

高熱伝導放熱シートHEATEX® 絶縁タイプの開発

Development of Thermal Conductive Sheet HEATEX® Insulation Type

向 史博

Fumihiko MUKAI

Abstract

In late years, with a technological advance and downsizing of the electronic equipment, the calorific value of electronic parts increases remarkably. It is necessary to tell cooling machine such as heat sinks, and to radiate heat to be connected in the generated heat spoiling the reliability as the movement instability of electronic parts that is the apparatus.

Thermal conductive sheet is a heat transfer material used in form to intervene between heat place and cooling unit.

We oriented filler having shape anisotropy perpendicularly with the thickness direction of the seat and controlled it, and we applied to thermal conductive sheet. As past result, we developed an insulation type using boron nitride.

Keywords: Thermal conductive sheet ; Insulation ; Vertically aligned ; Boron nitride ; HEATEX®

1. 開発の背景

近年、電子機器の高性能化や小型化に伴い、電子部品の発熱量が著しく増大している。発生した熱は、電子部品の動作不安定つまりは機器としての信頼性を損なうことに繋がるため、ヒートシンクなどの冷却器へ伝えて放熱する必要がある。

放熱シートは、発熱源と冷却器の間に介在する形で使用される伝熱部材であり、TIM (Thermal Interface Material) と呼ばれる放熱材料の1種である。発熱源や冷却器の表面には、少なからず微細な凹凸が存在する。そのため、これらを直接組み付けると接触界面に断熱効果のある空気層を介在させることになり、伝熱が大きく阻害される。TIMの介在は、発熱源ならびに冷却器の表面凹凸への追従により空気層の形成を抑え、接触界面の熱抵抗を下げて伝熱を効率化する働きをもつ。但し、TIMの介在は熱の移動距離を長くするといった伝熱の阻害因子にもなるため、TIM製品自体の熱伝導率を向上させることが極めて重要となる。

我々は、形状異方性を有するフィラーをマトリクスゴムシート中でシートの面に対して垂直に配向制御する技術を放熱シートに適用し、シートの厚み方向つまりは熱の移動方向の熱伝導率を飛躍的に向上させた放熱シート (商品名: HEATEX®) の開発に取り組んでいる。これまでの成果として、軸方向に優れた熱伝導率を有するカーボンファイバーをシートの面に対して垂直配向させた放熱シートを開発した¹⁾。本報では、垂直配向制御技術の更なる展開として、電気絶縁性を

有する鱗片状粒子である六方晶窒化ホウ素 (h-BN) を熱伝導フィラーとして用いたHEATEX®絶縁タイプに関する開発事例を述べる。

2. 形状異方性を有するフィラーの垂直配向制御技術の概要と特徴

2-1. 放熱シートの課題

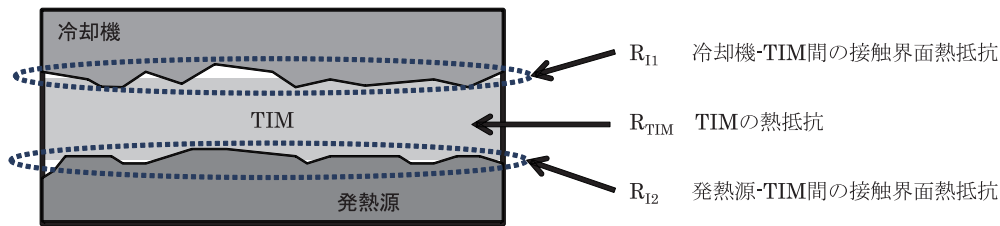
TIMにはいくつかの製品分類があり、用途で使い分けが成されている。実際に用いる際は、どのような特性・使い勝手を重視するか考慮し、選択することが必要となる。

TIMに求められる特性は、熱をより効率的に伝達することである。具体的には、以下の要求が挙げられる。

- ・材料自体が熱を伝達しやすい (TIM自体の熱伝導率が高い)
- ・熱の移動距離が短い (TIMの厚みが薄い)
- ・被着材に良く密着し、接触界面の伝熱阻害を抑える (接触界面の熱抵抗が低い)

放熱材料の熱特性は、熱抵抗として評価される。熱抵抗は、低いほど伝熱の阻害因子がない (優れる) ことを示し、Figure 1 で示すようにTIM由来の熱抵抗と相手材との接触界面の熱抵抗の和で表される。

放熱グリースなどの液状TIMは、オイルや変性ポリマーなどの油脂に高熱伝導性を有する無機フィラーを充填したものである。液状であるが故に相手材の凹凸



全体の熱抵抗 $R_{\text{total}} = R_{11} + R_{\text{TIM}} + R_{12}$
 TIMの熱抵抗 $R_{\text{TIM}} = t / (\lambda_{\text{TIM}} \cdot A)$
 t : TIMの厚み、 λ_{TIM} : TIM自体の熱伝導率、 A : 接触面積

Figure 1 Relations of thermal conductivity and thermal resistance of TIM

に良くなじみ、接触界面の熱抵抗を低減することが可能である。加えて、薄膜にすることが容易であり、熱の移動距離を短くしやすい。短所として、発熱/冷却に伴う相手材の寸法収縮により、油脂成分が塗布部から染み出して接触熱抵抗が増加する（ポンプアウト）といった経時安定性に関する課題が挙げられる。

これに対し、放熱シートなどのシート状TIMは、液状TIMと同様に高熱伝導フィラーを充填したポリマーコンパウンドを用いるが、ポリマーを架橋により繋ぎ止め、フィラーともども拘束するといった構造上の違いを持つ。ポリマーが架橋されていることにより相手材の熱収縮に対する経時安定性に優れ、シート状のため取扱い易く作業性も良い。反面、ポリマーを架橋硬化させたことに起因し、流動性を有する液状TIMに対して、相手材への追従に劣り接触熱抵抗が高い。また、放熱グリースと比べて厚膜で使用されるため、グリース同等の熱抵抗値を狙う場合、熱伝導率の向上が不可欠となる。

熱特性のみを比較した場合、放熱シートは放熱グリースと比べて長期信頼性・作業性に優れるが、初期の実力が低い傾向にあると言える。しかし、フィラーを架橋ポリマーで拘束して任意の構造で維持できるため、複合材料として構造設計の自由度が高い。特に熱伝導率の向上に対しては、液状TIMでは成し得ない設計を実施することが可能となる。その一例として、形状異方性を有する伝熱フィラーの垂直配向構造の適用が挙げられる。以下で高熱伝導率化の一般的な処方を見え、当技術の有用性について述べる。

2-2. 高熱伝導率化処方

液状・シート状に限らず、TIMの熱伝導率は、充填した高熱伝導フィラーの量に依存する。フィラー充填複合材料の熱伝導率については、様々な理論式が提案されている。一例として、Bruggemanの式²⁾を(1)に示す。

$$1 - V_f = \left(\frac{\lambda_f - \lambda_c}{\lambda_f - \lambda_m} \right) \left(\frac{\lambda_m}{\lambda_c} \right)^{1/3} \quad (1)$$

V_f はフィラーの体積分率を示し、 λ_f 、 λ_m 、 λ_c はそれぞれフィラー、マトリクス樹脂、複合材料の熱伝導

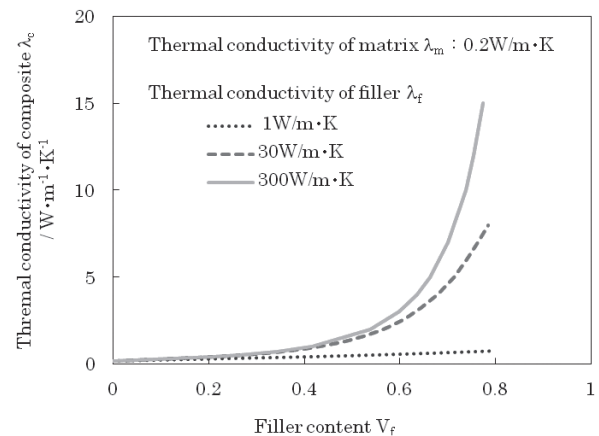


Figure 2 Relationship between λ_c and V_f

率を示す。Figure 2に、(1)式より求めた複合材料の熱伝導率とフィラー体積分率の関係を示す。マトリクス樹脂の熱伝導率を0.2W/m・Kとし、熱伝導率の異なる3種のフィラーを用いた際の理論値をプロットした。

当然ではあるが、 λ_f 1W/m・Kの場合の λ_c は、充填量を高くしても低く推移する。TIMとしての必要機能を満たすためには、マトリクス樹脂と比べて十分に高い熱伝導率を有するフィラーを用いる必要がある。 λ_f 30W/m・Kの場合、 λ_c はフィラーの体積分率（充填率）に強く依存し、体積分率が0.6を超えたあたりで急激に増加する。 λ_c の急増は、フィラーの最密充填構造化と、それに伴うフィラー同士の相互作用（接触による伝熱パスの形成）の増加を意味する。また、仮に λ_f 300W/m・Kのフィラーを用いても、 λ_c が急増する閾値が λ_f 30W/m・Kの場合と同等であり、複合材料の高熱伝導率発現が容易でないことが伺える。

伝熱フィラーの充填量UPに対し、一般にパッキングに優位な球状フィラーが着目され、より緻密な充填構造を得る処方として、フィラーの粒度分布の制御（大径粒子の間隙を小径粒子で詰める）が広く用いられている。

上記処方を用いた伝熱フィラーの最密充填化は、高熱伝導率を発現するために有用な処方であるが、同時にポリマー分率が低下するため、得られる複合材料が脆くかつ硬くなりやすい。これにより、放熱シート本

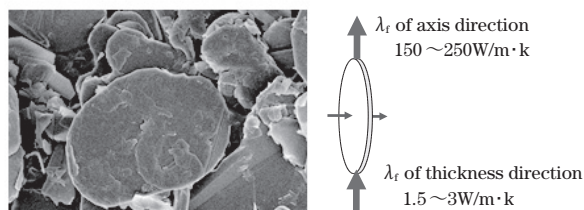


Figure 3 The appearance and thermal conductivity of h-BN

来の信頼性や経時安定性が損なわれるだけでなく、相手材への追従性をさらに悪化させる懸念がある。本報では、フィラーの最密充填を用いず、熱伝導パスを最大限に活用することで高熱伝導化を図る処方について検討した結果を示す。

2-3. 狙いとするフィラー充填構造と用いた伝熱フィラー

形状異方性を有しかつ長軸方向に高い熱伝導性を有するフィラーが、放熱シートの厚み方向に垂直配向した充填構造を狙いとする。当構造の実現により、シートの厚み方向に効率的な伝熱パスを形成させ、フィラーの持つ高い熱伝導率を最大限に発揮し、より低いフィラー体積分率での高熱伝導率発現を目指した。

形状異方性を有する伝熱フィラーとして、鱗片状で板軸方向に150~250 W/m・Kと高い熱伝導性を有するh-BNを用いた。Figure 3にSEM画像（HITACHI S4800にて撮影）ならびに板軸方向・厚み方向の熱伝導率を示す。

マトリクス樹脂には、耐熱性・絶縁耐圧に優れたシリコーンゴム（熱伝導率0.2 W/m・K）を使用。h-BNも絶縁耐圧に優れた無機フィラーであり、作製されるシートも高い絶縁耐圧を示すことが期待できる。

3. h-BN垂直配向制御技術の適用例と効果

3-1. h-BN垂直配向シートの熱伝導率

上記構想のもと作り込みを行ったh-BN垂直配向シートの断面SEM写真をFigure 4に示す。Figure 4の縦方向がシートの厚み方向を示しており、この方向に沿

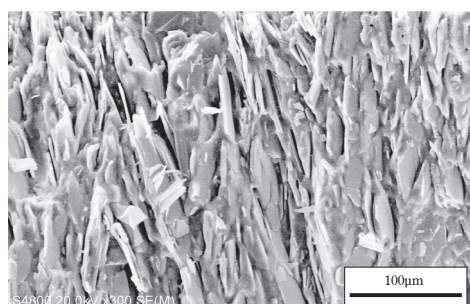


Figure 4 Cross section of h-BN vertical aligned thermal conductive sheet
(Vertical direction: Thickness direction of the sheet)

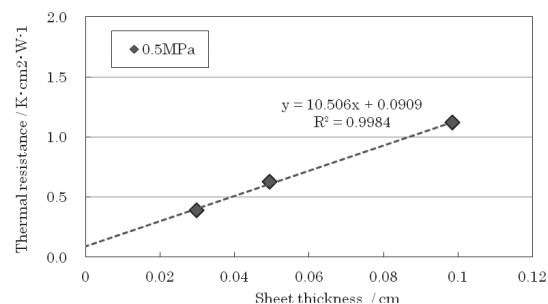


Figure 5 Sheet thickness dependence of thermal resistance about h-BN vertical aligned thermal conductive sheet at contact pressure 0.5 MPa

ってh-BNの板軸方向が配列していることが確認できる。

垂直配向構造の作り込みを確認できたため、続いて熱伝導率の算出を行った。熱伝導率は、定常法（ASTM D5470準拠）でシート厚みに対する熱抵抗値をプロットし、以下の手順で算出した。Figure 5に、TIM テスター model 1300（ANALYSIS TECH社製）を用い、印加圧力0.5 MPaで測定した熱抵抗値のシート厚み依存性を示す。測定したシート厚み3水準の熱抵抗に対し、直線近似（Figure 5中の破線）を実施。同一圧力下での接触熱抵抗は、シート厚みに依らず一定である。従って、近似式の切片（外挿値）が測定圧力下での接触熱抵抗（K・cm²/W）を、傾きの逆数（W/cm・K）に100を乗じた値がシートの熱伝導率（W/m・K）を意味する。定常法による算出の結果、h-BN垂直配向シートは、9.5 W/m・Kの熱伝導率を有することが確認できた。

今回作成したh-BN垂直配向シートのVfは0.5である。Figure 2の球状フィラー充填系と比較しても分かるように、従来処方とは一線を画す高熱伝導率を発現可能であることが明らかとなった。

3-2. h-BN垂直配向シート熱抵抗値の印加圧力依存性

h-BN垂直配向技術の適用により、伝熱フィラーの最密充填化を要さず、高熱伝導率の発現が可能となった。続いて、接触熱抵抗について見識を述べる。Figure 6に測定時の印加圧力を変量した際の熱抵抗値のシート厚み依存性を示す。

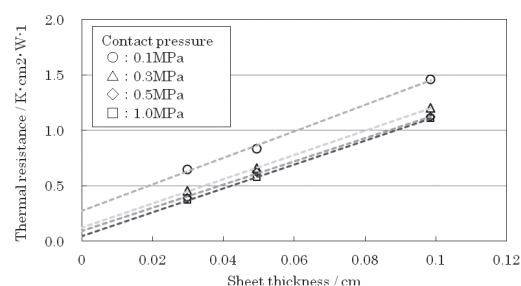


Figure 6 Sheet thickness dependence of thermal resistance about h-BN vertical aligned thermal conductive sheet at several contact pressure

Table 1 Specification of HEATEX[®] insulation type

	単位	HEATEX [®] 絶縁タイプ			
		TS106 (本報記載)	TS102	柔軟仕様 (開発中)	超高熱伝導 仕様 (開発中)
フィラー	—	h-BN			
厚み	mm	0.3, 0.5, 1.0		0.5~2.0	0.2~0.5
熱伝導率 (ASTM D5470)	W/m·K	9.5		7~10	> 10
硬さ	ASKER C	55	70	20~50	70~90
絶縁破壊電圧	kV/mm	> 20			
体積抵抗率	$\Omega \cdot \text{cm}$	> 10 ¹⁴			
難燃性 (UL94 燃焼性試験)	—	V-0 UL File No. E491346	V-0 相当		

印加圧力の増加に伴い、接触熱抵抗（直線近似の切片）が低減する。これは印加圧力の増加で、放熱シートと相手材との接触面積が増えることに起因している。当結果から、0.3MPa超の圧力下での実装・使用が当シートの特徴を発現する上で望ましいことが示唆される。また、各圧力水準でのシートの熱伝導率（直線近似の傾きと相関）に変化が見られないことから、1MPaの圧力下においても垂直配向構造が維持され、安定した実力を示すことが確認された。

また、実際の実装環境下においては、常に相手材の収縮・膨張が発生する。液状TIMにおいてはポンプアウトの要因となる懸念事項であるが、今回開発したシートでは、耐熱衝撃等相手材の繰り返し寸法変化に伴う熱特性の悪化は確認されていない。むしろ相手材との接触面積を増やす良化因子として働き、初期の熱抵抗値から良化する傾向が確認されている。当現象による接触熱抵抗低減については、相手材の寸法変化量や形状に依存するため、実機評価にて効果確認を行うことが望ましい。

4. おわりに

以上、形状異方性を有する伝熱フィラーをシートの厚み方向に配向させる技術ならびにそれを活用したh-BN垂直配向シートの熱特性について述べた。開発されたHEATEX[®]絶縁タイプは、TIMとして必要とされる熱抵抗の低減を図るだけでなく、架橋ゴムをマトリクス樹脂としているため、耐熱衝撃性や耐熱性といった長期信頼性にも優れている。また、最密充填に至ることなく高熱伝導率の発現が可能であるため、ゴムの特性を強く現すことができ、絶縁耐圧や柔軟性などでも優れた値を示す。当製品の代表特性をTable 1に示す。今後更なる対策が必要となる電子機器の放熱設計において、HEATEX[®]絶縁タイプが解決手段の一つとして活用されることを期待する。

References

- 1) Naito, H.; Miyake, M.; Sako, Y.: MSE2013, 23, 21-24 (2013)
- 2) D. A. G. Bruggeman, Ann. Phys., 24, 639-679 (1935)



向 史博

Fumihiko MUKAI
2007年 入社
R&Dセンター