

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04181

研究課題名（和文）温度場計測とメゾ構造伝熱解析によるポリマー系複合材料の熱伝導メカニズム解明

研究課題名（英文）Elucidation of the heat conduction mechanism of polymer composites by measurement of the temperature field and analysis of the heat transfer in the mesostructure

研究代表者

真田 和昭（Sanada, Kazuaki）

富山県立大学・工学部・教授

研究者番号：20363872

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：ポリマー系複合材料の熱伝導メカニズムを熱の流れとメゾ構造の関連性から解明するために、サーモグラフィ顕微鏡による温度場計測、定常法を用いた熱伝導率測定、メゾ構造を考慮した熱伝導率測定に関する有限要素解析を行った。温度場計測の結果、フィラーの種類や存在状態の違いにより温度場が明確に変化した。有限要素解析の結果、レーザーフラッシュ法を考慮した解析結果は定常法を考慮した解析結果に比べて高い値を示した。また、フィラー体積分率の増大に伴う解析結果の変化は、熱伝導率測定結果と同様な傾向を示した。さらに、フィラーの接触の影響を考慮すると、解析結果と実験結果の差異が小さくなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子機器の高性能化に伴い放熱対策が重要な技術課題となり、放熱材料として活用されるポリマー系複合材料の高熱伝導化技術の研究開発が活発に進められている。本研究で得られた成果は、高熱伝導化に有効な複合材料のメゾ構造に関する知見と、不均質性を考慮した複合材料の熱伝導率の高精度な測定方法確立に寄与する知見であり、複合材料工学分野における学術的意義は大きく、高性能な電子機器開発に大きく寄与するものである。

研究成果の概要（英文）：In order to elucidate the heat conduction mechanism of polymer composites in terms of the relationship between heat flow and mesostructure, we measured the temperature field using thermographic microscopy, measured the thermal conductivity using the steady-state method, and performed finite element analysis on the thermal conductivity measurement considering the mesostructure. The results of the temperature field measurement showed that the temperature field changed significantly depending on the type of filler and its state of existence. The results of finite element analysis showed that the results considering the laser flash method were higher than those considering the steady state method. The change in analytical results with increasing filler volume fraction showed a similar trend to the thermal conductivity measurement results. Furthermore, the difference between the analytical and experimental results became smaller when the effect of filler contact was taken into account.

研究分野：複合材料工学

キーワード：熱伝導率測定 有限要素解析 サーモグラフィ ポリマー系複合材料 熱伝導性フィラー 熱伝導率
メゾ構造

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 (共通)

1 . 研究開始当初の背景

近年、電子・電気機器のサーマルマネジメントが重要な技術課題となっている。現在、サーマルマネジメントに活用される放熱材料の1つとして、ポリマーに電気絶縁性と高い熱伝導性を有するセラミックス粒子(熱伝導性フィラー)を充填したポリマー系複合材料が注目され、国内外で活発に高熱伝導化技術に関する研究開発が進められている。ポリマー系複合材料の高熱伝導化は、熱伝導性フィラーを隙間なく密に充填する技術(最密充填技術)で達成されてきた。しかし、熱伝導性フィラーを最密充填したポリマー系複合材料は、熱伝導率は高くなるが、流動性が失われて、成形加工性が悪くなるだけでなく、使用時のヒートサイクルで破壊しやすくなるという問題があった。これまでは、ポリマーの改良でこれらの欠点を克服してきたが、ますます高い熱伝導率の付与が要求されてきたため、対応困難な状況となった。そこで、最近では、少量の熱伝導性フィラーで効果的に熱伝導率を向上させる技術の開発が進められており、伝熱ネットワーク構造(熱が伝わる経路が網目状になった構造)を高効率に形成する手法が期待されている。熱伝導性フィラーによる伝熱ネットワーク構造形成は、多種多様な熱伝導性フィラーを組み合わせ、大きさ、形状、配合割合等の影響因子を制御することで実現しようと試みられている。申請者は、熱伝導性フィラーとカーボンナノチューブ(CNT)を用いたポリマー系複合材料の熱伝導特性に関する理論的実験的研究を行い、熱伝導性フィラーとCNTが形成するマルチスケルな伝熱ネットワークの相乗効果により、複合材料の熱伝導率が著しく向上することを示すとともに、複合材料の内部微視構造(メゾ構造)を考慮した解析モデルを提案して、熱伝導に関する有限要素解析の妥当性を示してきた。しかし、複雑なメゾ構造に起因して、どの影響因子が高効率な伝熱ネットワーク構造形成に大きく寄与するのか不明瞭な部分が多く、複合材料内部の熱伝導メカニズムも未解明である。また、複合材料の高熱伝導化に有効な伝熱ネットワーク構造の形態も未確立の状況である。一方、ポリマー系複合材料の熱伝導率の測定方法にも課題が残されている。熱伝導率の測定方法は、熱の流れの違いにより、比較法、ガードヒーター法等の定常法と、レーザーフラッシュ法、ホットディスク法等の過渡(非定常)法に分類され、多くの測定機器が市販されている。しかし、熱伝導性フィラーを高充填したポリマー系複合材料の熱伝導率の測定値は、測定方法によって大きく異なり、物性値として評価できていないのが現状で、不均質性を考慮した熱伝導率測定方法の確立が急務の課題である。

2 . 研究の目的

本研究は、ポリマー系複合材料を対象に、赤外線サーモグラフィ顕微鏡による温度場計測、複合材料の熱伝導率測定、メゾ構造を考慮した代表体積要素(RVE)モデルによる熱伝導率測定に関する有限要素解析を行い、熱の流れとメゾ構造の関連性を明らかにして、熱伝導メカニズムを解明するもので、高熱伝導化に最適な伝熱ネットワーク構造を見出すとともに、不均質性を考慮した新規熱伝導率測定方法の提案を目指すことを目的とする。

3 . 研究の方法

(1) 複合材料の作製

複合材料のマトリックスには主剤にビスフェノール A 型エポキシ樹脂(jER828, 三菱ケミカル株式会社)、硬化剤に酸無水物(HN-2000, 株式会社レゾナック)、硬化促進剤に1-イソブチル-2-メチルイミダゾール(IBMI12, 三菱ケミカル株式会社)を用いた。また、熱伝導性フィラーは平均粒径35 μ mの球状アルミナ、六方晶窒化ホウ素(BN)(UHP-1K, 株式会社レゾナック)、表面を酸化処理した多層カーボンナノチューブ(MWNT)(US research nanomaterials)を用いた。

真空装置付攪拌脱泡装置(SK-350TV, 株式会社写真化学)を用いて複合材料の作製を行った。主剤と硬化剤を規定量投入し2min攪拌後、アルミナは10g, BNは5g, MWNTは0.5g程度に分けながら規定量を投入し、投入するたびに2min攪拌した。その後、硬化促進剤を規定量投入し、2min攪拌した。アルミナは40, 50, 60vol%, BNは20, 25, 30vol%, MWNTは1, 3, 6vol%充填した。主剤、硬化剤、硬化促進剤の配合割合は、100:80:2とした。複合材料の作製後、型に流し込み、ホットプレス機(AH-IT, アズワン株式会社)を用いて80 $^{\circ}$ Cで加圧し、その後送風乾燥機(DKN402, ヤマト科学株式会社)を用いて加熱硬化した。加熱硬化条件は100 $^{\circ}$ Cで2h, その後150 $^{\circ}$ Cで4hとした。

(2) 赤外線サーモグラフィ顕微鏡を用いた材料内部の温度場計測

アルミナ/エポキシ樹脂およびBN/エポキシ樹脂複合材料を対象に、赤外線サーモグラフィ顕微鏡FLIR製X6580scを用いた材料内部の温度場計測を実施した。

(3) 熱伝導率測定

定常法による熱伝導率測定は、熱伝導率測定装置(HC-110, 英弘精機株式会社)を用いて行った。熱伝導率測定用試験片は直径50mm, 厚さ10~15mmの円柱形とした。試験片を低温プレートと高温プレートで挟み、窒素ガスを用いて一定の圧力(約0.4MPa)を加え、試験片の上面から流入する熱流束、試験片の下面から流出する熱流束、試験片の上下面間の温度差が定常となるまで保持した。

(4) 有限要素解析

Table 1 に解析で用いたエポキシ樹脂，アルミナ，BN，空気の熱伝導率，密度，比熱を示す．エポキシ樹脂の熱伝導率と密度は，本研究室での測定結果を用いた．その他の物性値は文献値を用いた．

Table 1 Material properties of epoxy, alumina, BN and air used in the analysis

Materials	Thermal conductivity (W/mK)		Density (kg/m ³)	Specific heat (J/kgK)
	In-plane Thickness			
Epoxy	0.164		1210	1437
Alumina	29		3890	779
BN	In-plane	200	2270	780
	Thickness	2		
Air	0.02		1.292	1007

Digimat-FE (MSC ソフトウェア株式会社) を用いて，直交座標系 (x, y, z) における代表体積要素 (representative volume element, RVE) モデルを作成した．Fig.1 にアルミナ/エポキシ樹脂複合材料の RVE モデル，Fig.2 に BN/エポキシ樹脂複合材料の RVE モデル，Fig.3 に空洞を有するアルミナを考慮した中空アルミナ/エポキシ樹脂複合材料の RVE モデルを示す．RVE モデルは，1 辺 L の立方体のマトリックス (エポキシ樹脂) 中にフィラーがランダムに分散した状態を考慮している．境界条件の異なる RVE モデルを作成した．アルミナ/エポキシ樹脂複合材料の場合，フィラーが周期対称面を横切らないモデル (individual モデル)，フィラーが周期対称面を横切るモデル (periodic モデル)，熱伝導率測定方向のみフィラーが周期対称面を横切らないモデル (in-plane periodic モデル) を作成し，アルミナ体積分率 V_f^{Al} を 40, 50, 60vol% とした．BN/エポキシ樹脂複合材料の場合，periodic モデルと in-plane periodic モデルを作成し，BN 体積分率 V_f^{BN} を 20, 25, 30vol% とした．中空アルミナ/エポキシ樹脂複合材料の場合，individual モデルを作成し，中空アルミナ体積分率を 50vol% とし，空洞率 V_f^{air} を 7.5, 10, 15, 20, 25, 30vol% とした．

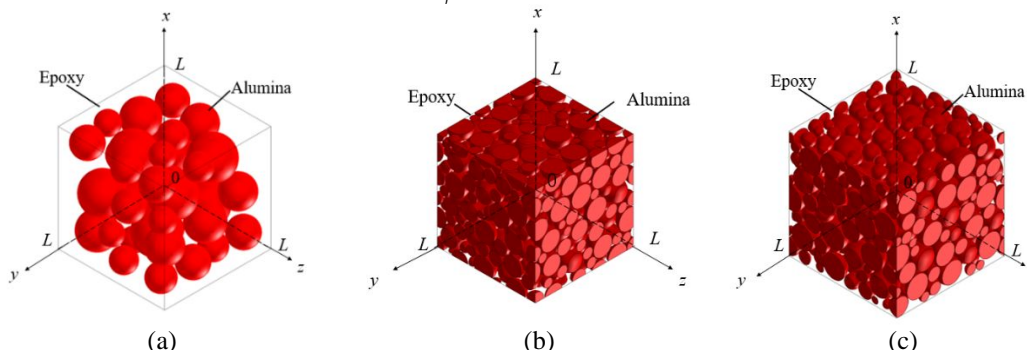


Fig.1 RVE models of alumina/epoxy composites: (a) individual; (b) periodic; (c) in-plane periodic

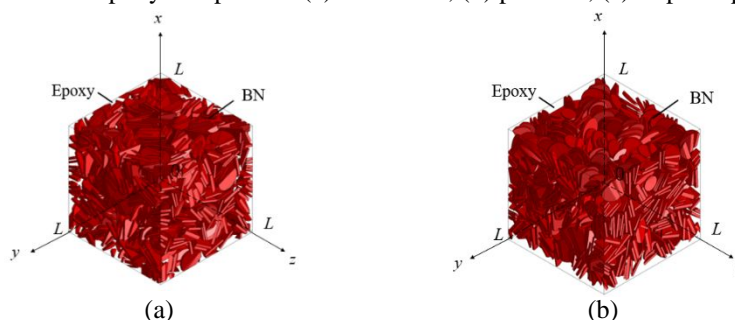


Fig.2 RVE models of BN/epoxy composites: (a) periodic; (b) in-plane periodic

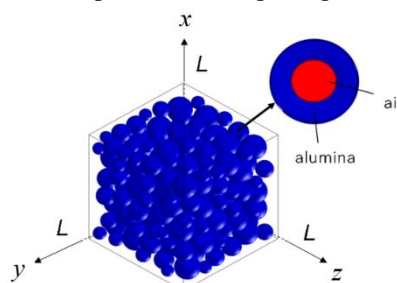


Fig.3 RVE model of hollow alumina/epoxy composites (individual)

4. 研究成果

Fig.4 はアルミナ / エポキシ樹脂複合材料の内部の温度分布測定結果を示したもので，(a)はア

ルミナ体積分率 50vol% , (b)はアルミナ体積分率 60vol% の場合である . アルミナ体積分率 50vol% の場合 , アルミナが下部に沈降し , 上部のヒーター面付近では樹脂層が形成されたため , 温度が高くなる傾向を示した . アルミナ体積分率 60vol% の場合 , アルミナが均一に分散したため , ヒーター付近の温度は低くなり , 複合材料全体の温度が上昇した . 従って , 複合材料の微視構造に対応する局所的な熱伝導率の分布を温度分布で考察できることが明らかとなった .

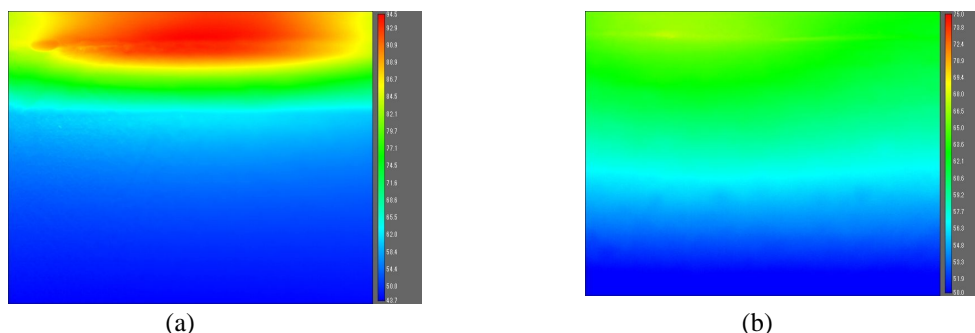


Fig.4 Temperature distributions in cross-section of alumina/epoxy composites with various alumina volume fractions: (a)50vol%; (b)60vol%

Fig.5 に温度場計測で得られた各種複合材料の断面内の温度とヒーター面付近からの距離の関係を示す . 50vol% アルミナ / エポキシ樹脂複合材料の場合 , ヒーター面側がフィラーの沈降により樹脂層が形成されたため , ヒーター面付近からの距離 0.5mm 付近までの温度差が 20°C程度となり , 熱伝導率が低い状態であることが明確に示された . その後 , フィラーの存在により熱伝導率が高くなったため , 温度差が小さくなった . 60vol% アルミナ / エポキシ樹脂複合材料の場合 , フィラーの沈降が生じていないため , 熱伝導率が一様となり , ヒーター面付近からの距離の増大に伴い , ほぼ直線状に温度が低下した . 25vol% BN / エポキシ樹脂複合材料の場合 , ヒーター面付近からの距離 0.7mm までほぼ一定の温度を示し , その後緩やかに温度が低下した . ヒーター面付近からの距離 1.8mm 付近の温度は , アルミナ / エポキシ樹脂複合材料の結果に比べて高い値を示した . これは , 複合材料全体の熱伝導率が高いため , ヒーター面付近と 1.8mm 付近温度差が小さくなったと考えられる . 30vol% BN / エポキシ樹脂複合材料の場合 , 60vol% アルミナ / エポキシ樹脂複合材料の熱伝導率に比べて , 熱伝導率が僅かに高くなるが , その傾向が温度差で示された . 従って , 複合材料の断面内の温度分布を詳細に整理することで , 複合材料内部の局所的な熱伝導率の分布や複合材料全体の熱伝導率を予測することが可能である .

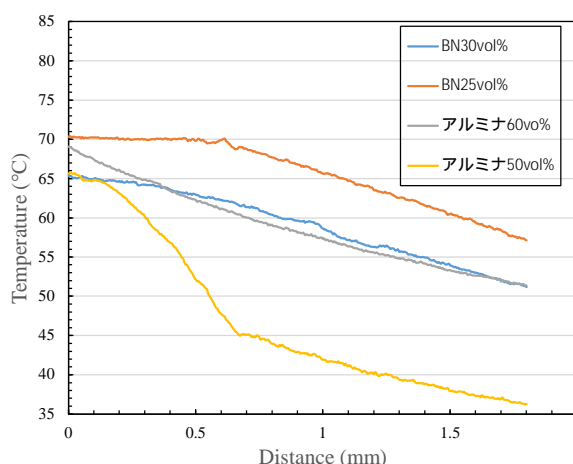


Fig.5 Temperature in cross-section of various composites versus distance from the heating surface

Fig.6 はアルミナ/エポキシ樹脂複合材料の in-plane periodic モデルの有限要素解析で得られた熱伝導率を示したもので , (a)はフィラーが未接触の場合 , (b)はフィラーの接触を考慮した場合であり , 定常法で得られた実験結果と比較している . レーザーフラッシュ法を考慮した解析で得られた複合材料の熱伝導率は , 定常法を考慮した解析で得られた結果に比べて高くなった . また , 解析結果と実験結果は良く一致した .

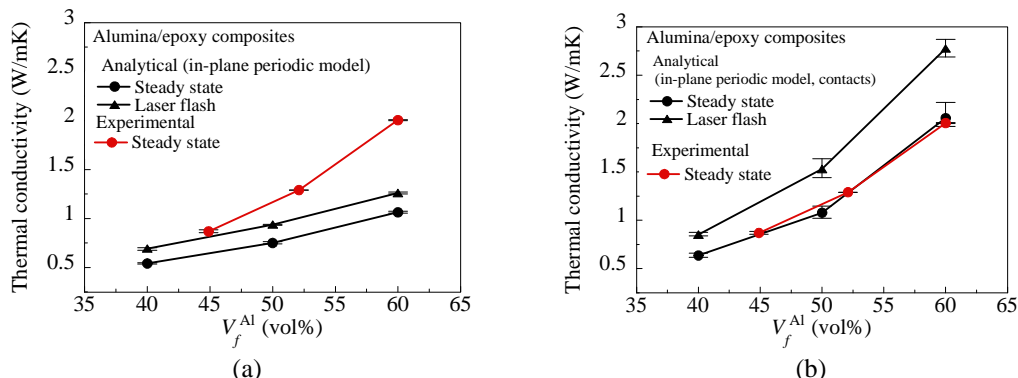


Fig.6 Predicted thermal conductivity of alumina/epoxy composites using in-plane periodic model versus alumina volume fraction:(a)without contacts; (b)with contacts

Fig.7 は Fig.6 と同様なグラフであり，BN / エポキシ樹脂複合材料の場合である．フィラーの接触を考慮しても解析結果と実験結果は一致しなかった．これは，BN 体積分率の変化で BN の配向が変化するためと考えられる．

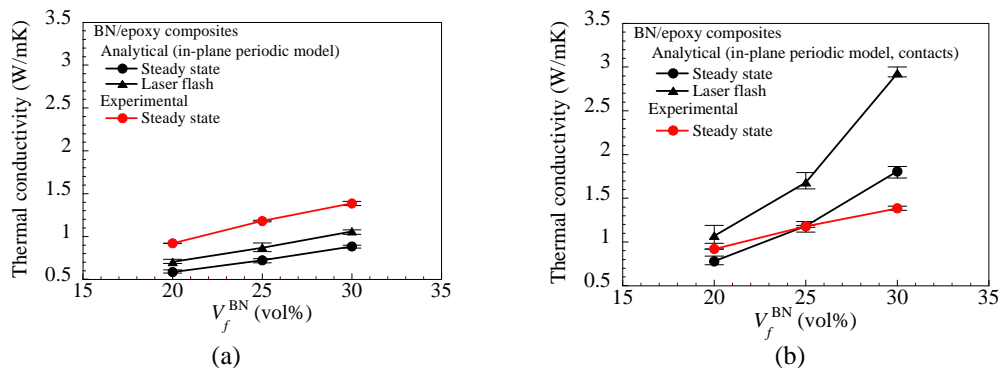


Fig.7 Predicted thermal conductivity of BN/epoxy composites using in-plane periodic model versus BN volume fraction:(a)without contacts; (b)with contacts (25vol%BN)

Fig.8 は，定常法とレーザーフラッシュ法を考慮した individual モデルの有限要素解析で得られた中空アルミナ/エポキシ樹脂複合材料の熱伝導率に及ぼす中空アルミナの空洞率の影響を示したもので，(a)はフィラーが未接触の場合，(b)はフィラーが接触した場合である．フィラーが接触した場合，定常法で得られた熱伝導率は，空洞率 15vol%までは空洞のないアルミナを用いた複合材料の熱伝導率と同等の値を示したが，レーザーフラッシュ法で得られた熱伝導率は，空洞率 10vol%までは空洞のないアルミナを用いた複合材料の熱伝導率よりも僅かに高い値を示した．

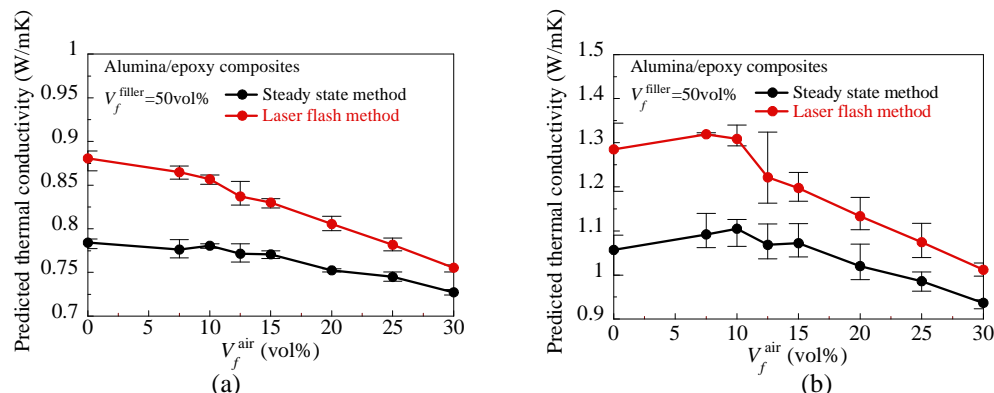


Fig.8 Predicted thermal conductivity of hollow alumina/epoxy composites using individual model versus air volume fraction:(a)without contacts; (b)with contacts

Fig.9 に定常法による熱伝導率測定で得られた MWNT/エポキシ樹脂複合材料の熱伝導率に及ぼす MWNT 体積分率の影響を示す．複合材料の熱伝導率は，1～6vol%の範囲では，MWNT 体積分率の増大に伴いほぼ直線的に増大した．

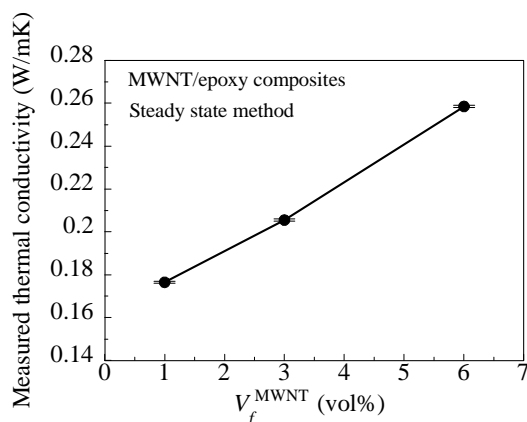


Fig.9 Measured thermal conductivity of MWNT/epoxy composites versus MWNT volume fraction

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 戸瀬良太・真田和昭
2. 発表標題 測定方法の違いを考慮したBN/エポキシ樹脂複合材料の熱伝導率評価
3. 学会等名 日本熱物性学会第43回日本熱物性シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 戸瀬良太・真田和昭
2. 発表標題 測定方法の違いを考慮したポリマー系複合材料の熱伝導率に関する有限要素解析
3. 学会等名 第71回高分子学会北陸支部研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 戸瀬良太・真田和昭・服部真和・杉江舞
2. 発表標題 ポリマー系複合材料の熱伝導率測定に関する有限要素解析
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸瀬良太・真田和昭・服部真和・杉江舞
2. 発表標題 アルミナ中空フィラーを用いたポリマー系複合材料の熱伝導率に関する有限要素解析
3. 学会等名 日本熱物性学会第42回熱物性シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸瀬良太・真田和昭・服部真和
2. 発表標題 アルミナ/エポキシ樹脂複合材料の熱の流れに関する有限要素解析
3. 学会等名 日本機械学会北陸信越支部第50回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------