

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4957982号  
(P4957982)

(45) 発行日 平成24年6月20日 (2012. 6. 20)

(24) 登録日 平成24年3月30日 (2012. 3. 30)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 M 8/06 (2006. 01)

H O 1 M 8/06 W

H O 1 L 23/36 (2006. 01)

H O 1 L 23/36 Z

H O 1 M 8/04 (2006. 01)

H O 1 M 8/04 T

請求項の数 5 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2005-134699 (P2005-134699)  
(22) 出願日 平成17年5月6日 (2005. 5. 6)  
(65) 公開番号 特開2006-313648 (P2006-313648A)  
(43) 公開日 平成18年11月16日 (2006. 11. 16)  
審査請求日 平成20年4月14日 (2008. 4. 14)

(73) 特許権者 000005083  
日立金属株式会社  
東京都港区芝浦一丁目2番1号  
(72) 発明者 伊達 賢治  
島根県安来市安来町2107番地2 日立  
金属株式会社 冶金研究所内

審査官 浅井 雅弘

(56) 参考文献 特開2005-029806 (JP, A)  
)  
特開2004-183055 (JP, A)  
)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多孔質放熱部材およびその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

空孔の周囲に金属粉末が焼結した骨格を有する多孔質焼結体からなる多孔質放熱部材であって、骨格部は、平均細孔径が200 μm以下の細孔を有し、焼結前の成形体中に混合した樹脂粒を溶剤除去して確保した空孔は、平均空孔径が3000 μm以下であり、多孔質体全体の空隙率が60体積%以上、95体積%以下であることを特徴とする多孔質放熱部材。

【請求項 2】

骨格部は、細孔径が5～50 μmの細孔を有し、空孔径は100～2000 μmであり、多孔質体全体の空隙率が70体積%以上、90体積%以下であることを特徴とする請求項

10

【請求項 3】

骨格は、ステンレス、チタン、チタン合金のいずれかの粉末が焼結してなることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の多孔質放熱部材。

【請求項 4】

直接メタノール型燃料電池に使用することを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の多孔質放熱部材。

【請求項 5】

請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載の多孔質放熱部材の製造方法であって、該放熱部材の空孔は、その焼結前の成形体中に混合した樹脂粒を溶剤除去して確保することを特徴とす

20

る多孔質放熱部材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、水等の液体に対し吸収力を有し、さらにその液体が蒸発する時の吸熱反応により、冷却対象から熱を効率良く伝達して、熱を奪うことが可能な多孔質放熱部材およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

半導体関連では、熱伝導の高い金属やセラミックスのプレートが放熱部材として使われている。また、直接メタノール型燃料電池（以下、DMFCと略す。）においても冷却の問題があり、膜電極接合体（以下、MEAと略す。）の空気極のような、水分の排出と通気性が同時に必要とされる部位においては、必要に応じた大きさや間隔でスリットや孔をあけた金属プレートが、集電板を兼ねて使用される場合がある。しかし、高出力で使用する場合、空気極に多量の水が生成すると、通気用のスリットまたは孔を塞ぎ、空気極への空気の供給を阻害して出力が落ちるといった問題がある。そして、冷却が不十分なため加熱し、モバイル機器に適用した場合の火傷や、ノートパソコンの液晶ディスプレイの背面にMEAを配した場合だと、液晶ディスプレイが加熱され、画像の変色等の不具合の発生が予想される。

【0003】

上記の生成水の回収については、スポンジや繊維基材等の多孔質体を用いる提案がなされている（例えば、特許文献1参照）。

【特許文献1】特開2003-36866号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

スポンジや繊維基材等の多孔質体は、液体に接触させると毛管現象により、空気極上の生成水の回収は可能である。しかし、吸収後の多孔質体内部の水を蒸発させるには、MEAで発生する熱を利用するところ、それを伝えるための多孔質体自体の熱伝導特性が不十分であり、返って熱容量の大きな水を多孔質体内に蓄積することにより、冷却能が悪くなる可能性がある。また、それ自体も強度が低いために膨潤し、通気性も阻害して、発電効率が落ちることになる。

【0005】

上述した通り、例えばDMFCの場合、従来の金属板による熱拡散のみでの冷却ではMEAの冷却が十分では無く、持ち運びや周辺機器への障害の問題がある。さらに、空気極上での水の生成により、通気性が阻害されるという問題がある。

【0006】

本発明の目的は、液体に対して毛管現象による強い吸収力をもち、同時に、吸収した液体を効率よく蒸発させて、蒸発時の周囲からの抜熱を利用することにより、より強力な冷却能をもつ多孔質放熱部材を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者は、多孔質体を検討した結果、単純な焼結構造ではなく、空孔の周囲に金属粉末が焼結した骨格を有する金属多孔質焼結体により、上記の課題を解決するに至った。

【0008】

すなわち本発明は、空孔の周囲に金属粉末が焼結した骨格を有する多孔質焼結体からなる多孔質放熱部材である。そして、骨格部は、平均細孔径が200μm以下の細孔を有し、焼結前の成形体中に混合した樹脂粒を溶剤除去して確保した空孔は、平均空孔径が3000μm以下であり、多孔質体全体の空隙率は、60体積%以上、95体積%以下とする。好ましくは、骨格部は、細孔径が5～50μmの細孔を有し、空孔径は100～200

10

20

30

40

50

0  $\mu\text{m}$ であり、多孔質体全体の空隙率が70体積%以上、90体積%以下とする。

更に好ましくは、骨格は、ステンレス、チタン、チタン合金のいずれかの粉末が焼結してなり、あるいはさらに、これらの多孔質放熱部材が、直接メタノール型燃料電池に使用されることである。

そして、本発明の多孔質放熱部材の製造方法は、該放熱部材の空孔が、その焼結前の成形体中に混合した樹脂粒を溶剤除去して確保されるものである。

【発明の効果】

【0009】

本発明により、毛管現象による液体の吸収力を持つと同時に、冷却の対象物から多孔質体の骨格に伝わってきた熱により、多孔質体内の液体を効率的に蒸発させることができるから、高い冷却能をもつ多孔質放熱部材の提供が可能である。また、その結果として、周囲の液体を揮発除去することもできる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0010】

本発明の重要な特徴は、液体の吸収、蒸発のために、空孔の周囲に金属粉末が焼結した骨格を有する焼結多孔質体を適用した点にある。すなわち、空孔の周りを金属粉末による焼結部が取り囲む構造とすることで、細孔を有した焼結部が近傍の液体を吸上げるとともに熱伝達をも担うことから、液体を効率よく気化し、高い冷却能を得ようというものである。

【0011】

つまり、空孔の周囲に金属粉末が焼結した骨格を形成することで、まず骨格部の細孔による毛管現象にて液体が吸収され、多孔質体中に広げられる。これにより、骨格と液体の接触面積を大きく確保できることに加えて、多孔質体内の空孔により確保された空間により、その液体の蒸発効率に大きく作用する外気との界面も大きくすることができる。そして、骨格は金属製であることから熱伝導率が高く、冷却対象（例えば、MEA）から骨格内に広がった液体へと熱を効率良く伝達することでき、また、上記空孔により、液体と外気との界面、すなわち蒸発サイトの面積も大きいため、効率的に液体を蒸発させることが可能である。液体が気化する時は、周囲より気化熱を奪うために、多孔質体は冷却され、冷却対象から熱を奪うというものである。

【0012】

本発明の多孔質放熱部材は、特には、モバイル用、車載用等のDMFCの空気極の放熱部材を想定していることから、耐振動性、耐衝撃性の向上のため金属製の骨格とし、原料に金属粉末を採用する。また、金属材料は、一般に液体との濡れ性が良く、熱伝導性も高いため、気化熱を利用した放熱部材として好適と考えられるが、その金属種は、対応する環境ごとに、影響を受け難い材質を選択することが有効である。しかも、金属の導電性を利用して、集電板や電極としての機能を同時に持たせることも可能である。

【0013】

なお、本発明の多孔質放熱部材をDMFCへ使用する場合、上述の空気極以外には、燃料極への燃料輸送・供給材として使っても、樹脂製のスポンジ状の多孔質体や繊維より伝熱性が高いため、MEAの熱を燃料極側から筐体へ効率よく逃すことが期待できる。したがって、MEAの空気極と燃料極の両極に、本発明の多孔質部材を配置することで、より高い冷却能が得られる。また、優れた導電性を利用することで、両極の集電体として同時に機能させることも可能である。

【0014】

そして、本発明の多孔質放熱部材は、骨格部の平均細孔径が200  $\mu\text{m}$ 以下である。これは、骨格部の毛管現象による十分な液体の吸上げ力を確保するためである。また、上記の骨格部が囲んで形成する空孔の平均直径は、3000  $\mu\text{m}$ 以下である。この空孔は、上述の通気および蒸発サイトとして作用するところ、その径があまり大きくなると、冷却対象と接触させた場合に、冷却（つまり、液体の吸上げ気化）に寄与しない大きな空孔が接触部に疎らに存在するため、均一な冷却が難しくなるという問題があるためである。

## 【 0 0 1 5 】

多孔質体全体の空隙率は、体積率で 6 0 % 以上、9 5 % 以下である。これは、液体が気化した後の、ガスの放出経路を確保するためであり、空孔を増やして空隙率を高くした方が、多孔質体内の通気性がよくなり、液体の蒸発が促されるためである。また、例えば D M F C の空気極側に用いれば、骨格部が生成水を吸収した状態でも、反応に必要な十分量の空気を供給するために、空孔の連通性のある程度上げて、外部からの空気を M E A の空気極へ導く経路を確保する必要がある。このためには、多孔質全体の空隙率を 6 0 % 以上とする。しかしながら、多孔質体自身の強度確保および、十分な液体の吸収力と熱伝導性を確保するためには、骨格部の体積率も確保しておく必要があり、多孔質全体の空隙率は 9 5 % 以下にする。

10

## 【 0 0 1 6 】

本発明の多孔質放熱部材に、より好ましい形態としては、骨格を形成する焼結体は平均粒径 1 0 0  $\mu\text{m}$  以下の粉末の焼結骨格とし、骨格の有する細孔径は 5 ~ 5 0  $\mu\text{m}$ 、骨格が囲んで形成する空孔部分の径は 1 0 0 ~ 2 0 0 0  $\mu\text{m}$ 、そして、多孔質体全体の空隙率は 7 0 ~ 9 0 体積% とすることが好ましい。

## 【 0 0 1 7 】

本発明に適用する多孔質体の製造方法としては、例えば次の方法が適用できる。

まず、金属粉末を準備する。金属粉末は、できるだけ熱伝導の高いものが良いが、使用時に接触する液体によっては、耐食性に優れるステンレスやチタンおよび、チタン合金等が有効である。金属粉末の粒径としては、平均粒径 2 0 0  $\mu\text{m}$  以下、更には 1 0 0  $\mu\text{m}$  以下が好ましい。

20

## 【 0 0 1 8 】

次に、この金属粉末に樹脂粒とバインダを混合して、混練し、混練体を作製する。樹脂粒は、空孔を確保するために、平均粒径 1 0 0 ~ 3 0 0 0  $\mu\text{m}$  のものが好ましい。バインダは、樹脂を用いることもできるが、次工程である、溶剤で樹脂粒を除去するという効果的な方法を適用する場合は、溶剤に解け合わない、例えばメチルセルロースと水を主成分とするバインダを使用することが有効である。

## 【 0 0 1 9 】

次いで、上記の混練体を成形して、成形体を作製し、加熱脱脂、焼結する。バインダに水を入れる場合には、成形後に乾燥工程を入れることが好ましく、樹脂粒を溶剤で除去する場合は、加熱脱脂の前に、溶剤による樹脂粒の抽出と、乾燥の工程を付与することが好ましい。また、液体吸収後も多孔質体に高い通気性を確保するためには、成形体中に占める樹脂粒の体積率を、その樹脂粒のタップ密度以上に設定し、成形時に樹脂粒が潰れない範囲で加圧して、樹脂粒同士の接触頻度、接触面積を確保することが好ましい。

30

## 【 実施例 】

## 【 0 0 2 0 】

( 多孔質放熱部材の作製 )

平均粒径 6 0  $\mu\text{m}$  の S U S 3 1 6 L 水アトマイズ粉末、市販のメチルセルロース、および樹脂粒として、球状の平均粒径 1 0 0 0  $\mu\text{m}$  と 1 8 0  $\mu\text{m}$  の、2 種のパラフィンワックス粒を混合し、水、可塑剤を加えて混合・混練し、混練体を作製した。なお、樹脂粒の混合量は、金属粉末と樹脂粒を合わせた体積を 1 0 0 % とした時の、平均粒径 1 0 0 0  $\mu\text{m}$  と 1 8 0  $\mu\text{m}$  の 2 種の樹脂粒の、それぞれ体積率が、8 0 % および 1 0 % になるように設定した。

40

## 【 0 0 2 1 】

その後、混練体をプレス成形機 ( 荷重 0 . 7 M P a ) により  $\phi$  1 8 0 m m  $\times$  4 m m 厚さの円盤状に成形した後、この成形体を 5 0  $^{\circ}\text{C}$  で乾燥した。次に、この成形体中のパラフィンワックス粒を、溶剤にて抽出し、7 0  $^{\circ}\text{C}$  で乾燥を行なった。続いて、脱脂炉にて、窒素雰囲気中、4 0  $^{\circ}\text{C}$  / h で昇温し、6 0 0  $^{\circ}\text{C}$  で 2 時間保持して、残留したパラフィンワックスおよびバインダの分解気散を行なった。そして、焼結炉にて、水素雰囲気中、1 2 0 0  $^{\circ}\text{C}$  で 2 h 保持して、焼結を行い、厚さ 3 m m の多孔質焼結体の円盤を得た。

50

## 【 0 0 2 2 】

得られた多孔質焼結体の断面ミクロ写真を図 1 に示す。白色部が骨格を成す金属部分であり、暗色部は空孔および骨格部の細孔を形成する空隙である。水銀圧入法により骨格部の平均細孔径を測定したところ  $65.7 \mu\text{m}$  であった。また、平均粒径  $1000 \mu\text{m}$  のパラフィンワックス粒により導入された空孔の平均空孔径は、断面ミクロ写真より  $650 \mu\text{m}$  であった。また、多孔質体全体の空隙率は、 $86.7\%$  であった。さらに、断面ミクロ写真より、これらの空孔は連通していることが確認でき、また、多孔質体を透かし見た場合でも、光を透過する微細な孔が確認されることから、十分な通気性が確保されていることもわかる。

## 【 0 0 2 3 】

( 多孔質放熱部材の評価 )

## ( 1 ) 液体吸収能力

作製した円盤から  $105 \times 20 \times 3 \text{ (mm)}$  の多孔質体を用意して、エタノールで 10 分間超音波洗浄後、乾燥させた。次に、図 2 に示す電子秤に吊るして、その多孔質体の下端  $10 \text{ mm}$  を純水中に浸漬させた。そして、浸漬後の電子秤から得られる多孔質体の質量の増加分を、その多孔質体が吸収した純水量と定義した。なお、吊るした多孔質体は、それからの水の蒸発の影響を排除するため、ケースで覆われている。

## 【 0 0 2 4 】

図 3 に、浸漬時からの経過時間に対する、多孔質体の単位断面積当たりの純水の吸収量の推移を示す。浸漬時からの時間の経過に従って、純水が多孔質体に吸収されていく様子がわかり、本実施例では、約  $3.3 \text{ (g/cm}^2\text{)}$  の純水吸収能力を示した。

## 【 0 0 2 5 】

## ( 2 ) 放熱 ( 冷却 ) 能力

図 4 に示す通りの、端部にスポット溶接で熱電対を点接した  $40 \times 40 \times 1 \text{ (mm)}$  の SUS 304 の板を 2 枚用意し、電熱器の上に置いた。そのうちの 1 枚は標準体として上には何も載せず、もう 1 枚を試験体とすることで、その上には表 1 の各条件の物質 ( 作製した多孔質体 ) を載せた。条件 4 の場合は、水滴を直接、試験体に載せた ( 図 5 )。そして、この標準体と試験体を電熱器で同時に加熱して、標準体の温度に対する試験体の温度降下から、各条件における冷却能を評価した。

## 【 0 0 2 6 】

## 【 表 1 】

| 条件 | 試験体に載せるもの              |
|----|------------------------|
| 1  | 乾燥した多孔質焼結体             |
| 2  | 純水を 0.40g 染み込ませた多孔質焼結体 |
| 3  | 純水を 0.71g 染み込ませた多孔質焼結体 |
| 4  | 0.71g の純水の水滴           |

※使用した多孔質体寸法： $40 \times 35 \times 3 \text{ (mm)}$

## 【 0 0 2 7 】

本試験においては、試験体の上には何も載せない状態で予備試験を行って、試験体と標準体との温度差が  $1^\circ\text{C}$  以内におさまるように、電熱器上の試験体と標準体の位置関係や昇温速度の調整を行い済みである。そして、昇温速度は、各条件で得られる標準体の平均昇温速度で、いずれも約  $9^\circ\text{C/min}$  である。そして、本試験は、試験体の温度が純水の沸点以下である  $96^\circ\text{C}$  に達するまでは、試験体と標準体の測温を行い、試験体の温度が  $96^\circ\text{C}$  に達した時点で直ぐに、条件 1 ~ 3 では多孔質体中に残留する水分量、条件 4 では水滴の質量の測定を行った。そして、試験前後の水分の質量差から、水分の蒸発量を求めた。

## 【 0 0 2 8 】

各条件における、標準体の温度に対する試験体の温度降下の変化を図 6 に、また試験前

後の水分量および蒸発量を表 2 に示す。

【 0 0 2 9 】

【表 2】

| 条件 | 試験前(g) | 試験後(g) | 蒸発量(g) |
|----|--------|--------|--------|
| 1  | 0      | 0      | 0      |
| 2  | 0.40   | 0      | 0.40   |
| 3  | 0.71   | 0.09   | 0.62   |
| 4  | 0.71   | 0.34   | 0.37   |

10

【 0 0 3 0 】

乾燥した多孔質体による条件 1 の場合、標準体に対する温度降下はおよそ 1 以下であり、冷却効果は殆ど見られない。しかし、多孔質体に純水を染み込ませることにより、条件 2、条件 3 の順で染み込ませた純水量が多い程、標準体に対する温度降下が大きく、冷却能力の向上が認められる。そして、この冷却能力の向上は、水分の蒸発量を比較した場合に、条件 3 のそれが条件 2 のそれより多いことから、水分の蒸発する時の抜熱が大きく影響していることがわかる。

【 0 0 3 1 】

また、条件 4 と同量の純水を、多孔質体に染み込ませた状態で試験体に載せた条件 3 の冷却能力を評価すると、それは条件 4 に比較して標準体に対する温度降下が大きく、冷却能力が高いことがわかる。さらに、水分の蒸発量を比較した場合、条件 4 の 0 . 3 7 g に対して、本発明である条件 3 のそれは 0 . 6 2 g と多く、多孔質体を介した方が水分の蒸発が促進され、冷却能が向上することがわかる。これは、水滴が冷却対象に直接接触する場合に比べ、多孔質体中では水分がその骨格表面に広げられ、空孔内部または多孔質体表面の大気との界面である蒸発サイトの面積が広がったことから、骨格を伝わる熱が効率よく水分へ伝達され、蒸発が起こるためと考えられる。

20

【図面の簡単な説明】

【 0 0 3 2 】

【図 1】本発明の多孔質放熱部材の断面ミクロ写真の一例である。

30

【図 2】液体吸収性の評価試験の図である。

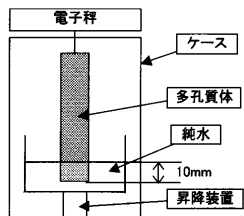
【図 3】液体吸収性の評価結果を示したグラフである。

【図 4】冷却能の評価試験の図である。

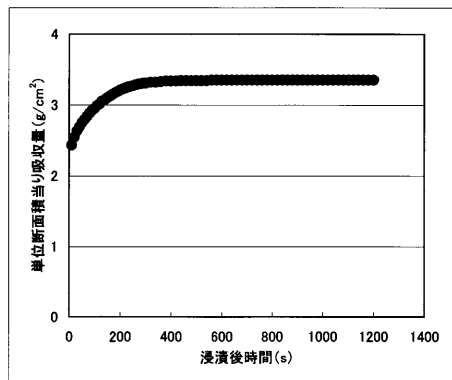
【図 5】冷却能の評価試験の図である。

【図 6】冷却能の評価結果を示したグラフである。

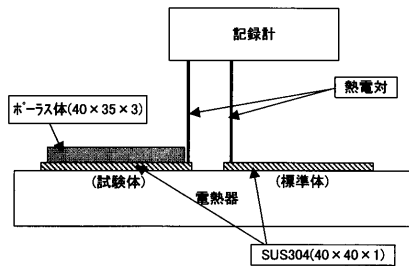
【図 2】



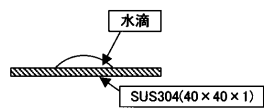
【図 3】



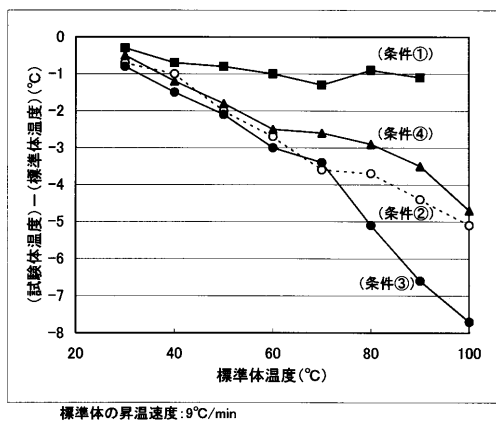
【図 4】



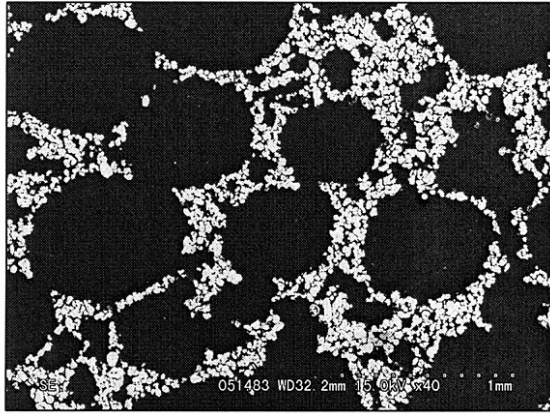
【図 5】



【図 6】



【図 1】



500 μm

---

フロントページの続き

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H 0 1 M 8 / 0 4 , 8 / 0 6

H 0 1 L 2 3 / 3 6

B 2 2 F 1 / 0 0 - 8 / 0 0

C 2 2 C 1 / 0 4 , 1 / 0 5

C 2 2 C 3 3 / 0 2