

氏 名	でん しえりやん DENG XUE LIANG
本籍（国籍）	中華人民共和国
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	工博 第330号
学位授与年月日	令和3年9月24日
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当 課程博士
研究科及び専攻	工学研究科フロンティア物質機能工学専攻
学位論文 題目	異種材料複合体の界面解析とその複合体の熱伝導特性に関する研究
学位審査委員	主査 教授 平原 英俊 副査 教授 大石 好行 副査 准教授 會澤 純雄 副査 准教授 村岡 宏樹

論 文 内 容 の 要 旨

様々の複合材料の特性が界面の特性に依存することは古くから知られており、現在でも界面特性の制御は複合材料工学の分野で非常に重要な位置付けを占めている。特に異種材料複合体の開発および応用するために界面の機械的・化学的特性を解析および理解することが重要である。分子鎖の運動は、異種材料の結合（たとえば、金属とポリマー間の結合）によって形成された複合材料の界面強度、耐久性、および耐食性を決定する上で重要である。接着の理想的な状態は、さまざまな材料の一体化であること、これは、複合材料のさまざまな特性を確保するための鍵である。しかしながら、接着後の結合界面の分子運動の非破壊分析を実行することは困難である。接着後の界面分子運動は、接着の応用や複合材料の分野で非常に重要である。ただし、ほとんどの実験手法では、界面結合分子鎖の移動度に関する情報は提供されていない。

本研究は分子接合剤を用いて、材料表面に化学官能基を付与し、樹脂・ゴムの複合体を創成した。その複合体の接着強度、接着界面の耐水性、耐熱性をはく離試験におけるはく離強さ及びゴム部の破壊形態に及ぼす分子接合剤の影響を明らかにすることを目的として界面分析を行った。樹脂・ゴムの複合体は耐熱試験及び耐水試験後に、原子間力顕微鏡（AFM）と赤外分光法を組み合わせた新しい分光手法である AFM-nanoIR を用いて界面の反応性を解析した。さらに、接合の片側には分子運動がほぼ無いアルミニウム（Al）を使用し、化学結合によりシリコンゴムと Al の接着による複合体を創成し、接着強度におよぼす界面でのシリコンゴムの膨潤性および動的粘弾性を評価することによって界面付近のシリコンゴム分子運動性を解明した。さらに、シリコンゴムと Al の接触方式による熱伝導性と接着剤によ

る接合での熱伝導性そして界面化学結合により創成したシリコンゴムと Al 複合体の化学接合方式による熱伝導特性への影響を評価した。

第一章は、産業界における地球温暖化防止や省エネ問題への対応として、材料の表面界面の研究、複合材料の耐久性、耐食性に影響を与える重要な因子の研究、複合材料の熱的特性の研究などに注力されていることを述べた。熱伝導するための界面において電子・電気機器ではどんなものであっても熱問題が発生する。身近なパソコンや携帯電話は小型で高性能であり、熱の問題は多く存在する。この問題の解決には、大量な熱を効率的に輸送する方法として微細な積層構造で熱の流れを阻害する界面熱抵抗を低減するためのメカニズムの解明とその技術が求められている。軽量複合材料、耐久性や耐食性に優れた複合材料、熱伝導性に優れた複合材料を実現し、省エネルギーや地球温暖化防止の推進に貢献する熱伝導部材の必要性和複合材料の接合界面の問題点および界面特性の解明の重要性を述べ、放熱複合材料の開発において界面の化学特性を明らかにすることが必要であり、熱伝導特性の研究が必要であることを述べた。

第二章は、ポリプロピレン (PP) 樹脂とニトリルブタジエン (NBR) ゴムの複合体を創成した。複合体はドライプロセスで環境負荷の小さい低圧プラズマ処理による表面改質 PP と HNBR の接着特性におよぼす分子接合剤の影響を検討した。複合体の耐熱性および耐水性を評価し、接着界面の化学組成の分析には AFM-nanoIR が有効であることが分かった。

第三章は、シリコンゴムと Al の複合体を創成し、シリコンゴム厚みの影響におよぼすシリコンゴムの機械的特性、膨潤率、架橋密度について検討した。シリコンゴムと Al の接合界面における化学結合は、界面付近のある厚さのシリコンゴムに対してのみ結合効果を発揮し、シリコンゴムの厚さが 0.1mm 以下での複合体の場合には、トルエン溶媒は結合界面に侵入しにくいことがわかった。そして結合界面に侵入しない臨界厚さが存在することを明らかにした。

第四章は、高速大容量の情報を取り扱う電子機器からの発熱は増大することともに、小型・軽量・薄型化の進展で、部品の放熱をいかに効率良く行うかが製品の良し悪しを決めることとなり、まさに熱対策の重要性が増していることを述べた。さらに熱の上昇による性能低下（温度特性による光束低下）や、信頼性（寿命）悪化を避ける為にも放熱に対する十分な配慮が必要であり、発熱・放熱を評価する技術の開発が急務であることを説明した。そしてシリコンゴムと Al 複合体の熱伝導特性におよぼすシリコンゴム添加架橋剤の量とシリコンゴム厚みの影響について検討した。シリコンゴムと Al の接触方式による熱伝導性と接着剤による接合での熱伝導性そして界面化学結合により創成したシリコンゴムと Al 複合体の化学接合方式による熱伝導特性への影響を評価し、化学結合を用いて接合したシリコンゴムと Al 複合体放熱材料はシリコンゴムとヒートシンク (Al) 材料の接触熱抵抗の減少に有効であることを明らかにした。本研究で化学結合により創成したシリコンゴムと Al 複合体は熱伝導に関する環境負荷を改善することが期待される。

第五章は、結論を述べ、本研究の総括を行った。

論文審査結果の要旨

産業界における地球温暖化防止や省エネ問題への対応として、材料の表面界面の研究、複合材料の耐久性、耐食性に影響を与える重要な因子の研究、複合材料の熱的特性の研究などに注力されていることを述べている。熱伝導するための界面において電子・電気機器ではどんなものであっても熱問題が発生する。身近なパソコンや携帯電話は小型で高性能であり、熱の問題は多く存在する。軽量複合材料、耐久性や耐食性に優れた複合材料、熱伝導性に優れた複合材料を実現し、省エネルギーや地球温暖化防止の推進に貢献する熱伝導部材の必要性と複合材料の接合界面の問題点および界面特性の解明の重要性であり、放熱複合材料の開発において界面の化学特性を明らかにすることが必要であり、熱伝導特性の研究が必要である。

本論文は、分子接合技術による放熱材料である熱伝導性異種材料複合体の創成を検討し、その複合体の界面特性と熱伝導特性の解明に関するものである。

化学結合した複合体の接着強度、接着界面の耐水性、耐熱性をはく離試験におけるはく離強さ及びゴム部の破壊形態に及ぼす分子接合剤の影響を明らかにすることを目的として、ポリプロピレン (PP) 樹脂とニトリルブタジエン (HNBR) ゴムの複合体を調製した。複合体はドライプロセスであり環境負荷の小さい低圧プラズマ処理による表面改質した PP と HNBR の接着特性におよぼす分子接合剤の影響について解明している。原子間力顕微鏡 (AFM) と赤外分光法を組み合わせた新しい分光手法である AFM-nanoIR を用いて接合界面の反応性を解析し、複合体の耐熱性および耐水性の接着界面の化学性状分析には AFM-nanoIR が有効であることを明らかにした。

さらに、化学結合によりシリコンゴムとアルミニウム (Al) の複合体を創成し、シリコンゴムの膨潤性および動的粘弾性を評価することによって接着強度におよぼす界面でのシリコンゴム厚さの影響とシリコンゴムの機械的特性、膨潤率、架橋密度の影響について明らかにし、シリコンゴムと Al の接合界面における化学結合は、界面付近のある厚さのシリコンゴムに対してのみ結合効果を発揮し、シリコンゴムの厚さが 0.1 mm 以下での複合体の場合には、トルエン溶媒は結合界面に侵入しにくいこと、そして結合界面に侵入しない臨界厚さが存在することを明らかにした。シリコンゴムと Al が接触方式による放熱材料の熱伝導性、接着剤による接合での熱伝導性、そして界面化学結合により創成したシリコンゴムと Al 複合体の化学接合方式による熱伝導特性への影響を評価することによって、ヒートシンクと放熱材料、および放熱材料と熱源の界面の接触熱抵抗の影響を解明している。シリコンゴムと Al 複合体の熱伝導特性におよぼすシリコンゴム架橋剤添加量とシリコンゴム厚さの影響について検討した。シリコンゴムと Al の接触方式による熱伝導性と接着剤による接合での熱伝導性、そして分子接合剤により界面化学結合させたシリコンゴムと Al 複合体の化学接合方式によって熱伝導特性が異なることを解明し、化学

結合を用いて接合したシリコンゴムと Al 複合体放熱材料はシリコンゴムとヒートシンク (Al) 材料の接触熱抵抗の減少に有効であることを明らかにした。

以上のように、本論文では、分子接合技術によって、異種材料複合体を創成することを可能とした。異種材料複合体の界面近傍において、シリコンゴムの架橋密度が増大し、シリコンゴム分子がより束縛されることを明らかにした。放熱材料であるシリコンゴムとヒートシンクの Al 界面を化学結合することによって、接触熱抵抗の減少に効果があることを解明した。本研究において分子接合技術による界面化学結合の形成が放熱材料創成研究の基礎をなすものであり、電子機器やパワー半導体の関連分野での放熱技術として期待され、実用化できる可能性を見だし、これら研究成果は、学術的かつ工学的に大変重要な意義をなすものである。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認められる。

原著論文名 (1編を記載)

題 目 Interfacial Molecular Motion and Chemical Characteristics of Polymer Jointed to Metal by Chemical Bonding

著者名 Xueliang Deng, Jing Sang, Sumio Aisawa, Katsuhito Mori,
Hidetoshi Hirahara

学術雑誌名 Journal of the Japan Society of Colour Material
(第 94 巻, 6 号, pp.149-157)

発行年月 2021 年 6 月