる顕著な効果が見られ、モーターの小型化に繋がることがわかった。これらの知見は本研究開発で得られた分散液の具体的な応用例であり、技術資料としてまとめ販路開拓に利用している。

#### (iii) 販路開拓

これらの研究開発成果を、権利化するために国内出願及び国際出願を行った。最終年度には、分散液の品揃えや、技術資料も揃ってきたので販路開拓に積極的に臨んだ。販路開拓活動は、ものづくり岡崎フェア 2018、名古屋プラスチック工業展及びオートモーティブワールド 2019 へ出展し、オープンイノベーションや川下企業との個別面談に加え、専門誌への投稿及び外部発表を行った。その他、中部経済産業局の特許ハンズオン支援事業に採択され、特許戦略に基づく秘密保持契約及び共同開発保持契約及び技術資料の作成の指導を受け体制強化を図り、また航空機電動化コンソーシアム会員となり、将来、自動車以外の新規分野展開の布石を打った。

これらの販路開拓活動により、数件の試作依頼を受け、最優先で取り組んでいる。同時に樹脂モールド分野への販路開拓を進め、本研究開発の成果が事業として成り立つよう注力する。

### 3-2 研究開発後の課題・事業化展開

本研究開発を通して、熱プレス成形できる高熱伝導性熱可塑性樹脂コンパウンド(固形分)、ポッティング及び加圧注型できる高熱伝導性熱硬化性樹脂分散液、並びに射出成形できる高熱伝導性熱可塑性樹脂分散液(ペレット)を開発でき、その応用例として、絶縁／導電材料二色成形、コンバーター用樹脂モールドリアクトル及びモーター用樹脂モールドステータの有効性を確認することができた。

事業期間中に行った販路開拓において、市場には様々な材料が出回っているが、必ずしもユーザーの要望を満足していないことを知った。特に、自動車業界では Si 半導体から SiC 半導体へのシフト、電動化及び自動化によって、より小型化・高性能化・軽量化や、高温作動が求められており、新規な高熱伝導・放熱材料への期待は大きい。事業化に向けたと陸については、本研究開発で得られた材料の基本的な特徴、本材料の有効な使用方法等を PR 資料として整理し、学会、工業会、

展示会等を通して関連業界への認知を進めると共に、関連企業に対して積極的に訪問し、サンプル評価などの機会を増やし、川下のニーズを取り入れた材料カスタマイズが重要である。

事業期間中に、高集積電源基板の封止（樹脂モールド）、電池関連導電部材及びパワーデバイス関連絶縁部材といった用途が明確になっている数社との取組については、優先的に進め、早期の開発/実用化を目指す。リアクトル及びステータの樹脂モールド化に関する検討については、外部PRやサンプルワークによって、ユーザーとキャッチボールできる機会を増やし、又は共同開発によって実用化を目指す。

放熱フィンや筐体を除く用途では、デバイスとしての市場は大きいですが、材料使用量は決して多くない。そのため、材料メーカーが会社を挙げて取り組むものでもないように思える。そこで我々は、材料メーカーと川下部品メーカーの間で、材料の利用方法まで探求するソリューションを提供し、事業化を目指す。製品ラインアップとしては、原料コンパウンドや分散液だけでなく、フィルムやシートのような部材から、放熱フィンのような部品まで、幅広い製品化を考え、自動化・大量生産などは、他企業との連携やライセンス契約などの選択肢があり、状況を見て判断する。また、実用化の実績が進めば、横展開によって、自動車分野のみならず、航空機、ロボット、カメラ、医療機器、通信機器、エネルギーなど、放熱・熱伝導の必要とする幅広い市場を考える。