

熱伝導率60倍の樹脂を開発 金属部品を安価なプラスチックに代替

まずは光ピックアップから

上利 泰幸
大阪市立工業研究所
プラスチック課 研究副主幹
紙谷畑 恒雄
日本科学冶金
商品開発研究所 主任研究員

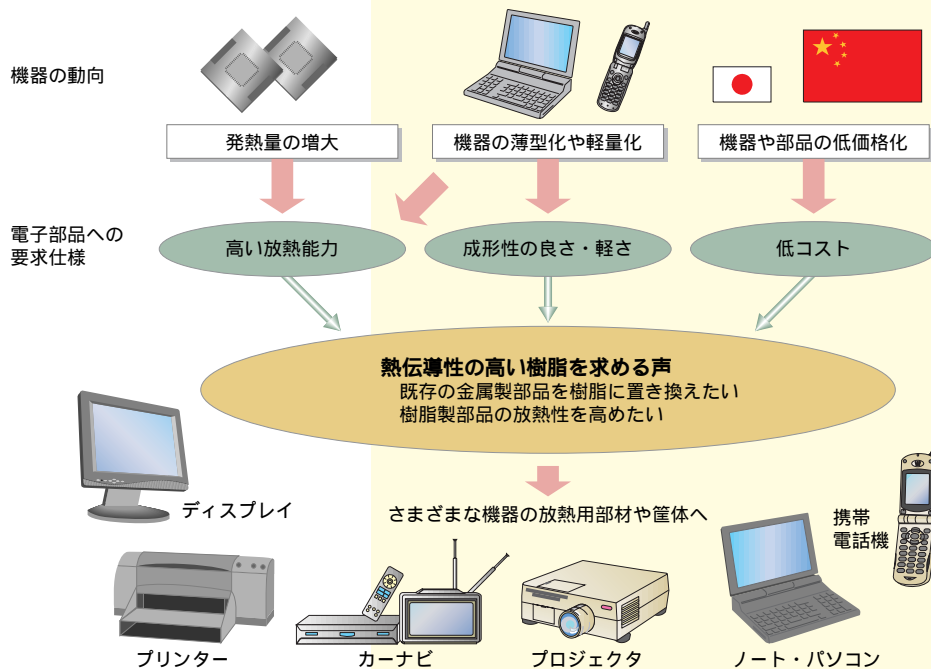


図1 「放熱」「低コスト」「成形性」「軽さ」を樹脂で実現
 発熱量の大きい機器が増えている。今は筐体やシャーシに金属を用いることで放熱性を確保しているが、それも難しくなりつつある。低コスト化の波が中国などから押し寄せ、金属をもっと安い材料に変える必要性が高まっているからだ。その一方で、高い成形性も兼ね備えた材料でないと、機器の薄型化や小型化といった要求には応えられない。樹脂なら、一般に成形性も高いし、金属より軽量化や低コスト化も見込める。しかし、これまでは大きな壁があった。金属に比べて熱伝導性が大幅に低いという欠点があるからだ。我々は、樹脂の熱伝導率を25W/m・Kに高めることに成功した。これにより、数々の電子機器の金属部品を樹脂に置き換えることが可能になる。

ノート・パソコンや光ディスク装置、プロジェクタ、携帯電話機など、多くの機器の筐体内で部品の発熱量が増えている。現状では筐体やシャーシ、放熱板などに金属を用いて熱を拡散させているが、ここで問題になっているのが部品としてのコストである。一般に金属部品の価格は樹脂に比べて高い。そこで安価な樹脂の熱伝導率を高めることで、金属を代替できないかという要求が以前からある。今回、こうした需要に応えるため、PPS (polyphenylene sulfide) 樹脂の熱伝導率を60倍に高めることに成功した事例が出てきた。応用が想定される機器の分野と、熱伝導率が高まるメカニズムについて開発担当者が解説する。 (白倉 資大=本誌)

注1) 熱伝導率とは、物体間を熱が移動する現象を評価する指標である。温度差のある2つの物体が接してしばらくすると、両者の温度勾配が定常状態になる。このとき、物体間を移動する熱量は温度勾配に比例する。この際の比例定数を熱伝導率と呼ぶ。熱伝導率は分子の運動性や配列と強い相関を持つ。

注2) 原料費としてはAl合金やMg合金のダイカスト品の方が一般的な樹脂よりも安い。しかし、切削加工の必要性や連続生産性(量産加工性)の低さ、および金型取数、寿命面から樹脂の方が部品としては安く仕上がっているのが実態である。

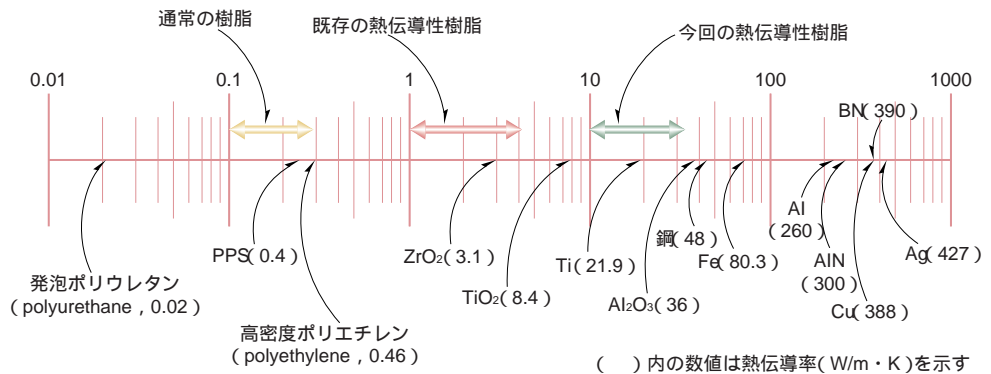
発熱する部品を搭載する機器の多くが、筐体やシャーシ、放熱板などの材料として金属を使っている。その理由は、金属が持つ高い熱伝導率^{注1)}にある。熱を素早く周囲に拡散してくれるので、部品を局所的な高温から守ることができる。さらに金属は機械的な強度と、板金や金型、切削などによる加工性も兼ね備えており、複雑な形状になりがちな放熱用部材として用いる上で格好の材料として君臨してきた。

ところが今、機器設計者から「既存の部品

を樹脂などの他の材料に置き換えたい」と望む声が多く寄せられている。その最大の理由は部品コストである^{注2)}。価格競争力の高いアジア各国や中国などから押し寄せる低コスト化の圧力は高まるばかり。最近になってこれが一層激しくなり、これまで用いてきた金属部品にまで、コスト削減の源泉として鋭いメスが入るほどになったのだ (p. 127の図1)

こうした背景から、電子機器向けの金属部品や精密樹脂部品などの成形を手掛ける当社(日本科学冶金)にも、機器設計者から金属

(a) Ti (チタン) と同等の熱伝導性を備える



(b) 既存の熱伝導性樹脂の例

材料の種類	PPS系複合材	PPS系複合材	不飽和ポリエステル系複合材
熱伝導率 (W/m・K)	2.8	1.3	5.5
測定方法	ASTM E1530	レーザ・フラッシュ法	ASTM E1530
曲げ強度 (MPa)	140	95	108
流動性	射出成形用グレード	バーフロー金型で測定した流動長は95mm	高化式フロー・テストで測定した溶融粘度は80Pa・s程度

ASTM : American Society for Testing and Materials (米国材料試験協会)

図2 今回の樹脂の熱伝導率は従来のPPS樹脂の60倍

今回の樹脂の熱伝導率は25W/m・Kで、従来のPPS樹脂の0.4W/m・Kと比較すると60倍である(a)。これまでも熱伝導性樹脂はあったが、いずれも熱伝導率の値(W/m・K)は1けた台にとどまっていた(b)。今回開発した樹脂の熱伝導率は従来品の4倍~20倍に達する。

部品の低コスト化を求める声が多く寄せられるようになった。日本国内の部品メーカーが人件費の低い中国などに製造拠点を続々と移転させる中で、こうした低コスト化の要望に対応できなければ国内で部品製造を継続することはできなくなる。そこで出した結論は「成形技術だけを追求しても限界がある。低コスト化と高い熱伝導性を実現する材料技術まで踏み込んで開発をしないと突破口は開かない」。こうした認識から、熱伝導性樹脂について長年の研究実績を持つ大阪市立工業研究所の指導のもとに、2000年に樹脂の高熱伝導化を目指した共同研究に乗り出した。

既存の「熱伝導樹脂」では足りない

これまで、数々の材料メーカーが、樹脂に金属やセラミックスを配合して熱伝導性を高めた樹脂を世に送り出している(図2^{注3)})。しかし、その熱伝導率(W/m・K)の値はいずれも1ヶタ台の値にとどまっている。この程度だと放熱性能が足りないことが多く、既存の金属部品を置き換えるには至っていない。そこでこれらは主に、金属製放熱部材の接触熱抵抗を減らす用途、例えば放熱シートや熱伝導性接着剤などで活躍している^{注4)}。

我々は、このように樹脂の熱伝導率がそれほど高くできない理由が、樹脂中に添加する熱伝導性の高い材料(熱伝導性フィラー)の使い方にあることに着目した。従来の熱伝導性樹脂では、粉末状の熱伝導性フィラーを単に混ぜ込んでいたので、樹脂内で同フィラーが離れ小島のように点在していた。このため、同フィラーの内部だけ熱伝導率が高くても、フィラー間に存在する母材によって熱伝導が阻害されて十分な放熱効果を得られなかった。

これに対して我々は今回、フィラーを互いにつなぎ、樹脂内に網の目のように張り巡らせる方法を開発した。この伝熱ネットワークを形成することで、熱伝導率を25W/m・Kとこれまでの約60倍に高めた。

表1 光ピックアップの発熱量は今後も増大する

	半導体レーザーの種類	光出力 (mW)	発熱量 (mW)
DVDプレーヤ	赤色(波長650nm前後)の低出力品	10	130
CD R/RW装置	近赤外(同780前後)の高出力品	220	180
記録型DVD装置	赤色(波長650nm前後)の高出力品	70	230

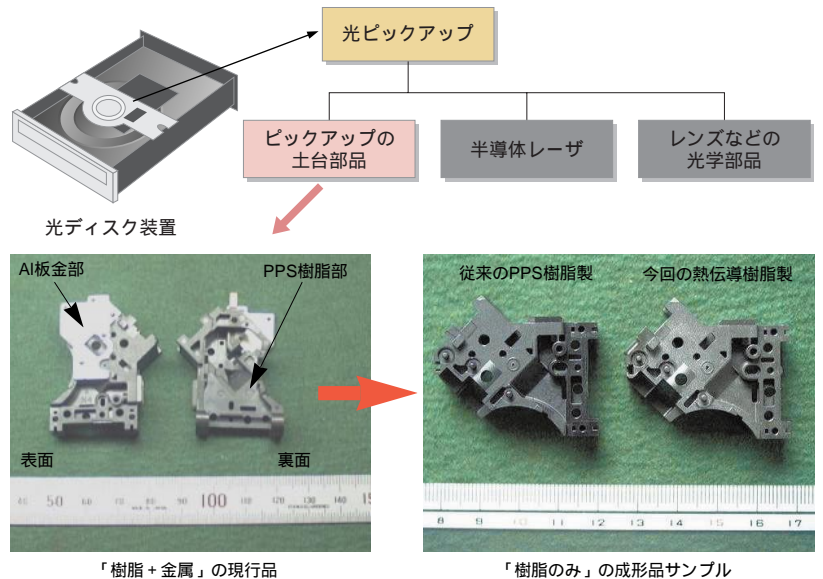


図3 光ピックアップの土台部品は「金属」「金属+樹脂」「樹脂」へ
CD R/RW装置に搭載する光ピックアップの土台部品(OPベース)はこれまで金属製が一般的だった。しかし低コスト化を実現するため、OPベースの1部分にPPS樹脂を用いる例が出てきた。これにより、原材料費を30%削減できる。今回の樹脂の熱伝導率であれば、OPベースを完全に樹脂化することが可能になる。その場合、金属製に比べて部品の製造コストは半分になる。

光ディスク装置の部品で実用化

今回の樹脂の熱伝導率である25W/m・Kは、さまざまな金属と比較した場合、Ti(チタン)とほぼ同等の値である。樹脂のベースとなる材料には、PPS(polyphenylene sulfide)樹脂を選んだ。機械的な強度や寸法精度の点で優れており、金属を代替する材料として採用実績もあるからである。

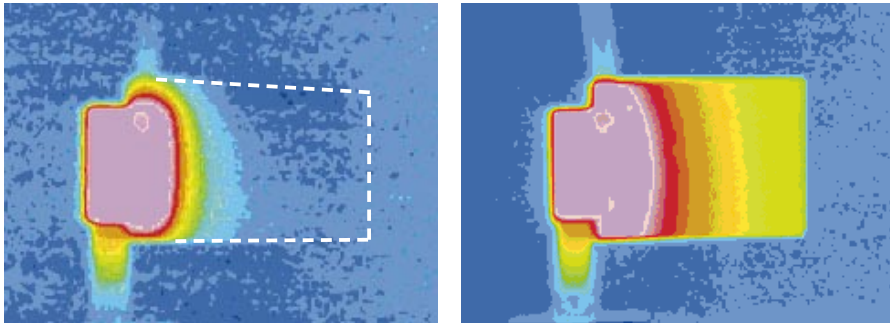
さまざまな分野において、今回の樹脂は利用されると考えているが、いち早く採用を見込んでいるのが光ディスク装置用の部品である。もっと具体的にいえば、光ピックアップ全体を支える台となる、いわゆるOPベースに適用するつもりだ。

既に、DVDプレーヤなど再生専用の光ディスク装置では、低コスト化を目的としたOP

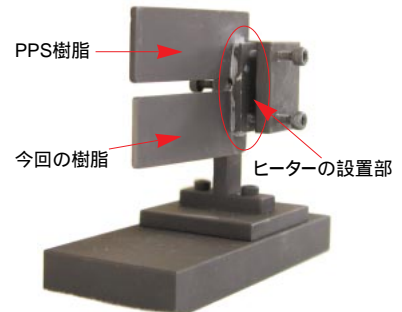
注3) 図2(b)で示した流動性の測定方法は次の通りである。測定に用いたのはパーフロー金型で、断面は厚さ1mm×幅10mm。成形条件は、シリンダ内の樹脂温度が+310。金型の温度は+130である。射出圧力は177MPa。

注4) 数W/m・Kといった低い熱伝導率の樹脂は、放熱シートや熱伝導性接着剤に用いられている。金属の温度上昇によって変形するため、金属部品間のすき間を埋めて熱伝導性を高める用途に有効だからだ。金属やセラミックスで作った部品同士の合わせ面や電子部品の取り付け部に生じる空隙を埋め、接触熱抵抗を低く抑えるために、熱伝導性を高めるフィラーを樹脂に混合する。放熱シートは主にトランジスタと基板の間に挟んで使う。熱伝導性接着剤は、放熱フィンとシャーシなどをつなぐ。

(a) 熱を末端まで拡散させる



(b) 反射による測定への影響を抑えるために治具を黒く塗った



(c) 熱をほぼ均一に広げる

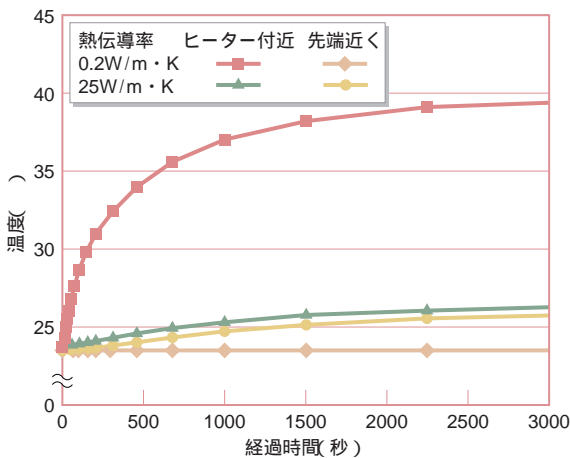


図4 熱を末端まで伝達させる

実験の結果、今回の樹脂は従来のPPS樹脂に比べて熱を伝達する力が強いことを確認できた(a)。試験は治具に試験片を挟み、ヒーターで加熱して実施した(b)。熱伝導率0.2W/m・KのPPS樹脂の場合は、ヒーターの付近だけ温度が急上昇し、試験片の末端の温度は上昇しなかった(c)。しかし熱伝導率が25W/m・Kである今回の樹脂の場合は、ヒーターの設置部分の温度はそれほど上昇しなかった。

そこで我々は2001年に、中間的仕様としてPPS樹脂の台にAl合金製の板金部品を装着した複合型のOPベースを製造し始めた。熱伝導性を維持しながら、金属部分を限界まで減らすためである。この結果、それまでの「オール金属製」のOPベースに比べて部品コストを30%ほど減らすことができた。

しかし、理想は「オール樹脂製」である(図3)。今回開発した樹脂の熱伝導率であれば、CD R/RW装置のOPベースを完全に樹脂化できる。これは2003年の春に、発売する計画である。部品のコストはオール金属製のOPベースに比べて50%以上削減できると考えている。

従来のPPS樹脂と成形性は同等

今回の樹脂が高い熱伝導性を備え、レーザ部に熱がこもらないことは、実験でも確認済みである(図4)。しかし、それを重視するあまり、成形性を低下させてしまっは元も子もない。今回は樹脂の流動性や成形条件などを従来のPPS樹脂とほぼ同等にできた。実際、今回の樹脂と従来のPPS樹脂を同じ金型で射出成形したところ、ほぼ同等の品質でダンベル型(JIS1号)を作れることを確かめている(図5)。射出成形時の金型温度や樹脂温度もほとんど変えなくてよいため、従来のPPS樹脂で用いていた金型や射出成形機をそのまま使うことができる。

物性面で比較しても、従来のPPS樹脂と同

(a) ダンベルの全長は175mm



(b) 成形条件はPPS樹脂とほぼ同等

項目	成形条件	
	今回の熱伝導性樹脂	従来のPPS樹脂
金型温度	+130 ~ +150	
樹脂温度	後部	+280 ~ +330
	中部	+290 ~ +340
	前部	+310 ~ +350

図5 通常のPPS樹脂と同様に射出成形が可能

1点のサイドゲートのみを使ってダンベル型(JIS1号)を射出成形した見本である(a)。サイドゲートは、見本品の上部右端から5mmの位置にある(幅4mm×厚さ3mm)。左端まで正しい形状で作ることができている。成形条件はPPS樹脂とほぼ同等である(b)。樹脂温度は今回の樹脂の方がやや高めに設定して射出する必要があるが、大きな差はない。ダンベルの左端上部にも凸部分があるが、これはサイドゲートを2カ所持つ金型を用いたことによるもので、こちら側は閉じたままとした。

ベースの樹脂化が進行している。しかしCD R/RW装置といった書き換え可能な光ディスク装置の場合、再生専用機に比べて書き込み時に半導体レーザから出る熱量が段違いに高い(表1)。このため、放熱性能の点で樹脂化することが難しかった。

様に扱えることが分かる(表2)。例えば射出成形時の流動性を示す指標であるSFL(スパイラル・フロー長さ)^{注5)}は、今回の樹脂の熱伝導率を9W/m・Kと低めに調整すれば、従来のPPS樹脂よりもかえって流動性が高まるほどだ。30W/m・Kと熱伝導率を上げたものでも、従来のPPS樹脂のSFL値が80mmであるのに対し、75mmとほとんど変化しない^{注6)}。

機械的強度は、従来のPPS樹脂が140MPaであるのに対し、今回の樹脂は100MPaと若干低下している。しかし、依然としてガラス繊維などの補強用フィラーを混合した樹脂並みを維持しており、従来のPPS樹脂を置き換える用途においては支障がないと考える。

フィラーの充填量を減らしたい

一般に、樹脂の熱伝導性を高める方法としては、熱伝導性フィラーを大量に充填する方法が採用されている。同フィラーの例としては、導電性が求められる用途ではAlやCuなどの金属粉末が用いられる。絶縁性が求められる場合は、BN(窒化ホウ素)やAlN(窒化アルミ)、Al₂O₃(アルミナ)などを使う。

樹脂に配合するフィラーの量を増やせば、

それにつれて熱伝導率が高まることはこれまでもよく知られていた。アルミナ粉末を用いた実験によると、樹脂の熱伝導率はフィラーの充填量が40容量%くらいまではあまり増加しない。その後50容量%以上になると指数関数的に増加した(図6)。

この実験結果は「高い熱伝導率を得たいなら大量に充填するしかない」ことを示している。ところが、一般にフィラーを30容量%以上充填すると溶融時の粘度が大幅に高まり、成形性がガクンと低下してしまう。靱性も低下する。このことから、フィラーの高充填化は50容量%~60容量%が限界である。

この値が限界であるもう1つの理由は、熱伝導率が指数関数的に増加するので、容量分率が少しバラつくだけで熱伝導率が大きく変化してしまうことだ。熱伝導性樹脂として製造する場合、安定した製品を作りにくい。既存の熱伝導性樹脂の熱伝導率が1ヶタ台にどまっていたのは、こうした理由からだった。

それにもかかわらず、従来の熱伝導性樹脂の開発では、フィラーの熱伝導率や充填量にばかり注目してきた。我々は今回、実はここに落とし穴があるのではないかと考えた。熱

注5) スパイラル・フロー長さの測定には、渦巻き状のキャビティを備える試験金型を用いる。同金型は容易に完全充填できないほど長い流動長を持っており、温度・圧力などを変えながら射出成形し、充填できた長さによって流動性を評価する。

注6) 流動性がそれほど低下しない理由は、後述するように今回、熱伝導性フィラーとして低融点合金を用いたことである。低融点合金は、射出成形時に加熱されたベース樹脂(この場合はPPS)と混合された際に溶けて液状となり、均一に分散する。これが材料全体の粘度を低くしている。表2のSFL値の測定条件は、シリンダ内の樹脂温度が+320、金型の温度は+135、射出圧力は102MPaである。

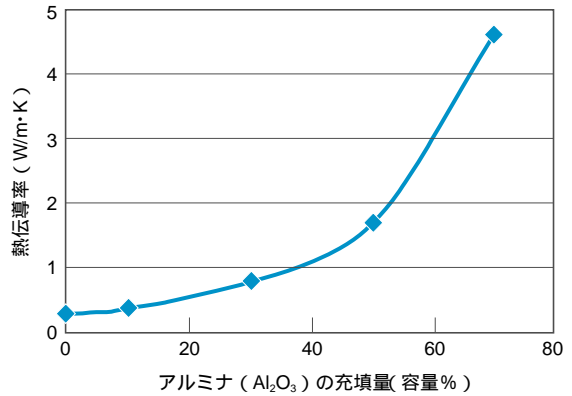
表2 流動性はPPS樹脂と同等

SFL(スパイラル・フロー長さ)値は大きいほど流動性が良好であることを意味する。30W/m・K品の場合、SFLは75mmで従来のPPS樹脂に比べて少し劣るが、ほぼ同等である。強度については、常温の場合、従来のPPS樹脂が140MPaであるのに対し、30W/m・K品は100MPaと低い。従来のPPS樹脂への置き換えには大きな支障はないと考える。電気抵抗を示す体積固有抵抗値はPPS樹脂より今回の樹脂の方が低い。これにより、シールド材や不要な輻射を防ぐ用途への適用も見込める。

項目	単位	今回の熱伝導性樹脂		従来のPPS樹脂		
		10W/m・K品	30W/m・K品			
成形時流動性SFL(スパイラル・フロー長さ)	mm	95	75	80		
比重		2.5	2.8	2		
曲げ	常温時	強度	MPa	130	100	140
		たわみ率	%	0.7	0.6	0.8
		弾性率	GPa	21	23	18
	+80 時	強度	MPa	125	95	135
		たわみ率	%	0.7	0.6	0.9
		弾性率	GPa	17	15	15.5
線膨張係数	流れ方向	×10 ⁻⁵ /K	1.2	1.2	1.4	
	直角方向		2.7	2.6	2.6	
体積固有抵抗	・cm	10 ⁹ オーダ	10 ¹¹ オーダ	10 ¹⁴ オーダ		
熱伝導率	W/m・K	9	25以上	0.2		
UL耐燃焼性		UL94 V0相当	UL94 V0相当	UL94 V0相当		

図6 熱伝導性フィラーを混ぜただけだと成形性が低下する

従来の熱伝導性樹脂でフィラーとして用いられている材料の一つが Al_2O_3 （アルミナ）である。これまでの実験で、50容量%以上のアルミナを樹脂に混ぜることで、熱伝導率が大幅に向上することは分かっていた。しかし、混ぜる量が増えるほど、靱性や強度などの成形性が低下するという副作用があり、熱伝導率を上げるのには限界があった。



伝導率が高いフィラーを多量に混ぜるから副作用が生じてしまう。少ないフィラーの粒子同士を効率良く接触させ、あたかも連続体（ネットワーク）のようにして熱を伝えることができれば、樹脂の熱伝導率を上げられるのではないかと。

そこでまず、熱伝導率の予測式として一般的に用いられるMaxwellの方程式^{注7)}を使い、複合材料における熱伝導率を算出した。これにより、樹脂が連続体を形成してフィラーが島状に点々と分布している場合よりも、フィラーが連続体を形成して樹脂が島状に分布している場合の方が、格段に高い熱伝導率を得られることが予測できた（図7）。これまでの

熱伝導性樹脂の場合、前述の通りフィラーの連続体をあまり形成できず、熱伝導率が上がらなかったが、フィラーを50容量%以上加えてフィラー同士の接触確率が高まると急激に熱伝導率が増加するのである。

「接触確率」を上げる

大阪市立工業研究所では、接触確率を上げて高熱伝導性を得る研究を続けてきた。まず、連続体が形成されやすいフィラーとしてカーボン・ファイバを使い、これをポリエチレンに配合して、熱伝導率の高まり方を調べることにした（図8）。ファイバの長さをファイバの直径で割った値（ L/D ）を算出し、この値

注7) Maxwellの方程式とは、複合材料の熱伝導率を予測するときに使われる基本的な式である。フィラーと母材を区別して熱伝導率を算出する。今回の予測ではフィラー形状は球として計算した。

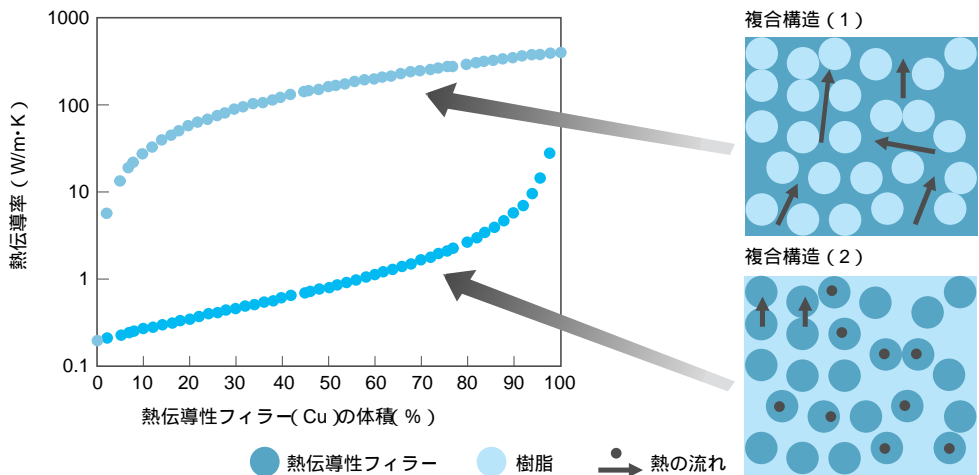


図7 熱の流れを効果的に設ける必要がある

シミュレーションの結果、樹脂中に熱伝導性フィラーを点状させる「複合構造（2）」よりも、フィラー中に樹脂を点状させる「複合構造（1）」の方が熱伝導率が高いことを確認できた。その理由は、複合構造（1）には熱を伝導する通り道（ネットワーク）が形成されているからである。

と混ぜる量を変えた場合、熱伝導率がどのようになるかを測定した¹⁾。この結果、粒子 ($L/D=1$) を溶融配合した場合、30容量%を充填しないと得られなかった熱伝導率が、 L/D の値を21.8にすると15容量%の充填量で得られた。これによって、 L/D が大きいほど、連続体が形成される割合が高まるため、少ない配合量で高い熱伝導率が得られることが分かった^{注8)}。

フィラー同士をつなぐことが熱伝導性の向上に大きく寄与することは実証できた。我々は次に、フィラーの混ぜ方を工夫することで連続体を効率良く形成できるかどうかの検証に入った。具体的には、黒鉛粉のフィラーを用いて、従来のようにフィラーが溶融した状態で樹脂に混ぜる溶融混合法、室温の状態での粉体状態のフィラーを樹脂に混ぜる粉体混合法、フィラーの溶液を混ぜる溶液混合法などによって試験片を作って調べた(図9)。

この結果、粉体混合法で作った試験片の熱伝導率は、溶融混合法の2倍以上になった(15容量%の場合)。しかし、フィラーの充填率をさらに上げると、溶融混合法と同等の熱伝導率に落ちてしまう。樹脂に混ぜる粉体フィラーの量が一定の割合を超えると、粉体の塊ができてしまい、フィラーの連続体が形成されにくくなるからである。

こうした実験結果から、フィラーを単に「混ぜる」という発想では、粉体であれ、溶融したフィラーであれ、一定量以上を混ぜた時点で熱伝導率の上昇に限界があることが分かった。同時に、形成されたネットワーク中のフィラー同士の接触は基本的に点接触であることも課題として浮かび、フィラー同士をつなぐ媒介材料を加えて熱のネットワークを形成する必要があることが明らかになった。

低融点合金が最適だ

フィラーを単に混ぜるのではなく、もっと自然な形でフィラー自体がネットワークを形

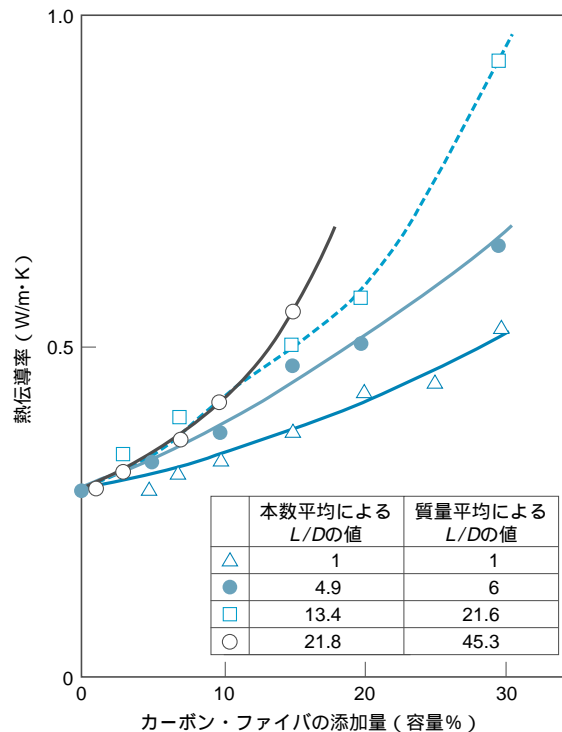


図8 フィラーはある程度の長さを持つ必要がある熱伝導性フィラー同士が、どうすれば連続性を持ちネットワークを形成できるかをカーボン・ファイバを用いて実験した。これにより、 L/D (ファイバの長さ/ファイバの直径)が大きいほど、熱伝導率が大きくなることが分かった。

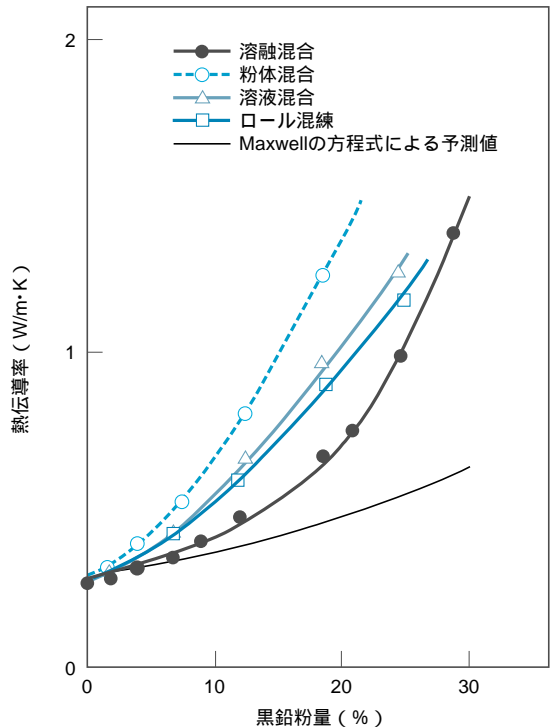
成するような方法はないだろうか。実験を進めた結果、最終的に行き着いたのが熱伝導性フィラーと一緒に低融点合金も添加することだった。

低融点合金は射出成形時にシリンダ内の熱で溶ける。溶けた同合金は、金型内における樹脂の流れによって細く引き伸ばされ、フィラーとフィラーの間を結びながら金型中で樹脂が冷えるのに合わせて固まる。そして緻密な熱伝導ネットワークを樹脂内に形成する(図10)

この発想に基づき、実際に低融点合金を添加した場合、従来の熱伝導性樹脂と熱伝導率にどの程度差が出るのかを測定することにした。ここで困ったのが、熱伝導率の測定方法である。同測定方法としては、種々の方法が提案されており、その方法に応じた多くの測定器が市販されている。ところが、測定法によって熱伝導率の値がかなり異なるのが一般的である。今回の実験でも、市販の高熱伝導性樹脂を手に入れて測定してみると、公称値

注8) ファイバの長さが増すと複合樹脂材料の粘度が非常に増大し、成形性が大きく低下するという副作用が出る。配合量を決める際にはこの点を考慮する必要がある。

図9 「接触確率」が熱伝導性向上のカギ
樹脂中に熱伝導のネットワークを形成するには、熱伝導性材料と樹脂の混ぜ方を工夫する必要がある。ここでカギになるのは、熱伝導性フィラー同士の接触確率である。グラフはポリエチレンの粉末に黒鉛を数種類の混合方法で混ぜて、熱伝導率の高まり方を調べたものである。その結果、ポリエチレンの粉末に黒鉛を粉末の状態混ぜた場合が、最も少ない容量で熱伝導率が高まることが分かった。同様の接触確率は黒鉛の粉末と液状のポリエチレンを混ぜた場合には得られない。



よりも小さい場合があった。

そこで我々は、測定仕様の確立から始めることにした。熱伝導性樹脂に関する論文や特許で見られる熱伝導率の評価方法には、レーザ・フラッシュ法や非定常熱線法、定常熱流計法の3つが多く用いられる。レーザ・フラッシュ法は、金属やセラミックスなど、高い熱伝導率を持つ材料の測定に用いられることが多い。しかし同法の場合、試験片を厚さ

1mm × 直径10mm程度と小さくする必要があり、熱伝導率の測定結果はフィラーの大きさや位置の偏りなどによって影響されやすい。一方、非定常熱線法は厚さ20mm × 長さ150mm × 幅60mmと大きなサンプルを必要とする。さらに、ヒーターとして用いる線材を試験片の間に挟んで通電するため、導電性のある今回のような材料には適用が難しいという問題もある。

そこで今回は、定常熱流計法を使うことにした(図11)。定常熱流計法で通常用いる試験片は、直径50mm、厚さ10mmの円盤である。このサイズであればフィラーは十分に小さく、巨視的に見てほぼ均一な材料として扱える。異方性などの問題も容易に解決できる。

この測定では、試験片の下部を一定の温度に保ち、上部にヒートシンクを配して試験片の下部から上部に熱を流した。こうして定常状態をつくり、下部と上部の温度差と時間当たりに流れる熱量、試験片の厚みから熱伝導率を算出する。

(a)従来品の熱伝導性樹脂(熱伝導率は2W/m·K)(b)今回の熱伝導性樹脂(熱伝導率は25W/m·K)

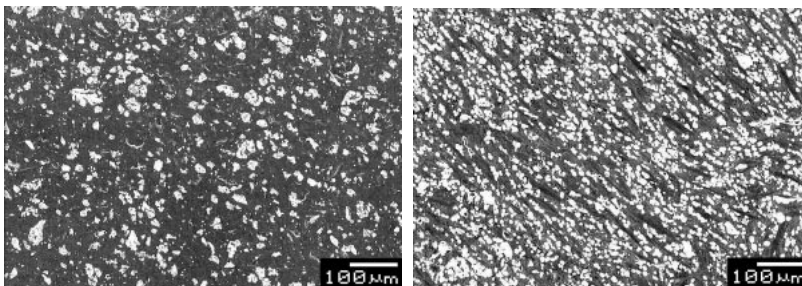


図10 熱の流れの「ネットワーク」をつくった
低融点合金を用いると、射出成形時に合金が溶けるので熱伝導のネットワークを作りやすいことが分かった。(b)が、今回の樹脂を電子顕微鏡で撮影した写真である。(a)の従来品に比べて、線の模様が多いことが分かる。これが、熱を伝えるネットワークである。今回の樹脂では、このネットワークを築いたことで、成形性に支障を来すほどの量のフィラーを混ぜることなく、少ない容量で高い熱伝導性を得ている。

(a) 開発段階の材料における熱伝導率

試料	熱伝導率 (W/m・K)
従来の熱伝導性樹脂と同様の技術	
20容量%BN	0.5
30容量%黒鉛	1
30容量%Cu	0.6
50容量%Al	2.6
低融点合金を利用した技術	
組成A	1.5
組成A + 低融点合金	13.9
組成Aの低融点合金と熱伝導性の充填材をそれぞれ増量	28.5

(b) 熱伝導率の測定方法

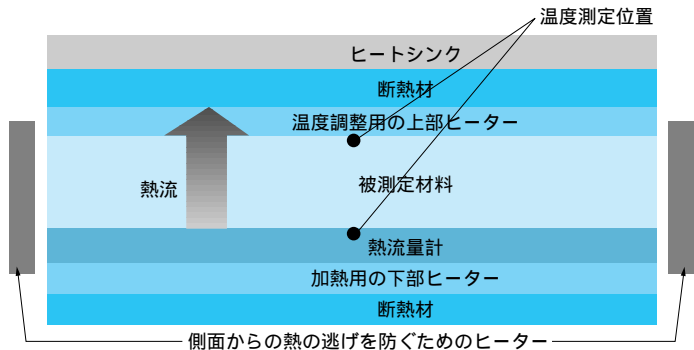


図11 ネットワークの効果を確か

従来のPPS樹脂にBN，黒鉛，Cu，Alをそれぞれ充填しても，いずれも熱伝導率はそれほど上がらない(a)。これに対し，低融点合金を混ぜることでどのくらいの違いが出るのかを(b)のような装置で試した。熱伝導性1.5W/m・KのPPS樹脂に，低融点合金を混ぜたところ，熱伝導率は13.9W/m・Kに上昇した。この樹脂に，さらに従来の熱伝導性樹脂が採用している熱伝導性フィラーを混ぜたところ，熱伝導率は28.5W/m・Kと倍増した。

定常熱流計法により，従来の熱伝導性樹脂で多く用いられる幾つかのフィラーをPPS樹脂に混ぜて熱伝導率を測定したところ，最高でも2.6W/m・Kだった^{※9)}。一方，1.5W/m・Kの熱伝導率を持つ，ある熱伝導樹脂に低融点合金を添加してみたところ，熱伝導率が13.9W/m・Kになり，さらに熱伝導性フィラーを増量した場合，熱伝導率は一気に28.5W/m・Kに上昇した。低融点合金が樹脂内部にネットワーク構造を構築し，フィラーの持つ高熱伝導性を引き出した結果といえる。

コストに合った機能を選ぶ

このように，今回の開発樹脂において，熱伝導性を高められたカギは低融点合金を配合したことにある。熱伝導性のフィラーの量を減らすことができ，成形加工性が上がる。この結果，部品コストが削減できる。

ここで用いた低融点合金は，環境への配慮から最近になって使われ始めたPbフリー・ハンダである(図12)。AgやBiのように手に入りやすく高価な金属を用いた低融点合金もあるが，Pbフリー・ハンダの多くはMgやAl，Cuなど，資源として豊富なものである。これらの合金であれば，量産規模さえ大きくすれば安価に製造できる。

ただし，これらの金属はそれぞれ原料特性

が異なるため，注意が必要な点もある。まず，樹脂と混合することの難しさである。例えば，成形用金型への充填のしやすさを表す1つの尺度である高密度(見かけ密度)[†]は大きいほど充填しやすい。樹脂に混ぜて複合材とした際の流動性を良くするには，流動抵抗を減らすために適度な粒度分布を持つ粉末を使用した方がよい。

低融点合金と樹脂を混合する際は，粉体同士を混ぜる粉体混合法を用いる。その後で，射出成形機に供給する「ペレット」と呼ばれる原料形状に加工する。そのペレット形状にする際，高温のシリンダで押し出し加工を行うが，このときに液状化した低融点合金を均一に混合してネットワーク構造を形成できる設備を用意することも重要である。

PPS樹脂以外にも展開

ここまで述べてきた通り，今回開発した樹脂のベースはPPS樹脂である。しかし，低融点合金を混ぜるという方法自体は，他の樹脂にも展開できる。今後は，耐熱温度やコスト，加工性，成形性などの要求に柔軟に対応するため，他の樹脂への展開も積極的に進める計画である(図13)。

樹脂の耐熱温度とコストは，ほぼ比例関係にある。従って，PPS樹脂で耐熱性が不足す

注9) この時点におけるフィラーの充填量は50容量%。ここまで充填してしまうと，粘度が高過ぎて，一般の射出成形には適さないと考えられる。

†嵩(かさ)密度=容器を粉体で満たしたとき，その内容積を粉体の体積として質量を除いた値。一定の密度を決められない粉体ならではのとらえ方である。

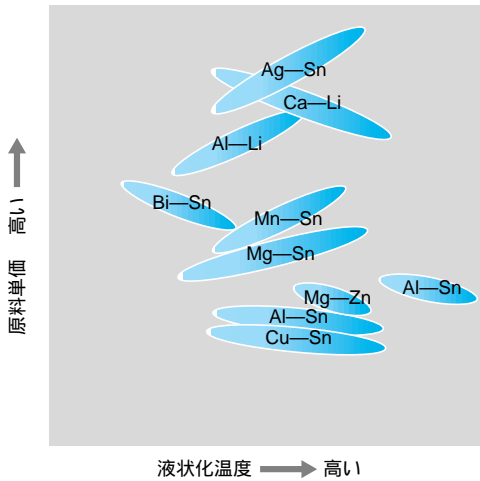


図12 液状化温度と原料コストのバランスで低融点合金を選ぶ
今回の熱伝導性樹脂には一般に「Pbフリー・ハンダ」と呼ばれる材料の一種を用いた。数ある低融点金属の中で、どれを用いるかは液状化温度と原料コストを見て判断する必要がある。母材樹脂に成形温度が高い樹脂を用いる場合、液状化温度が高い合金を選ぶことが望ましい。液状化温度がほぼ同レベルの合金の場合には、原料単価が安いものを選ぶと有利になる。

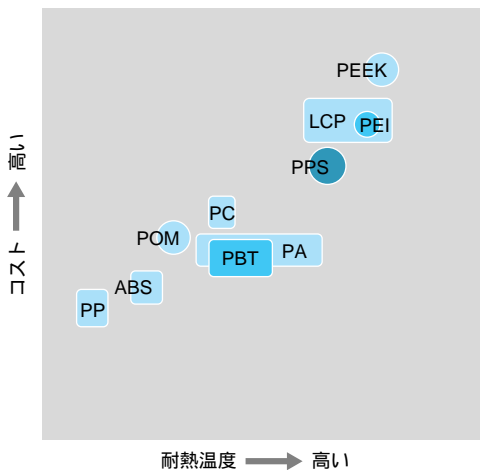


図13 広範囲の応用を見込み、他の樹脂へも展開
今回の樹脂では、ベースにPPS樹脂を用いた。しかし、機器や用途に応じて、既に他の樹脂への展開を求める声も機器メーカーから寄せられている。例えば、ハード・ディスク装置(HDD)がある。温度上昇によって樹脂から発生するガスが不具合の原因になるため、HDDでは筐体や内部にPPS樹脂を用いることができない。このため液晶ポリマ(LCP)やPEEKへの応用を検討中である。耐熱温度だけでなくコストも、今後ほかの樹脂への展開を牽引する要因である。例えばPBTやABSなどは、PPSよりも安価であるため、PPSと同等の耐熱性までは求めない用途での需要が期待できる。

ABS : acrylonitrile butadiene styrene LCP : liquid crystal polymer PA : polyamide
PBT : polybutylene terephthalate PC : polycarbonate PEEK : polyetheretherketone
PEI : polyetherimide POM : polyoxymethylene PP : polypropylene
PPS : polyphenylene sulfide

注10) 分子鎖が規則正しく配列された状態を結晶領域と呼ぶ。この結晶領域の量の比率(結晶化度)が高い樹脂を結晶性樹脂と呼ぶ。主にPPSやPA, PP, POMなどがある。逆に、結晶化状態にならない、または結晶化しても度合いが極めて低い高分子物を非結晶性樹脂と呼ぶ。分子の配列が安定しないため、無定形高分子とも呼ばれる。例えばABS樹脂は非結晶性樹脂である。

る用途に対しては液晶ポリマ(LCP)やPEI, PEEKへの展開が求められると考えている。LCPは極めて流動性が良いため、薄肉成形が求められる用途への展開を期待している。ハード・ディスク装置(HDD)においては、温度上昇によって樹脂から発生するガスが不具合の原因になるため、PPS樹脂が使えない。こうした用途でもLCPやPEEKへの展開が有望である。

PPSより耐熱温度が低くてもよい分野であれば、PAやPBT, ABSといった低コストの樹脂を用いることができる。

電気絶縁性が今後の課題

今回の樹脂は、熱伝導性では大幅な改善が得られたが、低融点合金を用いているため導電性を有している。電気抵抗値を示す体積固有抵抗値は、従来のPPS樹脂よりも格段に小さい。シールド材や電磁波の不要な輻射を防ぐ分野で用途が見込める。

しかし、プリント配線基板の材料など、電氣的な絶縁性と熱伝導性を必要とする分野での需要には対応できない。また、今回の樹脂は硬い。このため、金属やセラミックスの間に挟んでも面的に密着せず、すき間が生じる。既存の放熱シートのように回路基板や素子との密着性が要求される分野では使えない。

さらに封止材料に用いるには熱膨張率が高過ぎるため、フィラーの種類を検討しなくてはならないという課題もある。機械的な強度の面での改良を行えば、高い水圧がかかる熱交換パイプを金属から樹脂に替えられるかもしれない。

他の樹脂への展開を実現する大きなポイントは、低融点合金によるネットワークをいかに形成させるかである。粉末冶金原料や樹脂原料に関する基礎技術を融合させれば、今回の樹脂を開発したほどの時間をかけずに開発を進められると予想している。ただし、今回ベースとして用いたPPS樹脂のような結晶性樹脂注10)よりも非結晶性樹脂の方が溶けたときの流動性が高く、金属等の無機フィラーとの相性も悪いいため複合化の難易度は高そうだ。

難易度の高い技術の壁を乗り越えてこそ付加価値は高くなる。中国などに対抗して、日本国内で生産を継続するため、個別の技術課題を1つずつ克服したい。

参考文献

1) Agari, Y., et al., " Thermal conductivity of a polyethylene filled with disoriented short-cut carbon fibers," J. Appl. Polym. Sci., vol.43, pp. 1117-1124, 1991.
2) Agari, Y., et al., " Thermal conductivities of composites in several types of dispersion systems," J. Appl. Polym. Sci., vol.42, pp. 1665-1669, 1991.