

# フレキシブルな高熱伝導性電子デバイス用材料の開発

生活資材開発課 早苗徳光

機械電子研究所 横山義之

## 1. 緒言

電子機器の小型軽量化が進み、部品実装の狭所化が求められる現状において、放熱対策は重要な課題である。その解決策の一つとして、形状の自由度や施工性に優れる高分子マトリクス系のフレキシブルな熱伝導性複合材が利用されている。しかし、熱伝導性能は無機フィラーの充填量に依存するため、高充填・高熱伝導化を図るとフレキシビリティは失われ、高分子マトリクスである利点を損なってしまう。本研究では、これらの特性を両立させるための基本的な材料特性の把握と、無機フィラーの表面処理による性能向上について検討を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 使用材料

マトリクスは二液性付加硬化型シリコーンゴム(RTV)とし、高強度タイプ(RTV-H)およびゲルタイプ(RTV-G)の2種を使用した。

熱伝導性無機フィラーは酸化マグネシウム(MgO)とし、平均粒径 2μm タイプ(MD<sub>2</sub>)および 20μm タイプ(MD<sub>20</sub>)の2種を使用した。

MgO の表面処理には、試薬のシラン系表面処理剤3種(SC-I~III)、ヘキサン、エタノールをそのまま用いた。水は蒸留水を用いた。

### 2.2 試験および評価

MgO の表面処理は、表1に示す割合で混合した材料を、フラスコ中で溶媒還流下2時間処理したのち、窒素ガスを流通させて溶媒を蒸発除去し、さらに乾燥機中、表面処理剤の沸点以上の温度で4時間処理した。

複合材は、所定の充填率となるよう MgO とマトリクスを混合し、フッ素樹脂製シートで挟んで平板状に整え、40°C で 24 時間硬化させ作成した。

複合材の熱伝導率は、ホットディスク方式により 20°C・65%RH 環境下で測定した。試験体形状は直径 13mm×厚さ 5mm とした。

表1 MgO 表面処理の配合割合

表面処理剤	配合割合(重量比)				
	MgO	SC	ヘキサン	エタノール	水
無し(blank)	100	-	-	100	2
SC- I	100	1	100	-	-
SC- II、III	100	1	-	100	2

複合材のフレキシビリティは、動的粘弾性測定における貯蔵弾性率(E')を指標とした。測定は、圧縮モード、周波数 1Hz にて行った。試験体形状は、直径 7mm×厚さ 5mm の円柱形状とした。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 マトリクスへの MgO の充填

MgO の充填量には限度があり、マトリクスが RTV-H の場合、表面処理の有無や処理剤種類に関係なく、MD<sub>2</sub> で 40vol%程度、MD<sub>20</sub> で 50vol%程度までであった。一方、マトリクスが RTV-G の場合は多くの MgO で硬化不良が発生し、複合材を作成できたのは、blank MD<sub>20</sub>、SC-I処理 MD<sub>20</sub>、SC-II処理 MD<sub>20</sub> の3種のみであった。また、これらは 50vol%程度まで充填可能であったものの、マトリクスの粘度が低いため 30vol%以下では沈降してしまい、均質な複合材が得られなかった。図1に、充填率が 40vol%のときの表面処理無し(blank)MgO/RTV-H 系複合材の断面を例示する。MgO の分散は比較的良好であるが、若干の界面剥離やボイドが確認される。

### 3.2 複合材の熱伝導率

作成した複合材の熱伝導率について検討した。MD<sub>20</sub>/RTV-H 系複合材の結果を図2に示す。図中、破線で示した曲線は Bruggeman 式による予測値である。図より、MgO 充填率が高くなるほど熱伝導率は向上するが、予測値と比較してやや低く、充填率 50vol%では計算値の約 8 割程度の値となった。また、表面処理の影響はほとんど見られなかった。図にはないが、MD<sub>2</sub>/RTV-H 系複合材、並びに、MD<sub>20</sub>/RTV-G 系複合材の熱伝導率もほぼ同様の結果となり、MgO 粒径やマトリックスの違いによる影響も見られなかった。以上の結果から、MgO とマトリクス界面の密着性は不充分で、今回使用した表面処理剤によっても改善できていないことが示唆された。

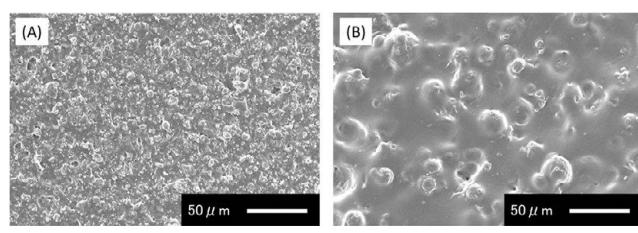


図1 充填率 40vol%の複合材断面

### 3.3 複合材のフレキシビリティ

次に、各複合材のフレキシビリティについて検討した。図3に、M<sub>D20</sub>充填系複合材の20°CにおけるE'を示す。なお、フレキシビリティの目安として、市販のシリコーンゴムシート(SR)と塩化ビニルシート(PVC)の値も示した。図より、MgO充填率の増加に伴いE'も高くなるが、マトリクスがRTV-Gの場合にはSRより低く、RTV-Hの場合にはPVCより低い値を示し、いずれもフレキシビリティを持つことが確認できた。感覚的にやや硬く感じられるPVC(約1×10<sup>8</sup>Pa)を上限と想定すると、E'が1×10<sup>7</sup>Paより低いマトリクスを選択する必要があると考える。

表面処理の影響については、SC-III処理の場合に最も顕著で、3.1項のとおり、マトリクスがRTV-Gの場合には硬化不良を引き起こし、RTV-Hの場合にもE'の低下が見られた。SC-IIIは構造中にビニル基を持っており、それがマトリクス分子鎖中の反応基(Si-H基)と反応して硬化を阻害することが原因の一つと考える。このことは逆に、正常な硬化が可能なだけのSi-H基をマトリクスに導入しておけば、マトリクスと表面処理剤間の結合を強固にできることを意味しており、表面処理を改善する一つの手がかりと考えられる。

## 4. 結言

フレキシブルな高熱伝導材料の開発を目的として、MgO/RTV系複合材の作成と性能向上について検討した。その結果、得られた複合材の熱伝導率は予測値より低くなり、界面の密着性が不充分と考えられた。そこで、MgOの表面処理による性能向上を試みたが、改善には至らなかつた。また、複合材のフレキシブル化については、マトリクスに求められるE'に関して知見が得られた一方、表面処理によってRTVの硬化が阻害される場合があるとわかつた。以上の結果から、マトリクス側からのアプローチも含め、表面処理技術の開発による界面の密着性改善が課題として残された。

キーワード：高熱伝導性、フレキシビリティ、シリコーン、酸化マグネシウム、表面処理

Development of flexible composite materials for high thermal conductivity electronic devices  
Norimitsu SANAE and Yoshiyuki YOKOYAMA

For the purpose of development of the flexible and highly thermally conductive materials, we molded composite materials filled with magnesium oxide (MgO) in crosslinked silicone rubber, and examined the improvement of their performance. As a result, although the flexibility of the composite materials could be obtained, the thermal conductivity was lower than expected, for example, when the MgO filling rate was 50vol%, the measured value was about 80% of the predicted value. Therefore, we tried to improve the performance by surface treatment of MgO, but we could not be improved it.

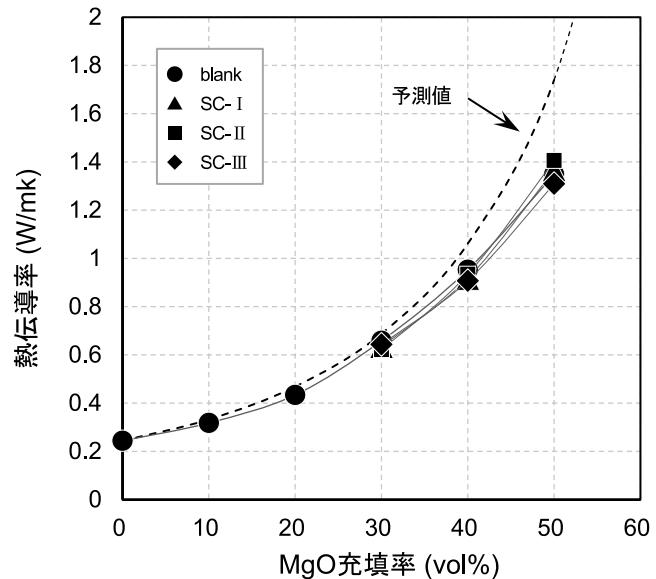


図2 M<sub>D20</sub>/RTV-H系複合材の熱伝導率

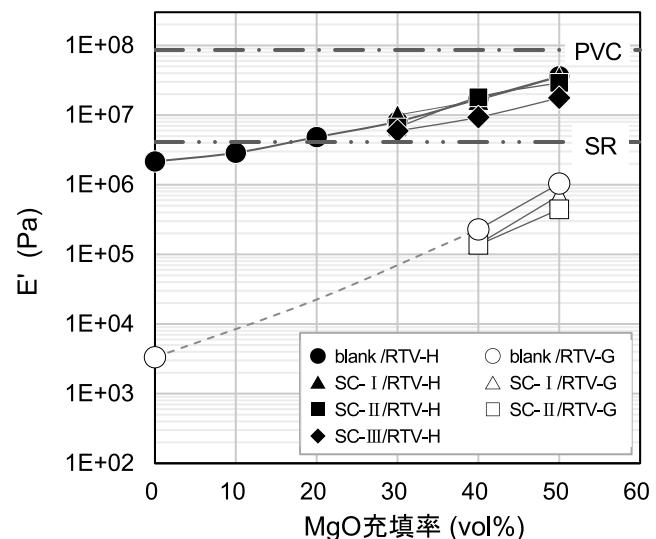


図3 M<sub>D20</sub>充填系複合材の貯蔵弾性率 (at 20°C)