

フジシール財団 研究助成事業
成果報告書

公益財団法人フジシール財団
理事長 岡崎 裕夫 殿

報告日 2021年 4月 19日

研究課題	4D エレクトロニクスを開拓する複合材料パッケージの創出	助成金額
		300 万円
ふりがな	うえたに こうじろう	研究助成申請年度
研究者氏名	上谷 幸治郎	2019 年度 ・ 2020 年度
所属機関	大阪大学 産業科学研究所	研究期間
		1 年
役 職	助教	
連絡先	〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8-1 TEL 06 (6879) 8442 E-mail uetani@eco.sanken.osaka-u.ac.jp	

下記の通り、研究成果を報告いたします。

記

1. 研究成果の概要（こちらに報告いただいた内容はそのまま当財団ホームページ上で公開します。）

次世代エレクトロニクスにおいて、筐体や基材を含むパッケージ材料は機能・意匠を規定するだけでなく、設計自由度を決定する重要な要素でもある。中でも、正常な動作や安全性を確保するための放熱機構の重要性が年々増加し、パッケージ全体で放熱を行いながら多機能をスマートに発現する高い自由度が要求される。放熱システムは、流体を対流させて放熱する対流システムと、筐体や基材に伝導伝熱させる熱拡散システムの2種類に大別できる。前者は、熱源をヒートシンクに接続することで高い冷却性能が得られる手法だが、熱界面材料(TIM)など追加の部材が必要で、部材が高高くなり薄型化やフレキシブル化が困難となる。一方、後者の手法は部材を薄型・フレキシブル化が可能であるが、従来多用されるプラスチック素材は熱伝導率が低く、放熱性を上げるためには高熱伝導化や大面積化が必要となる。これら一長一短のある2手法はこれまで個別に活用されているが、放熱性と機能性の向上に向けて両者が融合されたことは無かった。

一方、近年では時空間的なダイナミズムを発現する4Dエレクトロニクスへの展開が期待され、ソーラートラッキング性を持つ太陽電池 (Lamoureux, A. *et al. Nat. Commun.* **2015**, *6*, 8092) や間隔可変の回折格子 (Xu, L. *et al. ACS Nano* **2016**, *10*, 6156) などの開発例が見られる。工学分野における4D化を可能にするのが、伝統工芸技法の「切り紙」技術である。薄いフィルム素材に周期的な切れ込みを加工した切り紙は、2D構造を3Dあるいは4Dに拡張する技術として広い分野で活用される。本研究は、切り紙の周期空隙構造が熱拡散長を短縮し、同時にヒートシンクのフィン構造と同様に対流空気の通り道として有効ではないか、と初めて着眼した。加えて、プラスチックフィルムより高い熱伝導性が見出されたセルロースナノファイバー(CNF)フィルムをパッケージ素材とすることで、熱拡散冷却の効果も同時に発現させることが期待された。そこで、次世代型の薄型エレクトロニクスの放熱機能向上に向けて、フィルム状パッケージの熱拡散冷却と切り紙加工に基づく対流冷却の融合による放熱効果を解明し、エレクトロニクスへの実装に関する取り組みを推進した。

切り紙加工による放熱効果と 4D 機能を実証するエレクトロニクスとして、分散型無機電界発光 (EL) 素子を用いた。分散型 EL は硫化亜鉛等の蛍光粒子をフィルム基材上に印刷塗工して作製されるプリンタブルエレクトロニクス的一种で、高い耐候性とフレキシブル性を持ち、封止不要という特長がある。そこで、(1) CNF フィルムを基材とした分散型 EL の性能向上性と切り紙パッケージに向けた複合材料化、および (2) 切り紙パッケージを用いた分散型 EL の放熱性能向上と多機能性の実証、の 2 項目について詳細に検討した。

(1) に関して、ボトムエミッション構造の分散型 EL の輝度向上因子を解明するため、基材の透明性と表面粗さの効果を検討した。トレーシング紙、ポリエチレンナフタレート (PEN) フィルム、市販の CNF フィルム、木材由来の TEMPO 触媒酸化 CNF フィルムの 4 種類のパッケージ材料を用いて分散型 EL を形成した。得られた EL の輝度は、フィルムの二乗平均面粗さ (RMS) に反比例し、EL の最大発光波長である 490 nm での透過率に正比例することが判明した。フィルムの表面粗さは電極間距離に影響し、電界強度に部位差を生む要因となっていることが推察された。最も透明かつ平滑な TEMPO 触媒酸化 CNF フィルムを用いると、1 kHz で 300 V を印加した場合 641 cd/cm^2 の輝度が得られた (発表論文 1)。切り紙への展開に向けて、CNF フィルムへの紙力増強剤添加による引き裂き強度向上と伝熱性の関係を検討した。ポリアクリルアミド系紙力増強剤を CNF フィルムに添加すると、従来知見の通り引張強度および弾性率が上昇し、補強効果が確認されたが、一方で引き裂き強度は低下した。破断面の解析から、紙力増強剤の繊維間接着によりフィルム層間の剥離が抑制され、亀裂が進展しやすいことが判明した。また、紙力増強剤の添加によりフィルム厚み方向の熱拡散率は上昇したが、面内方向には低下することが明らかとなった。従って、複合材料化しない CNF フィルムが切り紙パッケージとして最適であると結論された。

(2) に関して、熱伝導性の高いことが知られるホヤ由来の TEMPO 触媒酸化 CNF フィルムをパッケージとして分散型 EL を形成し、発熱状態を確認したところ、1.2 kHz で 165 V を印加したとき約 73.5°C まで昇温することが判明した (図 1a および b)。この強い発熱が分散型 EL の活用性を狭める一因となっている。そこで、切込間隔 3 mm の網飾りパターンを施すことで切り紙 EL を形成した (図 1c) 電極がパーコレーションする限り蛍光粒子に電界が印加し、発光可能となる。約 1.3 倍に延伸させた切り紙 EL に風速 3.0 m/s の強制対流を当てた所、 34.7°C まで大幅に冷却された (図 1d)。柔軟性や薄型性を失わずに、デバイスを冷却することに成功した。加えて、切り紙加工により初めて発現する機能として発光照射角範囲の制御性が見出された。本来、分散型 EL に光軸指向性はほとんど無いが、切り紙の延伸によりデバイス面が傾斜するため、延伸比に応じて照射角範囲をダイナミックに制御できる 4D 性を実証した (図 1e)。

切り紙による放熱性の機構を解明するため、CNF フィルム単体にグラファイトスプレーで形成した $1 \times 1 \text{ cm}^2$ の黒化部を疑似熱源とし、ソーラーシミュレーターを用いた白色光照射による光熱変換で発生した熱の放熱性能を詳細に検証した。 0.56 W の発熱により、切り紙未加工の CNF フィルムでは自然対流下で 152°C まで温度上昇が起こった。一方、切込間隔 2 mm の切り紙を加工した CNF フィルムを 1.43 倍に延伸した場合、自然対流では 124°C に低下し、さらに 3.0 m/s の強制対流下では 50.3°C まで冷却される

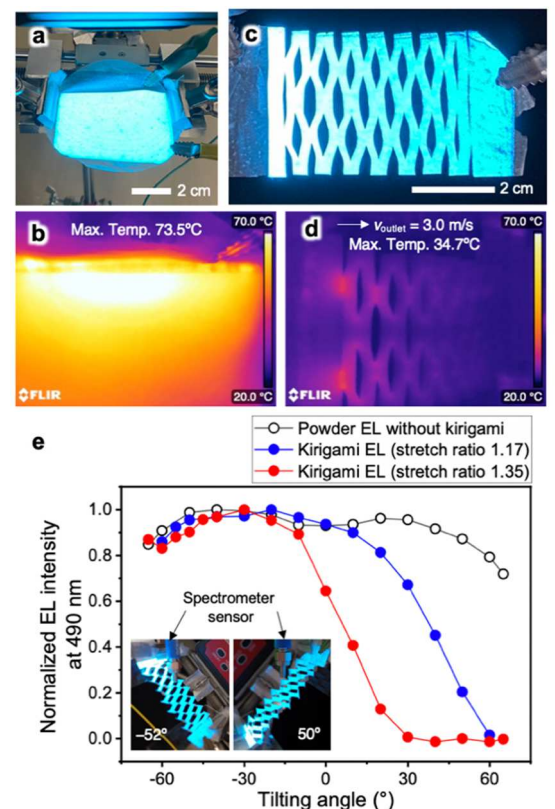


図 1. 切り紙パッケージによる分散型 EL デバイス。切り紙未加工での発光(a)および発熱 (b)の状態。切り紙加工後の発光(c)および対流下の発熱状態(d)。切り紙により発現する発光照射角範囲の制御性。

ことが判明した。切り紙加工と対流によって、CNF フィルムから空気への熱の移動性を表す熱伝達率が約 5 倍に向上した。特に、熱伝達率は切り紙を通過した直後の出口風速に影響を受け、出口風速は切り紙の延伸に伴う開口距離によって制御されることが判明した。切り紙近傍に形成される速度境界層の厚さより開口距離が小さい場合、風速は開口距離に比例して制限された。さらに、フィルムの熱伝導率が切り紙による放熱性に与える効果を調べるため、ポリイミドフィルムとステンレススチール (SUS-304)、ニッケル、アルミニウム、銅の金属箔を切り紙加工し、発熱量 0.56 W および 3.0 m/s の対流下で放熱試験を実施した。従来のヒートシンクと同様に高熱伝導性材料ほど冷却性が高く、銅箔で 30.3°C まで冷却されたが、最も低熱伝導性のポリイミドフィルムでも 53.3°C まで冷却することが確認された。金属箔のような導電性で不透明なフィルム材料は、熱伝導率が高くても電子機器パッケージとして使用困難な一方で、絶縁性で半透明な高分子フィルムは、熱伝導率が低いために十分な放熱が困難だった。本研究の切り紙パッケージによる放熱機構は、この材料学的ジレンマを克服し、熱伝導率の低い高分子系フィルムでも、実用に耐えうる高い放熱性を実現することを実証した。

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性 (こちらに報告いただいた内容はそのまま当財団ホームページ上で公開します。)

本研究で実証した切り紙フィルム・パッケージに基づく新しい放熱手段は、エレクトロニクス設計をこれまで以上に柔軟にするとともに、熱伝導率に関わらず既存のあらゆるフィルム材料を用いて放熱を可能にする新たな道筋を開くものである。同時に、強靱・伝熱性パッケージ素材として CNF フィルムの有効性を実証したことで、近年産業化が著しいバイオマス素材 CNF を活用した新規放熱パッケージ産業の開拓に資すると期待される。CNF は熱伝導性や高強度のみならず、透明性・光学異方性や低熱膨張性・軽量柔軟性など結晶性繊維に由来した有用な基礎物性を併せ持つことから、CNF の集積構造と切り紙パッケージ構造を融合設計することで、さらに斬新な高・多機能が発現可能と見込まれる。

他方、本研究は、パッケージが駆動源となりエレクトロニクスの新たな可能性を開拓する試みを実証した。分散型 EL デバイスは「光る紙」などとして既に市販されるが、CNF 切り紙パッケージと融合実装することで有機 EL や LED に発現不可能な新しい価値を創発する。また、分散型 EL の輝度向上に対する基材特性の効果を解明し、高性能化に向けた指針を確立した。これらの知見は、単に「cool に光る紙」の開発に留まらず、従来光源では不可能だった「自在に切り刻めるパッケージ」という新しい付加価値によって、照明・光源の概念を覆し、きめ細やかな照明・ディスプレイサービスへと昇華する可能性を持っている。すなわち、パッケージとエレクトロニクスの新たな領域融合によって新産業の創出が期待される。

3. 学会発表、学会誌等への論文掲載、産業財産権出願などの実績 (現時点で未発表・未掲載・未出願のため、上記「1. 研究成果の概要」、「2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性」の当財団ホームページ上の公開の延期を希望される場合、その旨 記載してください。)

【学会発表】

1. 渡部陸矢、竹田直樹、春谷慶太郎、高橋宏輔、上谷幸治郎、常安翔太、佐藤利文「高輝度化を可能とする分散型 EL ペーパーデバイスの実現」第 68 回応用物理学会春季学術講演会、19p-Z26-9、Zoom、2021 年 3 月 19 日

【論文掲載】

1. Tsuneyasu, S., Watanabe, R., Takeda, N., Uetani, K. et al. "Enhancement of Luminance in Powder Electroluminescent Devices by Substrates of Smooth and Transparent Cellulose Nanofiber Films" *Nanomaterials* **2021**, *11*(3), 697.

2. 本成果の後半(2)に該当する成果を学術誌へ論文投稿中であり、「1. 研究成果の概要」ならびに「2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性」のホームページ上での公開は、当論文が採択されるまで延期頂きますようお願い申し上げます。(■2022 年 6 月公開確認済み)