

カーボンナノチューブおよび気相成長炭素繊維を用いた 高熱伝導アルミニウム基複合材料に関する研究

学位論文内容の要旨

コンピュータ機器の放熱は、性能向上へのボトルネックであり、様々な対策がなされてきた。中でも、近年航空機に装備されるコンピュータ機器が増大し、その排熱処理が大きな問題となっている。航空機には、軽量・コンパクト化の要求が非常に強く、これまでは放熱フィンなど放熱構造の検討が行われてきたが、フィンの高密度化は加工性や目詰まりの点からほぼ限界である。放熱材料自体に関しては、ほとんど検討されておらず、未だにアルミニウムが多用されている。一方銅は、アルミニウムより高い熱伝導率を有しているが、銅の比重はアルミニウムの3倍以上であり、軽量化が要求される航空機用材料として採用するのは難しい。

最近になり、熱伝導特性、電気伝導特性、強度特性が著しく優れたカーボンナノチューブ (CNT) や気相成長炭素繊維 (VGCF) が注目を集め、これらを金属や樹脂に分散させ、今までに無い高熱伝導率、電気伝導率、高強度の複合材料の開発が試みられている。高熱伝導性を有する CNT あるいは VGCF と比強度高いアルミニウムを複合化すれば、熱伝導性が高く、強度も充分な材料を開発することが可能であると考えられるが、従来用いられている溶融法による製法では、界面でのアルミニウム・カーバイドの生成が問題となり、その開発は困難であった。

本研究は、CNT や VGCF が持つ優れた特性の一つである高い熱伝導特性に着目し、それらをアルミニウム母材内に分散し複合化することにより、優れた熱伝導特性をもつ新しい複合材料を開発することを目的としている。

第1章では、研究背景、高熱伝導フィラーとしての VGCF や CNT の概略、研究内容および論文構成について述べている。

第2章では、使用した材料、評価方法、評価に用いた装置の詳細について述べ、複合材料の試作に採用した放電プラズマ焼結装置と最適な焼結条件の検討を行い、以下を明らかにした。

- (1) CNT や VGCF をマトリックスであるアルミニウム粉末に分散し、粉末冶金法を用いて製作する手法を採用することとした。
- (2) CNT や VGCF とアルミニウムとを複合化する手法は、本研究においての要である。そこで、CNT や VGCF とマトリックスを効果的に緻密化できる放電プラズマ焼結装置 (SPS) を採用することとした。
- (3) SPS の焼結条件の検討を行った。その結果、真空雰囲気中において加圧力 30MPa で焼結温度 560℃で 1Hr 保持する焼結条件を見出した。

第3章では、CNT だけを含有した複合材料の熱伝導特性に関する実験、および、ナノ・マイクロ熱伝導解析に頻繁に用いられている Nan モデルによる数値解析を行い、以下を明らかにした。

- (4) CNT 含有アルミニウム材料の熱伝導率は、体積含有率が増すにつれ減少する。これは、CNT の分散状態が均一でないこと、また、CNT とアルミニウム母材界面の結合状態に問題があるためと考えられる。
- (5) Nan モデルによる解析から、CNT の配向制御が複合材料の熱伝導特性向上に対して重要であることが具体的に明らかとなった。

第4章では、VGCFのみを含有するアルミニウム複合材料の強度特性、および、熱伝導特性に関する実験とNanモデルによる解析を行い、以下を明らかにした。

(6) VGCFだけを含有した複合材料では、VGCFの体積含有率が増加するに従い熱伝導率が上昇する。ただし、VGCFの体積含有率が10%を超えると熱伝導率の上昇割合が小さくなる。これは、VGCFの含有率が増えるに従い、VGCFとマトリックス界面熱抵抗の影響も上昇するためと考えられる。

(7) Nanモデルにより、CNTを単独で用いたときと同様にVGCFの配向制御が複合材料の熱伝導特性に対して重要であることが明らかとなった。

第5章では、VGCFのみを用いた複合材料に対して、その高密度化とマトリックスとVGCF界面の密着性の向上を試みた。そのために、アルミニウムよりわずかに融点が高いAl-Si共晶合金粉末(Al-12Si)をアルミニウム粉末に加えた混合粉末をマトリックス材とし、焼結中に生じるAl-12Siのわずかな液層による界面状態の改良について検討した。その結果、以下を明らかにした。

(8) アルミニウム粉末単独とアルミニウム粉末にAl-12Siを混合したマトリックスの熱伝導率を比較したところ、Al-12Siを混合したマトリックスの熱伝導率が低いことがわかった。一方、強度に関しては、Al-12Siを加えるとマトリックスの強度は上昇することが明らかとなった。

(9) VGCFをランダムに配向した場合においてはVGCFの体積含有率が10%付近、VGCFをランダムに配向した場合においてはVGCFの体積含有率が15%を超える付近から、Al-12Siを加えたマトリックスによる複合材料の熱伝導率がアルミニウム単独のマトリックスによる複合材料の熱伝導率より高くなる。

(10) Al-12Siを加えたマトリックスを用いた場合は、体積含有率60%のVGCFを一方に配向させた複合材料において、800W/mKを超える極めて高い熱伝導率が確認された。

(11) VGCFを含有した複合材料の強度特性は、マトリックス単体の強度特性と比較して著しく減少し脆化する。これは、VGCFとマトリックスの界面性状に起因すると考えられる。ただし、VGCFを一方に配向することにより、引張り強さの減少量は多少改善される。

第6章では、第5章で試作したVGCF/Al複合材料の更なる熱伝導率向上を試みた。このために、VGCFよりサイズが小さいCNTを複合材料に添加することを考案し、その効果について検討した。その結果、以下を明らかにした。

(12) 有限要素解析によりCNT添加の効果を確認するために、VGCFの半径方向、軸方向をそれぞれ架橋する2種類のVGCF-CNTネットワークモデルによる解析を行った。解析によりCNT添加の効果が確認したと同時に、添加効果は微量のCNTによって生ずることを明らかにした。

(13) 上記の解析結果に基づき、体積含有率で0.2%、0.4%の極微量のCNTを添加したVGCF/Al複合材料を試作した。添加するCNTの体積含有率が0.2%の方が0.4%の場合よりも高い熱伝導率を持つことがわかった。これは、CNTの添加量が多くなるに従い、繭状で塊になるなどで熱伝導率に対して負の影響を与えるCNTの量が増加するためと考えられる。

(14) 複合材料内部でCNTがVGCFを架橋している状態をFE-SEMにより確認した。

(15) 試作した複合材料には、一方配向材およびランダム配向材ともに熱異方性が存在することが明らかとなり、製品開発の際には、熱異方性を考慮した設計が必要であることが分かった。

第7章では、複合材料による実体サンプルを試作し、熱伝導特性の評価を行った。その結果、以下の結論を得た。

(16) 複合材料のアプリケーション対象の拡大のために、複合材料の大型実体サンプルを製作することができた。

(17) 実体サンプルによる加熱試験により、複合材料の熱伝達の優位性を視覚的に確認することができた。

第8章は総括であり、本研究で得られた結果をまとめている。

以上のように本研究では、主フィラーとしてのVGCFに、CNTを補助フィラーとして添加しVGCF間をネットワーク化させたハイブリッドフィラーと、純アルミニウムをベースとするマトリックスとを放電プラズマ焼結(SPS)により複合化することで、著しく高い熱伝導特性を有する複合材料を目的どおり開発することができた。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	佐々木 克 彦
副 査	教 授	成 田 吉 弘
副 査	教 授	但 野 茂
副 査	教 授	中 村 孝

学 位 論 文 題 名

カーボンナノチューブおよび気相成長炭素繊維を用いた 高熱伝導アルミニウム基複合材料に関する研究

最近になり、熱伝導特性、電気伝導特性、強度特性が著しく優れたカーボンナノチューブ (CNT) や気相成長炭素繊維 (VGCF) が注目を集め、これらを金属や樹脂に分散させた今までに無い高熱伝導率、電気伝導率、高強度を有する複合材料の開発が試みられている。本研究は、CNT や VGCF が持つ優れた特性の中の一つである高い熱伝導特性に着目し、それらを比強度の高いアルミニウム母材内に分散し複合化することにより、優れた熱伝導特性と十分な強度をもつ新しい複合材料の開発を目的としている。

このためにまず、高熱伝導フィラーとしての VGCF や CNT の概略を述べ、それらの優れた熱伝導特性を明確にし、複合材料として利用することの有用性を示している。また、複合材料の試作に使用する放電プラズマ焼結装置の加圧力および焼結温度、保持時間などの焼結条件を明確にしている。

最初に CNT のみを用いた複合材料の熱伝導特性に関する実験、および、ナノ・マイクロ熱伝導解析に頻繁に用いられている Nan モデルによる数値解析を行っている。CNT のみを用いた複合材料の熱伝導率は、CNT の体積含有率が増すにつれ減少することを実験的に明らかにし、Nan モデルによる解析からは CNT の配向制御が複合材料の熱伝導特性向上に対して重要であることを具体的に明らかにしている。一方、VGCF のみを含有するアルミニウム複合材料の強度特性、および、熱伝導特性に関する実験と Nan モデルによる解析を行い、VGCF のみを用いた複合材料の場合には、VGCF の体積含有率が増加するに従い熱伝導率が上昇することを明らかにしている。

次に、複合材料の高密度化およびマトリックスと VGCF 界面の密着性向上のために、アルミニウムよりわずかに融点が高い Al-Si 共晶合金粉末 (Al-12Si) をアルミニウム粉末に加えた混合粉末をマトリックス材とし、焼結中に生じる Al-12Si のわずかな液層による界面状態の改良を試みている。これにより、VGCF を一方向に配向した場合においては VGCF の体積含有率が 10% 付近、VGCF をランダムに配向した場合においては VGCF の体積含有率が 15% を超える付近から、混合マトリックスがアルミニウム単独マトリックスに対して優位になることを明らかにしている。最終的に、混合マトリックスに体積含有率 60% の VGCF を一方向に配向させることにより、800W/mK を超える極めて高い熱伝導率を持つ複合材料の開発に成功している。しかしながら、強度に関しては、VGCF を

含有した複合材料の引張強さや破断伸びなどが著しく減少し脆化することを同時に明らかにしている。

さらなる熱伝導率の向上を目指すために、VGCF よりサイズが小さい CNT を添加し、その効果について検討している。このためにまず、VGCF の半径方向、軸方向をそれぞれ架橋する 2 種類の VGCF-CNT ネットワークモデルを用いた有限要素解析を行い、CNT 添加の効果を確認し、同時に添加による熱伝導率の上昇は微量の CNT 添加によって生ずることを明らかにしている。有限要素解析結果に基づき、体積含有率で 0.2%、および 0.4% の極微量の CNT を添加した複合材料を試作し、添加する CNT の体積含有率が 0.2% の方が 0.4% よりも高い熱伝導率になることを確認している。CNT 添加量の多いほうが熱伝導率が減少する理由として、CNT が多くなるに従い、熱伝導率に対して負の影響を与える繭上に固まる CNT の量が増加するたであると FE-SEM 観察により確認している。これと同時に FE-SEM により、複合材料内部で CNT が VGCF を架橋している状態も確認している。また、開発した複合材料には一方向配向材およびランダム配向材ともに熱異方性が存在することを明らかにし、最終的に大型実体サンプルの製作を試み、実体サンプルを用いた加熱試験により、複合材料の熱伝導特性の優位性を視覚的に確認している。

これを要するに、本研究は、CNT や VGCF の高い熱伝導特性に着目し、それらをアルミニウム母材内に分散・複合化し放電プラズマ焼結 (SPS) する複合材料の製作方法を考案し、母材であるアルミニウムの 3 倍以上の熱伝導率を持つ複合材料の開発を行っており、熱効率に優れた機械システム開発の進歩に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。