

●高熱伝導性材料の開発

アロン化成株式会社 エラストマー事業部 エラストマー開発G 伊達 憲昭
東亞合成株式会社 機能化学品研究所 山田 成志

1 はじめに

電子機器の高密度化・省スペース化が急速に進み、熱による製品性能に対する影響が深刻になっている。一般的にヒートシンクなどに効率よく熱を伝えるために、熱伝導性の良好で柔らかい放熱シート（シリコーンゴム・ゲルなど）が使用されている。しかし、シリコーン系放熱シートでは、低分子量シロキサンより生成される絶縁物の付着による接点不良等の問題点が挙げられる。

最近では、電気・電子機器が複雑化する中で、放熱ゴム・ゲルに対する要求も従来の単純なシートだけではなく、0.5mm以下の肉薄のものや、逆に6mm以上の肉厚なもの、またシート形状ではなく複雑な形状のものなど多種多様化してきている。

東亞合成グループでは、アロン化成および東亞合成の両社で熱伝導性を有する新規材料の開発に取組んでいる。アロン化成では、比較的自由な設計ができ、かつ低分子量シロキサンを含有しない、高熱伝導熱可塑性エラストマー「グレイザード®」を（地独）大阪市立工業研究所と共同開発した。また、東亞合成では、0.1mmと非常に薄いながらも高い接着性および耐熱性を発現する熱伝導性接着シート、および従来品と比べて耐熱性に優れる熱伝導性アクリル系微粘着シート「TCシリーズ」を開発したので、それについて紹介する。

Part I アロン化成製品の紹介

2 高熱伝導熱可塑性エラストマー「グレイザード®」の特徴

放熱材料は、一般的に熱伝導性の低い樹脂成分（マトリックス）に熱伝導性フィラーを多量に充填することによって熱伝導・放熱性能が得られる。同様の手法でマトリックスを熱可塑性エラストマーにした場合、硬く、脆くなってしまい、さらに流動性が悪化し成形性が非常に悪いものになってしまふ。また熱伝導性フィラーは、アルミナに代表されるように表面硬度が高いため、汎用の熱可塑性成形機ではスクリューなどの磨耗の問題がある。このため、熱可塑性エラストマーの高熱伝導化はこれまでその実用化が困難であった。

今回、上記問題点を解決するために、軟らかい特殊な熱伝導フィラーを選択し、当社独自の熱可塑性エラストマーの配合技術とコンパウンド技術により、汎用の熱可塑性成形機でも成形可能な高熱伝導熱可塑性エラストマー「グレイザード®」

の開発に成功した。

その代表的な特徴を表1に、ラインアップを表2に示す。

表1 各種放熱シートとの比較

| 材料内容 | シリコーン | 他社品 アクリル | グレイザード® |
|--------------------------|----------|-------------|-------------|
| シロキサン 含有量(ppm) | 100~1000 | 100~300 | 10未満 |
| 熱伝導率 (W/m·K) | 1~5 | 1~3 | 1~3 |
| 絶縁性 | ○ | ○ | ○ |
| 耐熱老化性* 130°C × 1000hr | ○ | △ | ◎ |
| 150°C × 1000hr | ○ | × | × |
| 樹脂ヤセ | ◎ | × | ◎ |
| 硬さ Shore A | 10~90 | 10~20 | 12~70 |
| 販売形態 | シート | シート | シート ペレット |
| 価格 | × | ○ | ◎ |

* 耐熱老化性 ◎:硬さ変化 10point未満 ○:硬さ変化 10~20point
△:硬さ変化 20point以上 ×:崩壊、溶融

表2 「グレイザード®」のラインアップ

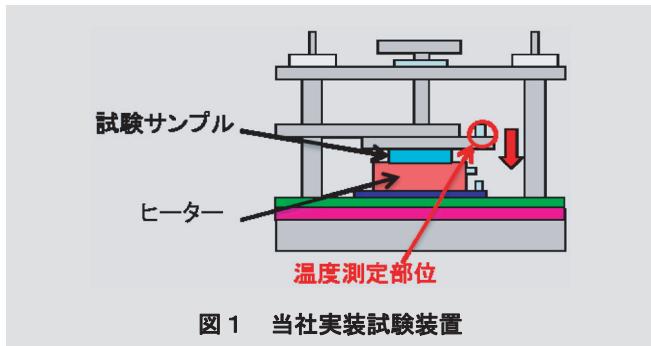
| 項目 | 単位 | CH-M0120 | CH-M0265 | 試験方法 |
|----------------|-------|-------------------|-------------------|-------------|
| | | 軟質 | 高熱伝導 | |
| 硬さ Shore A | point | 12 (38E) | 52 | JIS K 6253A |
| 比重 | — | 1.88 | 2.10 | JIS K 7112 |
| 引張強度 | MPa | 0.2 | 0.6 | JIS K 6251 |
| 破断時伸び率 | % | 930 | 5820 | 〃 |
| 熱伝導率 (23°C) | W/m·K | 1.7 | — | 面方向 |
| レーザー フラッシュ | W/m·K | 1.5 | 2.0 | 厚み方向 |
| 体積抵抗率 | Ω·cm | >10 ¹⁴ | >10 ¹⁵ | JIS K 6911 |
| 絶縁破壊強さ | kV/mm | 21 | 24 | JIS K 6249 |
| 難燃性 UL-94 | — | V-0相当 | V-0相当 | t=1.0mm |

3 他社製品との比較

3-1 热伝達特性

放熱シートは使用場所や使用方法によって、シート固定時の圧縮率や厚みもさまざまである。それらの状況を考慮しながらシートを選定しなければ、単純に熱伝導率が高いシートを使用しても、実際には熱の伝達性が悪くなってしまう。

図1は、アロン化成で作製した実装試験装置であり、圧縮率やシートの厚み及び種類を変更したとき、ヒーターの熱をどれだけ効率よく伝えているかを評価出来る。



試験に用いた放熱シートの種類ならびに特性は表3のとおりである。図2、3はヒーターの設定温度を100°Cとし、厚み0.5mmのシートに荷重200N（軽く触れる程度）と荷重900N（圧縮率約40～50%）の圧力をそれぞれかけた時の熱伝達特性のグラフである。結果から、シートをあまり圧縮させずに使用するときは、「CH-M0265」のように熱伝導率の高いシートが熱伝達特性に優れ、圧縮率が高い場合は「CH-M0120」のように軟らかいシートが熱伝達特性に優れることが分かる。また、比較的硬いシートは圧縮の影響をあまり受けず、熱伝導率の高さに依存する。

各種放熱シートとの比較では、アロン化成品と同程度の硬さ、熱伝導率を持つシリコーン系よりも、アロン化成品の方が熱伝達性に優れることが分かる。

3-2 長期熱伝達特性（樹脂ヤセ、硬さ変化）

放熱ゴム・ゲルシートを長期間使用すると可塑剤の揮発等により、硬くなったり、樹脂がヤセて空隙が出来てしまったりして、熱伝達性が悪くなることがある。

図4、5は120°Cの環境下で厚み2mmの試験片を30%圧縮して、各経過時間後に圧力を解放した時の試験片の厚みと硬さ変化を調査したものである。アクリル系は500時間経過後から樹脂がヤセてシートと試験治具の間に空隙が出来ているのが分かる。また、硬さ変化もかなり硬くなっているため、シート設置当初よりも熱伝達特性が大きく低下することが予想される。

シリコーンゲルとアロン化成品は両方とも1000時間経過後でも隙間が出来ず、硬さも大きく変化していないため、長期

間使用してもシート設置当初の熱伝達特性に近いと予想出来る。

表3 各種放熱シートの性能

| グラフの種類 | 各種熱伝導シート | 熱伝導率(W/m·K) | 硬さ(Shore A) |
|-----------|----------|-------------|-------------|
| CH-M0120 | 1.5 | 12 | |
| CH-M0265 | 2.0 | 52 | |
| シリコン系(ゴム) | 1.4 | 93 | |
| シリコン系(ゲル) | 1.3 | 17 | |
| アクリル系 | 1.7 | 28 | |

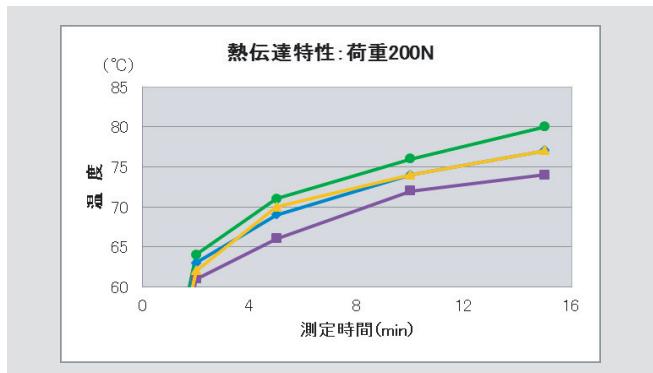


図2 荷重200N時の各種放熱シートの熱伝達特性

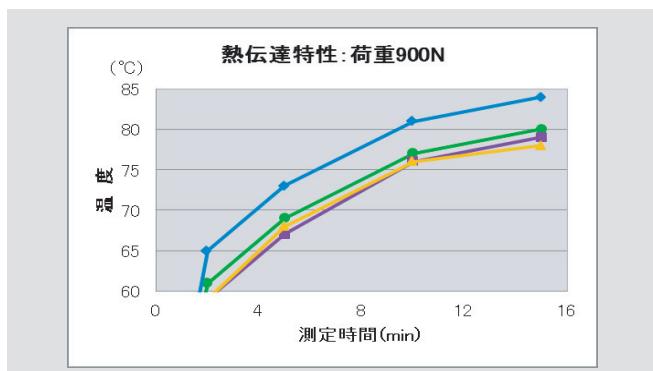


図3 荷重900N時の各種放熱シートの熱伝達特性

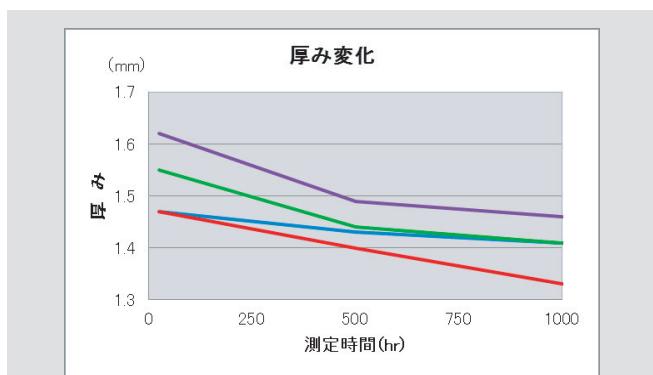


図4 120°C、圧縮率30%の各種放熱シートの厚み変化

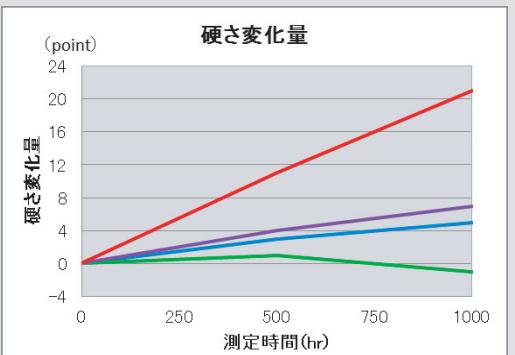


図5 120°C、圧縮率30%の各種放熱シートの硬さ変化量

4 成形性

「グレイザード®」は、先に述べたとおり、汎用の熱可塑性成形機で成形可能である。それにより、さまざまな形状の成形物を作製可能であり、肉厚も薄いもので0.2mm程度、厚いものでは6mm以上が可能である。また2色成形や他材質のインサート成形なども可能である。成形時の注意点は、成形温度が高いと樹脂の溶融粘度が低くなり、フィラーと樹脂が分離しやすくなるため、出来るだけ成形温度を低くする必要があることが挙げられる。この点を注意しておけば、比較的安定した成形が可能である（写真1は実際に押出機で成形したシート）。



写真1 押出成形シート 幅300mm×厚さ0.5mm

東亞合成ではこの点に着目し、厚さ0.1mmと非常に薄い熱伝導性シート「TCシリーズ」を開発した。そのラインナップを表4、シートを写真2に示す。

表4 「TCシリーズ」のラインアップ

| 項目 | TC-P3002 (開発品) | TC-30A (開発品) | 試験方法 |
|----------------------|-------------------------------|-------------------------------|------------|
| 分類 | 熱可塑性樹脂 | 熱硬化性樹脂 | — |
| 主成分 | アクリル樹脂 | 変性エポキシ樹脂 | — |
| シート厚さ(μm) | 100 | 100 | — |
| 比重 | 2.6 | 2.9 | JIS K 7112 |
| 熱伝導率 (W/m·K 23°C) | 1.0 | 2.9 | レーザー フラッシュ |
| ガラス転移温度 (°C) | -31 | 31 | JIS C 2151 |
| 体積抵抗率 (Ω · cm) | >10 ¹³ | >10 ¹⁴ | JIS C 2151 |
| 絶縁破壊強さ (kV/mm) | 30 | 24 | JIS C 2151 |
| 誘電率(1MHz) | 6.5 | 6.4 | JIS C 2151 |
| 誘電正接(1MHz) | 0.02 | 0.02 | JIS C 2151 |
| 高温耐久性 | 110°C下にて 重量減少<1% 形狀変化なし | 150°C下にて 重量減少<3% 形狀変化なし | 1000h加熱 |

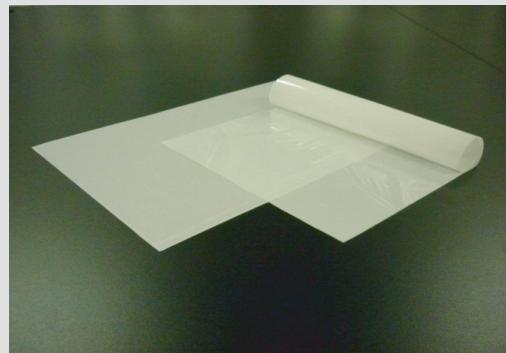


写真2 TCシリーズ（開発品） 幅300mm×厚さ0.1mm

Part II 東亞合成製品の紹介

5 热伝導性シート「TCシリーズ(開発品)」の特徴

絶縁タイプの放熱材料は、熱伝導性の低い樹脂成分に熱伝導性フィラーが多量に充填されているのが一般的であるが、その熱伝導率は電子機器やLEDの筐体あるいは基板を構成する金属材料と比べると低い。その為、この熱伝導性シートは極力薄くした方が効率よく熱伝導を行うことができると考えられる。

上記のうち、「TC-P3002」はアクリル樹脂をベースとした、柔軟性のある微粘着タイプのシートである。従来のアクリル樹脂系の熱伝導性シートと比べて、長期加熱による樹脂ヤセや熱変形を改善している点に特徴があり、110°Cで1000時間加熱した場合においても大きな重量減少や形狀変化が見られない。このことから長期間使用してもシート設置当初の熱伝達特性が維持できると期待できる。

「TC-30A」は、変性エポキシ樹脂をベースとした加熱硬化型の接着シートに開発したものである。表5に示すように、

150°Cの加熱圧着を施すことで、筐体や補強板、ヒートシンクとして用いられる銅、アルミニウム（Al）、ステンレス鋼（SUS）等の金属材料や、フレキシブルプリント基板材料として用いられるポリイミド（PI）フィルムおよびガラスエポキシ基板（FR-4）に対して優れた接着性を発現する。また、300°Cのはんだ処理に耐えうるだけの耐熱性を有しており、放熱性が求められる金属基板用の接着シートとして適用することが可能である。

また、150°Cで1000時間加熱した場合における重量減少や形状変化が小さいことから、車載用等、高い耐熱性が求められる用途への適用も期待できる。

表5 「TC-30A」の特性値

| 項目 | 試験結果 | 試験方法 |
|----------------------|-----------------|----------------------------|
| 90度はく離接着強さ (N/mm) | PI／銅箔 1.2 | 引張速度 50mm/分 測定温度25°C |
| | AI箔／AI箔 1.7 | |
| | AI箔／SUS 1.7 | |
| | AI箔／FR-4 1.4 | |
| はんだ耐熱性 (PI／銅積層品) | 300°C60秒 合格 | 120°C30分 熱処理後 |

接着条件:150°C1分、3MPaプレス後に150°C1時間の加熱養生

6 おわりに

今回紹介した高熱伝導熱可塑性エラストマー「グレイザード®」および熱伝導性シート「TCシリーズ」は、いずれも低分子シロキサンを含有しない新しい高熱伝導性材料である。それぞれの製品の特徴を活かし、現在電子機器やLED関連、自動車分野への市場展開を進めている。

今後も市場の要望に応じた技術開発を継続していきたい。