HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	熱間押出法を用いた炭素繊維一方向配向Cu基複合材料の作製と熱伝導特性評価
Author(s)	紺谷, 博人; 徳永, 透子; 大野, 宗一; 佐々木, 克彦; 松浦, 清隆
Citation	日本金属学会誌, 82(5), 125-129 https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2017047
Issue Date	2018-05-01
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/75370
Type	article
File Information	J. Jpn Inst. Met. Mater. 82 125.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

日本金属学会誌 第 82 巻 第 5 号(2018) 125–129

熱間押出法を用いた炭素繊維一方向配向 Cu 基複合材料の作製と熱伝導特性評価

紺谷博人* 徳永透子 大野宗一 佐々木克彦 松浦清隆

北海道大学大学院工学研究院

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 82, No. 5 (2018), pp. 125–129
© 2018 The Japan Institute of Metals and Materials

Fabrication of Unidirectionally Orientated Carbon Fiber Reinforced Cu-Based Composites by Hot Extrusion and Evaluation of Their Thermal Properties

Hiroto Kontani*, Toko Tokunaga, Munekazu Ohno, Katsuhiko Sasaki and Kiyotaka Matsuura

Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060–8628

Unidirectional orientation of the carbon fiber is essential in the fabrication of Cu–carbon fiber composites with high thermal conductivity, because the fiber exhibits its very high thermal conductivity only in the longitudinal direction. In this study, hot extrusion of a mixture of Cu powder and carbon fiber was applied to fabricate the unidirectionally orientated carbon fiber reinforced Cu-based composite and the effects of the volume fraction of carbon fiber on the thermal conductivity have been investigated. It has been demonstrated that hot extrusion of the Cu powder–carbon fiber mixture successfully align the fiber to orient along the extrusion direction, and consequently, the thermal conductivity in this direction increases with the volume fraction of carbon fiber. For the composite with more than 30 vol% carbon fiber, the application of ultrasonic vibration treatment to the powder–fiber mixture is effective for improving the homogeneity of the mixing and hence increasing the relative density and the thermal conductivity of the composite. [doi:10.2320/jinstmet.J2017047]

(Received October 4, 2017; Accepted January 19, 2018; Published April 25, 2018)

Keywords: *carbon fiber, copper, thermal conductivity, composite, extrusion*

1. 緒 言

近年の目覚ましい電子デバイスの性能向上や小型化に伴い半導体高集積回路(LSI)のより一層の高集積化が進み，そのため電力密度増大により発熱量が増加し，LSI の故障を招くことが懸念されている．これを解消するために，ヒートシンクの性能向上が求められている．ヒートシンクの放熱性能 Q は以下の式(1)で表される[1]．

$$Q = \alpha A(T_s - T_f) \quad (1)$$

式(1)において α は空気とヒートシンク材料間の熱伝達率，A はヒートシンクの表面積，T_s はヒートシンクの表面温度，T_f は周囲の空気温度である．この式からわかるように，ヒートシンクの表面積を増やすことが放熱性能の向上に有効である．それゆえ，ヒートシンクの形状を最適化することで排熱効率を最適化する研究が多く行われてきた[2,3]．しかしながら，形状の最適化による放熱性能の向上は，加工の観点からすでに限界に達しているとの指摘がある[4]．

そのため，ヒートシンク材料自体の熱伝導率の向上を目指した試みが行われており，特に，Cu に炭素繊維を複合化した材料が注目を集めている[5]．Cu は工業用金属で最も高い熱伝導率を有し，一方の炭素繊維はその Cu の約 3 倍も高い熱伝導率を有する．しかし，その高熱伝導率を発現できるのは繊維の長手方向のみであり，半径方向の熱伝導率は著しく低い[6]．そのため，Cu と炭素繊維の複合化においては，すべての炭素繊維を熱流方向に配向制御する必要がある．金属母相中に炭素繊維を配向させる手法として，予め繊維の方向を揃えたプリフォームに溶融金属を高圧で流し込む加圧含浸法[7]や，繊維を浸漬した溶融金属を高圧で金型に流し込むスクイーズキャスト法[8]，めっき溶射を施した炭素繊維からなるプリフォームをホットプレスや圧延により成形する方法[9,10]などが検討されてきた．しかしながら，これらいずれの方法においても繊維の配向性が不十分であることや生産性が低いことなどの課題が残されている．最近，著者らのグループは，このような課題が克服された新たな炭素繊維配向制御の方法を提案した[11]．それは，Al 粉末と炭素繊維の混合圧粉体を熱間押出することにより，Al 母相の焼結と同時に炭素繊維を押出方向に配向させる方法である．このようにして作製された炭素繊維一方向配向 Al 基複合材料の押出方向の熱伝導率は，母相 Al と比べて著しく高い熱伝導率を示した．この方法を Cu に適用すると，Cu を凌駕する高熱伝導複合材料が得られると期待できる．そこで，本研究では，熱間押出法を用いて炭素繊維を一方向に配向させた Cu 基複合材料を作製し，炭素繊維含有率が複合材料の熱伝導率に及ぼす影響を調査することを目的とした．

* 北海道大学大学院生(Graduate Student, Hokkaido University)

2. 実験方法

出発原料として市販の Cu 粉末とピッチ系炭素繊維を用いた．これらの特性を Table 1 に示した．複合材料中で炭素繊維の体積分率が 0 から 40 vol%となるように炭素繊維と Cu 粉末を秤量し，ガラスビーカー内で薬さじを用いて十分に混合した．約 160 g の混合粉末を金型に充填し，室温で 395 MPa の一軸圧縮を行い，直径 45 mm，高さ約 20 mm の円柱状圧粉体を作製した．その圧粉体を黒鉛製のダイスに装填し，放電プラズマ焼結(Spark Plasma Sintering, SPS)を施した．SPS は，真空中で 10 MPa の圧力をかけて行い，昇温速度は 14.7 K/min，保持温度は 1173 K，保持時間は 60 min とした．SPS 後の焼結体を，Fig. 1 に示すように押出コンテナ内に装填し，温度 1073 K，押出比 12，押出圧力 215 MPa の条件で熱間押出を行い，直径 13 mm の丸棒状に成形した．押出後の試料に対して断面の組織観察および相対密度と熱伝導率の測定を行った．組織観察には光学顕微鏡を用い，相対密度測定にはアルキメデス法を，熱伝導率測定にはレーザーフラッシュ法[12]をそれぞれ用いた．なお，相対密度と熱伝導率の評価に際しては，炭素繊維の体積分率が異なる複合材料ごとに 3 つの試料を用意し，それぞれについて 3 回測定を行った．

押出加工による炭素繊維の損傷の程度を評価するため，押出後の試料を酸に溶解して炭素繊維を抽出し，その平均長さを初期長さと比較した．炭素繊維の抽出に際しては，押出材の小片を常温の 63 mass%硝酸水溶液中に約 30 min 浸漬して母相の Cu のみを溶解させ，残渣として残った炭素繊維をろ過して取り出した．これを乾燥させたのち，光学顕微鏡を用いて約200本の炭素繊維の長さを測定した．

Table 1 Properties of Cu powder and carbon fiber used in this study.

	Cu powder	Carbon fiber
Diameter, D /μm	21	10
Length, L /μm	—	150
Density, ρ /kg·m^{-3}	8940	2250
Thermal conductivity κ /W·(m·K)$^{-1}$	398	1200 (Longitudinal direction, Theoretical value)
		10 (Transverse direction, Theoretical value)

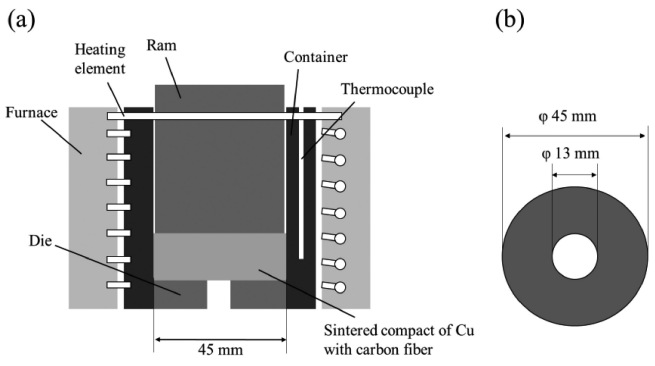

Fig. 1 Schematic illustrations of (a) the extrusionequipment and (b) the die used in this study.

3. 結果

3.1 複合材料の作製

熱間押出材の相対密度と炭素繊維体積分率の関係を Table 2 に示す．炭素繊維が 25 vol%以下の場合には98～99%の高い相対密度を持つ緻密な複合材料が得られたが，炭素繊維を 30 vol%まで増加させると相対密度が94%まで低下し，押出試料ごとに測定値が大きくバラつくようになった．炭素繊維が 40 vol%の場合は断片的な塊状固化物は得られたものの長い棒状には成形できなかった．

Fig. 2(a)に炭素繊維 30 vol%の押出材外観写真を，Fig. 2(b)にその横断面を，Fig. 2(c)と 2 (d)に縦断面を，Fig. 2(e)に押出前の SPS 焼結体の横断面をそれぞれ示す．炭素繊維 25 vol%までは押出材の表面はなめらかであったが，30 vol%になると Fig. 2(a)のように表面が粗くなった．しかし，Fig. 2(b)で確認できるように，内部は緻密でクラックやボイドはなく，健全に固化されている．また，Fig. 2(c)と 2 (d)を見ると，すべての炭素繊維がほぼ同一方向に配向している．押出前の SPS 焼結体(Fig. 2(e))では炭素繊維の向きに全く方向性がなかったので，Fig. 2(c)と 2 (d)に見られる結果は炭素繊維の一方向配向に対して熱間押出法がきわめて有効であることを明瞭に示している．

3.2 熱伝導率特性の評価

熱間押出により作製された複合材料に対し，押出方向の熱伝導率測定を行った．その結果を Fig. 3 に●印で示す．熱伝導率の測定値は炭素繊維体積分率の増加とともにほぼ直線的に増加し，その増加率は炭素繊維体積分率 1 vol%当たり約 3.9 W m^{-1} K^{-1}であった．図中の 3 種類の直線は，理想的に緻密な複合材料中にすべての炭素繊維が完全に押出方向に配向

Table 2 Extrusion feasibility of Cu–C fiber composites and the relative density of the extruded samples for each volume fraction of carbon fiber. Symbols “f” and “u” indicate that the consolidation with extrusion was feasible and unfeasible, respectively.

Carbon fiber volume fraction, f_V /%	Feasibility of extrusion	Relative density (%)
0	f	99.6±0.2
5	f	99.4±0.4
10	f	99.0±0.4
15	f	99.1±0.5
20	f	98.8±0.5
25	f	98.3±0.7
30	f	94.3±2.3
40	u	NA

していると仮定した場合の熱伝導率を，3 つの異なる繊維長さごとに示している．炭素繊維が短くなると熱伝導率が低くなる傾向が認められるが，これは繊維が短いほど Cu 母相と炭素繊維の界面が増加し，熱伝導の抵抗になるためである．なお，これらの直線は，本論文末尾の付録に示したように，異種界面の熱抵抗および熱伝導率の異方性を考慮したモデル[13]を用いて計算した結果である．

Fig. 3 に示されるように，すべての炭素繊維体積分率において母相 Cu を上回る熱伝導率が得られた．これは，長手方向にきわめて高い熱伝導率を有する炭素繊維が Fig. 2(c)と 2(d)に示すように押出方向に配向制御されたためである．しかしながら熱伝導率の上昇は炭素繊維 25 vol%までであり，30 vol%では 25 vol%よりも低い熱伝導率を示した．この原因は，Table 2 で示したように 30 vol%では他と比べて相対密度が顕著に低いので，複合材料内部に多く残存した気孔が熱伝導を阻害したことによると推察される．また，Fig. 3 において，炭素繊維の体積分率が増加するにつれ測定値のバラつきが大きくなっている．これは Table 2 に見られる相対密度のバラつきと同じ傾向を示している．相対密度バラつきの原因については，炭素繊維含有率が増加すると混合粉末中で炭素繊維の凝集が起こりやすくなり，凝集した炭素繊維群の内部に Cu 粉末が充填されず気孔ができやすくなることが関連していると推察される．

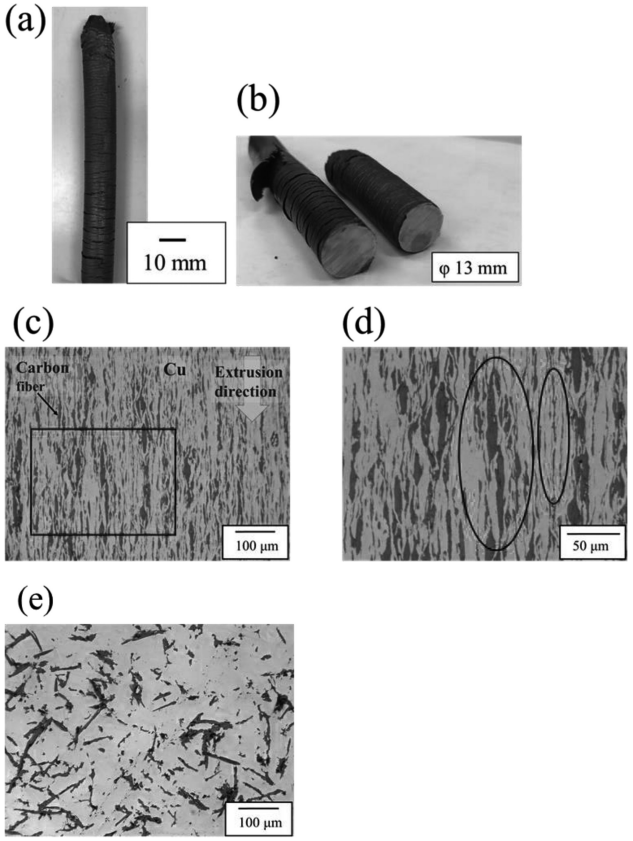

Fig. 2　(a) Outer appearance, (b) cross section, (c) longitudinal section of extruded Cu-based compositeswith 30 vol% of carbon fiber, (d) enlarged view of the square in (c) and (e) transverse section of SPS-ed compact with 30 vol% of carbon fiber.

Fig. 3 中の 3 本の直線を見ると，いずれも炭素繊維の体積分率とともに熱伝導率が増加しているが，炭素繊維が長いほど複合材の熱伝導率が高い．本研究で用いた炭素繊維の長さは 150 μm であるので図中の実線がこれに相当するが，実測された複合材料の熱伝導率は常に実線で示される理論値よりも低い．この要因として，押出時に炭素繊維が折れて短くなったために Cu 母相と炭素繊維の界面が増加し，これが熱伝導の抵抗になったことが考えられる．これについて次項で詳しく考察する．

3.2.1　押出による炭素繊維の損傷

Fig. 4 に炭素繊維の光学顕微鏡像を示す．押出後の複合材から Cu のみを酸で溶解して抽出した炭素繊維は，折れて長

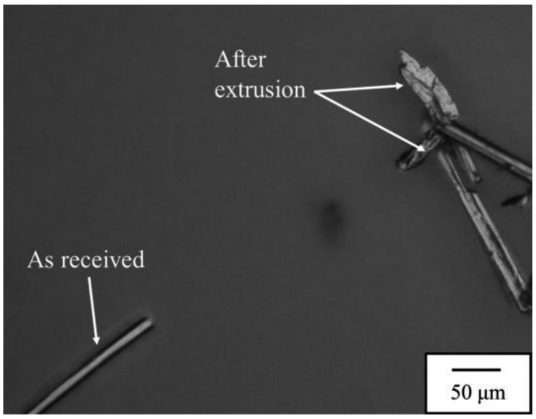

Fig. 4　Optical micrograph of carbon fibers (left: as received, right: after extrusion).

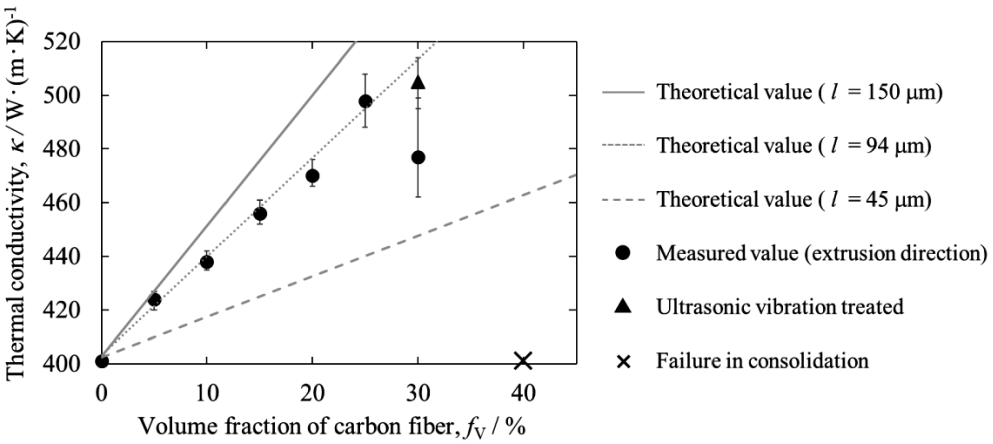

Fig. 3　Relation between thermal conductivity of extruded Cu-based composites and the volume fraction of carbon fiber.

さが短くなっている．用いた炭素繊維の初期長さは 150 μm であったが，抽出後の複合材中の炭素繊維の平均長さは，炭素繊維体積分率によらず約 45 μm であった．炭素繊維が押出により損傷を受けて短くなることで母相 Cu と炭素繊維の界面が増加し，界面熱抵抗が増加することが考えられるので，炭素繊維の長さ(l)が複合材料の熱伝導率にどのように影響するかを検討した．すなわち，lを150から 45 μm まで変化させ，それぞれの場合について複合材料の熱伝導率と炭素繊維体積分率の関係を計算し，その結果を Fig. 3 中に示した．図中の実線は l=150 μm の場合であり，これは炭素繊維受け入れ材の長さに相当する．すなわち，炭素繊維に損傷がない場合には，複合材はこの実線のような熱伝導率を示すと予測される．ところが実際の複合材の熱伝導率は，図中の●印のプロットが示すように常に実線よりも低い値であった．しかし一方で，これら実測値は，実際の繊維長さ l=45 μm を用いて計算して得た図中の破線よりもかなり高い値を示した．そこで実測値と一致するように炭素繊維長さを試行錯誤で探したところ，図中に点線で示すように l=94 μm と求まった．押出後の炭素繊維の長さが 45 μm であるにも関わらず実測値はこれとは一致せず，これより 2 倍も長い l=94 μm の場合の熱伝導率と一致した．この原因について深く考察を行い，その結果，折れて短くなった炭素繊維同士が複合材中で接触して実質的には長い繊維として機能したのではないかと推察するに至った．実際，複合材の断面を詳細に観察してみると，Fig. 2(d)に示すように数本の短い炭素繊維が互いに接触して長くつながっている様子が多くみられた．すなわち，Fig. 3 に見られたように複合材の熱伝導率が炭素繊維体積分率とともに増加するものの，初期炭素繊維長さに基づいた計算値よりも低くなった原因は，押出時に炭素繊維が折れて短くなったことによるものであり，折れて短くなった長さに基づいた計算結果よりも実際の熱伝導率が高くなった原因は，炭素繊維同士の架橋の効果によるものと考察した．

3.3 炭素繊維高体積分率における熱伝導率低下

Fig. 3 において，Cu 母相中に炭素繊維を配向制御することで熱伝導率が向上することが示された．しかし，炭素繊維の体積分率の増加に伴い熱伝導率が向上したのは炭素繊維25 vol%までであり，30 vol%では 25 vol%よりもかえって低い熱伝導率を示した．また，炭素繊維を 40 vol%含む混合粉末は SPS 焼結できたが，これを熱間押出したところ，Fig. 5(a)に示すように，棒状に固化成形することができず，2～5 mm の大きさの多数の破片に分かれてしまった(Fig. 3，Table 2 参照)．金属粉末と炭素繊維の混合体を熱間押出する際，炭素繊維を多く含む場合には炭素繊維の凝集が顕著になり，その隙間に金属粉末が充填されずに多くの空隙が残存し，それらの間を亀裂が伝播するために健全に押出成形できない事例が報告されている[11]．したがって，本研究においてもこのような要因により炭素繊維 40 vol%において固化成形の不全に至ったものと推察される．

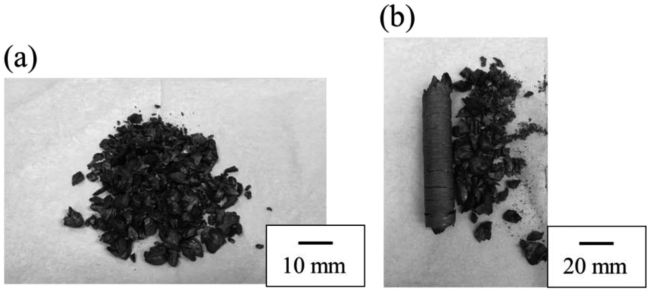

Fig. 5 Hot-extruded composites with 40 vol% of carbon fiber. The mixture of Cu powder and carbon fiber for the extrusion was prepared (a) without and (b) with an ultrasonic vibration treatment.

より高体積分率の炭素繊維を含む複合材料を健全に押出成形し，かつ相対密度の高い緻密な複合材料が作製できれば，さらに高い熱伝導率が期待できる．そこで，混合粉末中の炭素繊維を均一に分散させ，炭素繊維凝集による気孔の発生を抑えることを検討した．本研究では，その方法として超音波ホモジナイザーを用いた混合粉末の均一化を試みた．すなわち，混合粉末内で凝集した多数の炭素繊維を超音波振動により分散させ，混合粉末中に一本ずつ均一に分散させることで気孔の発生が抑制され，高体積分率の炭素繊維を含有する複合材料の相対密度が向上し押出成形性が改善されると期待した．この方法により作製した混合粉末を押出した結果を次項で述べる．

3.4 超音波ホモジナイザーを用いた混合粉末の均一化処理

炭素繊維の体積分率が30および 40 vol%となるように秤量した混合粉末をエタノール中に浸漬させ，超音波ホモジナイザーを用いて超音波振動処理を常温で 480 min 行った．処理後の溶液を大気中にて 323～333 K の温度で保持してエタノールを蒸発させ，その後の混合粉末を用いて複合材料を作製した．このときの複合材料作製条件は，超音波振動処理をしていない場合と同様のものとした．

Fig. 5(b)に超音波振動処理を適用した試料の外観写真を示す．超音波振動処理を施さなかった場合(Fig. 5(a))と比べると，部分的ではあるものの棒状に成形できている．この棒状に成形された複合材料の相対密度を測定したところ91.0±0.8%とさほど高くはなかったが，超音波振動処理なしの場合には成形自体ができなかったことを考えると，超音波振動処理による押出成形性の改善は明らかである．実際，炭素繊維体積分率 30 vol%の場合にも，超音波振動処理なしの場合の相対密度が94.3±2.3%（Table 2)であったのに対し，超音波処理した場合には97.7±0.3%と高くなっただけでなく測定誤差の範囲も小さくなった．この試料の熱伝導率を測定したところ，Fig. 3 中に▲で示したように，超音波処理なしの場合(●)よりかなり高くなり，図中のプロットは他の測定結果の延長線上に位置した．

すなわち，炭素繊維高体積分率の場合においては，超音波ホモジナイザーを用いて混合粉末の均一化を行うことで相対密度と押出成形性が改善されることが示された．

4．結　　言

熱間押出法により炭素繊維一方向配向 Cu 基複合材料の作製を行い，その熱伝導率を評価した．その結果，以下の結論

を得た．

（1）　炭素繊維を混合したCu粉末を放電プラズマ焼結（SPS）して作った焼結体を熱間押出すると，炭素繊維が押出方向に配向された複合材料が得られた．この複合材料の押出方向の熱伝導率は炭素繊維体積分率 1 vol%当たり約 3.9 W・(m・K)$^{-1}$の割合でほぼ直線的に増加した．

（2）　熱間押出時に炭素繊維は折れて短くなるため，用いた炭素繊維の初期長さから期待される通りの熱伝導率増加が得られないものの，複合材中の炭素繊維同士の架橋効果のため押出後の繊維長さから見積もられるよりは高い熱伝導率を示す．

（3）　30 vol%を超える高い炭素繊維体積分率の場合では，繊維の凝集に起因して押出材の複合材の相対密度が低くなり，そのために熱伝導率が予測通りに高くならない場合や成形そのものが困難になる場合がある．この問題を軽減するために粉末／繊維混合後の超音波振動処理が有効であった．

この成果は，国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務の結果得られたものです．また，本研究を行うにあたり，北海道大学大学院工学研究院付属エネルギー・マテリアル融合領域研究センターの秋山友宏教授と阿部圭佑氏に熱伝導率測定に関する実験指導とご助言を頂きました．また，北海道大学大学院工学研究院の中村孝教授と藤村奈央助教には超音波ホモジナイザーの実験指導をして頂きました．ここに記して謝意を表します．

文　　献

1）M. Ishizuka: *Denshikiki no Netsusekkei*, (Maruzen Publishing Co., Ltd, Tokyo, 2003) p. 30.
2）G. Maranzanna, I. Perry, D. Maillet and S. Rael: Int. J. Therm. Sci. **43**(2004) 21–29.
3）J. Choi, M. Jeong, J. Yoo and M. Seo: Appl. Therm. Eng. **44** (2012) 50–56.
4）T. Imanishi, K. Sasaki, K. Katagiri and A. Kakitsuji: Trans. JSME A **74**(2008) 655–661.
5）J. Korab, P. Stefanik, S. Kavecky, P. Sebo and G. Korb: Compos. Part A – Appl. Sci. **33**(2002) 577–581.
6）O. Breuer and U. Sundararaj: Polym. Compos. **25**(2004) 630–641.
7）K. Yamada, S. Sekiguchi and K. Hashimoto: J. Japan Inst. Metals **58**(1994) 1248–1255.
8）M. Velamati, E. Aguilar, M. A. Garza-Castanon, N. P. Hung and M. Powers: J. Mater. Process. Technol. **212**(2012) 2549–2557.
9）K. Kuniya, H. Arakawa and T. Kanai: J. Japan Inst. Metals **49** (1985) 291–297.
10）H. Asanuma and A. Okura: J. Japan Inst. Metals **48**(1984) 1119–1126.
11）T. Tokunaga, K. Takahashi, M. Ohno, K. Sasaki, T. Imanishi and K. Matsuura: J. Japan Inst. Met. Mater. **80**(2016) 640–645.
12）K. Kondoh: JFE 21st Century Foundation Research Report (2009) 221–228.
13）K. Sasaki, K. Katagiri, A. Kakitsuji, T. Satoh, T. Imanishi, N. Nakama and A. Shimizu: FRP Symposium Proceedings **35**(2006) 191–195.
14）M. A. Prelas, A. Benedictus, L. S. Lin, G. Popovici and P. Gielisse: Diamond Based Compos. **38**(1997) 373.

Appendix

炭素繊維の界面状態や熱伝導率の異方性を考慮することのできる理論モデル[13]について説明する．Fig. A1で示すような

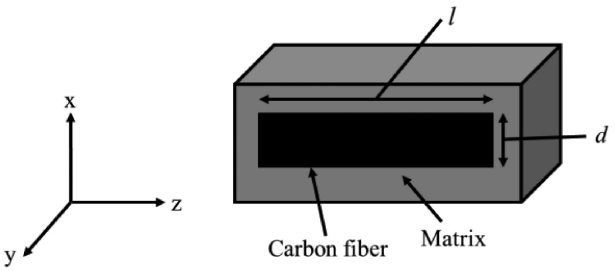

Fig. A1　Schematic image of a composite unit cell.

炭素繊維と母相から成る複合体ユニットセルを考える．多数の複合体ユニットセルで構成される複合材料全体の x, y, z 方向の熱伝導率 K_x,, K_y,, K_z は式(A1)および(A2)と表される．なお，この式では炭素繊維はすべて z 方向を向いていると仮定する．

$$K_x = K_y = K_m \frac{1+f\beta_x(1-L_x)}{1-f\beta_x L_x} \tag{A1}$$

$$K_z = K_m \frac{1+f\beta_z(1-L_z)}{1-f\beta_z L_z} \tag{A2}$$

ここで K_m は母相の熱伝導率であり，fは炭素繊維の体積分率である．β_x，β_y，β_z はそれぞれ式(A3)，(A4)で表され，L_x，L_y，L_z はそれぞれ式(A5)，(A6)で表される．

$$\beta_x = \beta_y = \frac{K_x^c - K_m}{K_m + L_x\left(K_x^c - K_m\right)} \tag{A3}$$

$$\beta_z = \frac{K_z^c - K_m}{K_m + L_z\left(K_z^c - K_m\right)} \tag{A4}$$

$$L_x = L_y = \frac{P^2}{2\left(P^2-1\right)} + \frac{P}{2\left(P^2-1\right)^{\frac{3}{2}}} cosh^{-1}P \tag{A5}$$

$$L_z = 1 - 2L_x \tag{A6}$$

ここで，P は炭素繊維のアスペクト比であり，l/d で表される．ここで d は炭素繊維の直径，l は長さである．また，K_x^c, K_y^c, K_z^c は母相と炭素繊維の界面における伝熱抵抗を考慮した炭素繊維の x，y，z 方向の熱伝導率であり，式(A7)，(A8)で求められる．

$$K_x^c = K_y^c = \frac{K_\mathrm{d}^c}{1+\dfrac{2a_k K_\mathrm{d}^c}{\mathrm{d}K_m}} \tag{A7}$$

$$K_z^c = \frac{K_\mathrm{l}^c}{1+\dfrac{2a_k K_\mathrm{l}^c}{\mathrm{l}K_m}} \tag{A8}$$

ここで，K_d^c および K_l^c はそれぞれ半径方向および長手方向の炭素繊維の熱伝導率であり，それぞれ本研究で用いた炭素繊維の値の10 W・(m・K)$^{-1}$および1200 W・(m・K)$^{-1}$を用いた．また，式(A7)および(A8)内の a_k は Kapitza radius と呼ばれ，界面伝熱特性を制御する係数 R_Bd を用いて式(A9)のように表される．

$$a_k = R_\mathrm{Bd} K_\mathrm{m} \tag{A9}$$

この R_Bd は界面熱伝導抵抗係数と呼ばれ，本研究では2.2 × 10^{-8} m^2・K・W^{-1} [14]を用いた．