

6.研究内容及び成果の本文

粘弾性素材における刺激応答型伝熱機能の解明

大阪大学 産業科学研究所

助教 上谷幸治郎

1. はじめに

Society 5.0 に向けて次世代エレクトロニクスや車載電装部品のサイバー連携が進んでおり、省エネと発熱問題を同時に解消するため従来にない熱制御技術が求められている。例えば、従来の伝熱あるいは断熱のみを一義的に行う熱設計ではなく、単一の部材が熱の流れ方を変調させ、断熱昇温と放熱冷却を切り替える可変伝熱性能が重要と考えられる。しかし、バルク規模の材料で可変伝熱性能を発現するためには、大幅な温度変化による相転移や化学反応処理、大変形、磁場の印加など、特殊な外的刺激の入力によって材料の内部構造を大幅に変化させる必要があった。そのため実用に向けては、より単純かつ小さな刺激によって可変伝熱性能を発揮する材料ならびに機構の探索が課題となっていた。

本研究では、内部自由度が高い粘弾性材料に着眼した。金属やセラミックスに代表される従来の伝熱材料は高弾性材料がほとんどであるが、伝熱性を可逆制御するには内部自由度が低いという問題があった。一方、高分子に代表される粘弾性素材は要素界面や分子鎖運動を含む大きな内部自由度を有し、熱の伝搬を可変する余地が高い。特に、最も単純な外的刺激である機械的変位を与えた場合、大きな内部構造の変化を生起可能であり、伝熱挙動を制御できる可能性が高いと考えられた。

これまで筆者らの研究で、天然結晶性高分子であるセルロースナノファイバー (CNF) を高密度集積したフィルム素材「ナノペーパー」が、従来のガラスやプラスチック類の 3~10 倍高い熱伝導率を示すことを見出している^[1]。このナノペーパーは、引張弾性率が約 12 GPa、破断強度が 200 MPa 程度であり、降伏点を~100 MPa に持つ粘弾性材料である。そこで本研究では、伝熱性を有する粘弾性材料としてナノペーパーを用い、機械的な変位を加えながら熱拡散性の変化を実測することで、可変伝熱性能を実証することを目的とした。このとき、一定の変位を保持した場合の応力緩和を解析し、変形モードと伝熱性の変化を対比させることで粘弾性材料特有の熱機能発現を実証することを目指した。

2. 実験結果

2-1. ナノペーパーにおける可変伝熱性能

応力を印加しながら熱拡散率を実測するための融合測定系を構築し、バクテリアセルロース由来のナノペーパーを用いて伝熱性を実測した。その結果、30~40 MPa の応力を印加したとき、引張方向における熱拡散率が有意に 15%程度減少し、除荷すると元の拡散率まで戻ることが観測された^[2]。無応力状態ならびに~30 MPa 印加時のナノペーパーにおける面内方向熱拡散率の測定誤差はいずれも約 2%程度であり、熱拡散率測定 15%の差は有意差と判定できた。また、対照として粘弾性を示さない金属 (鉄・銅) でも同

様の試験を行ったところ、熱拡散率は印加応力に伴ってほとんど変化せず、可変伝熱性能は検出されなかった。また、ナノペーパーのかさ密度を変化させて伝熱変調性を確認したところ、かさ密度の増加とともに変調量が増加した。この結果は、CNF のバルク部分ではなく界面の粘弾性的ダイナミクスによって発現していることを支持している。

2-2. 粘弾性解析と伝熱機能

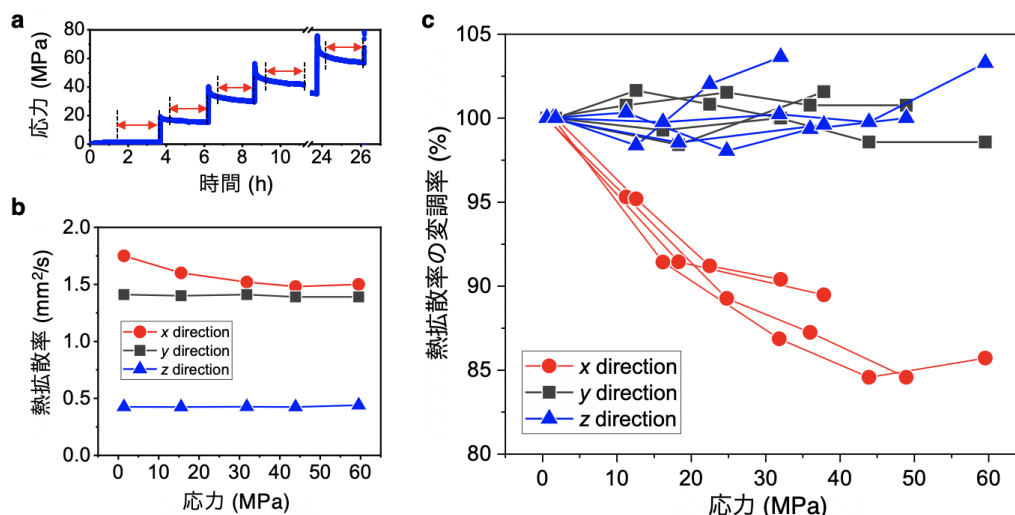


図 1. 段階的応力の印加に伴うナノペーパーの熱拡散率変化。(a) 印加した引張応力、(b) 応力に対する方位別の熱拡散率；x, y, z 方向はそれぞれ引張方向、引張垂直方向、および厚み方向に対応する。(c) ナノペーパー4 試験片における熱拡散率の応力変化。Reproduced from ref. 2 published by The Royal Society of Chemistry, under a Creative Commons Attribution 3.0 Unported Licence.

図 1a に示すように、段階的に応力を印加し、熱拡散率の変化を追跡したところ、引張方向においてのみ顕著に熱拡散率が低下する傾向が観測された (図 1b)。このナノペーパーは CNF が面方向に倒れて集積しているため、x および y 方向で高熱拡散率を示す³⁾。異なる 4 試験片について同様の測定を行った所、いずれも引張方向で熱拡散率が低下し、その傾向は高応力になるにつれて弱まっていった (図 1c)。すなわち、ナノペーパーが弾性変形領域にあるとき伝熱性の低下が直線的であるのに対し、塑性変形領域では変調性が弱まると推測された。

この傾向を理解するため、応力緩和プロファイルを Maxwell モデルで解析することで粘弾性特性を調査した (図 2)。ナノペーパーの応力緩和プロファイルは、緩和時間が 1 種類もしくは 2 種類の Maxwell モデルではうまく近似されなかったが、3 種類の緩和時間を重ね合わせた時に最もよく近似されることが判明した (図 2b)。この緩和時間は、およそ 10 秒、100 秒、1000 秒のスケールであった。階段状の応力を印加した時、印加応力が小さい場合の緩和プロファイルはいずれも 3 種類の緩和時間を持っていたが、応力が 40 MPa 程度を超えた場合、10 秒程度の小さい緩和が消失し、2 種類の緩和時間に収束することがわかった。すなわち、3 種類の緩和時間は弾性変形モードに、2 種類の緩和時間は塑性変形モードにそれぞれ相当し、長時間の応力印加によって降伏点が ~40 MPa 程度の応力で発現したと考えら

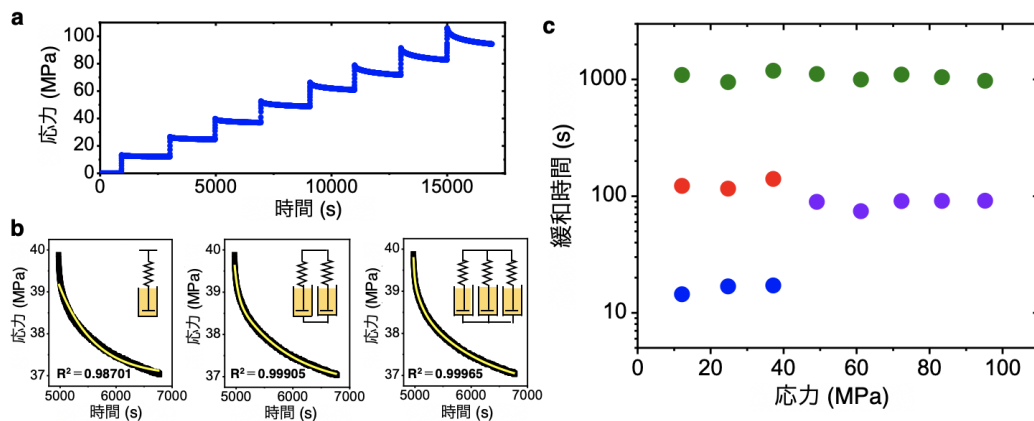


図 2. ナノペーパーの粘弾性解析。(a) 段階的に印加した引張応力、(b) 異なる緩和時間数を持つ Maxwell モデルによる応力緩和プロファイルのフィッティング解析、(c) ナノペーパーにおける平均応力と緩和時間の関係。Reproduced from ref. 2 published by The Royal Society of Chemistry, under a Creative Commons Attribution 3.0 Unported Licence.

れた。この変形モードの違いが熱拡散率の減少傾向に対応していることが判明した。

3. おわりに

本研究では、粘弾性材料セルロースナノペーパーにおいて可変伝熱性能を実証した。粘弾性緩和解析から、材料の変形モードと伝熱性の変動が関係していることを明らかにした。この知見は、セルロースナノペーパーのみならず粘弾性を顕著に示す高分子材料に広く適用可能であると見込まれる。今後、さらに内部自由度が高い高分子系材料に展開し、さらに高機能な伝熱機能を開拓することを見込む。特に、巨視的な形状・状態の変化を伴わずに伝熱機能を発現するには、粘弾性を発現する構成要素界面の合理的設計が特に重要である。また、実用性を見越したとき、絶縁材料によるフォノン性伝熱が重要となることから、高分子系材料は更に重要度が高いと考えられる。無機フィラーとの複合材料や多界面材料において界面制御による内部自由度の向上を目指し、ベースとなる熱伝導性の底上げと可変伝熱性能のより高度な制御性を実現することを目指してゆく。

4. 参考文献

- [1] K. Uetani, K. Hatori, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **2017**, *18*, 877.
- [2] K. Uetani, S. Izakura, H. Koga, M. Nogi, *Nanoscale Adv.* **2020**, *2*, 1024.
- [3] K. Uetani, T. Okada, H. T. Oyama, *Biomacromolecules* **2015**, *16*, 2220; K. Uetani, T. Okada, H. T. Oyama, *ACS Macro Lett.* **2017**, *6*, 345.