

整理番号	2023-J-023	報告者氏名	稲葉 優文
------	------------	-------	-------

研究課題名 1枚で熱分布を作り出す熱配線シートの開発

<代表研究者> 機関名： 九州大学 職名： 助教 氏名： 稲葉優文

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

リチウムイオン電池において不均一な発熱が大きな問題になっている。電池内で発熱領域とそうでない領域が存在することにより電池の寿命が低下してしまうというものである。これを解決するには電池内の発熱領域にはより高熱伝導な領域を保持するシートを接触させて非発熱領域にはそれほど熱伝導率の高くない領域で問題ないようなシートの作製が適している。これにより必要とするフィルターの質量も低減し、コスト削減につながったうえで効率的な熱伝導経路と電池内の均温を実現することができる。我々はこのような熱分布伝熱シートを提案した。

液体状態の樹脂に高濃度のフィルター懸濁液を滴下し、その後電界整列を施すことで、懸濁液滴下部分にのみ高密度な整列フィルター鎖を形成した。熱特性の評価にはスポット周期加熱放射測温法を用い、整列部（高密度フィルター部）とその周辺での熱拡散率に差が形成され、1枚のシート内に意図的に異なる熱特性の部位を形成可能であることを実証した。

## &lt;研究発表（口頭、ポスター、誌上別）&gt;

## 論文

- Masafumi Inaba, Seiya Seike, Yingchen Chen, Soichiro Ichiki, Yoshihiko Kubota, Shinya Ohmagari, Michihiko Nakano, Junya Suehiro, "Effect of electrically aligned polycrystalline diamond flakes on the through-plane thermal conductivity of heat conduction sheets" *Func. Diam.* 4(1), 2423643. (2024).
- **Masafumi Inaba**, Yingchen Chen, Seiya Seike, Jun Hirotani, Michihiko Nakano, Junya Suehiro, "Effect of the gravitational force on electrical alignment of diamond filler particles in polydimethylsiloxane-based heat-conduction sheets" *Diam. Relat. Mater.*, 146, 111246 (2024).

## 国際会議発表

- Masafumi Inaba, Michihiko Nakano, Junya Suehiro, "Device and composite applications of electrical manipulation of particles: dielectrophoresis and electrical alignment" Design & Engineering by Joint Inverse Innovation for Materials Architecture (DEJI2MA-3), Waseda University, Shinjuku-ku, Tokyo, Japan, Oct. 20, 2023. (Invited, Oral) I-5

## 国内学会発表

- 稲葉 優文, 市来 宗一郎, 久保田 吉彦, 中野 道彦, 末廣 純也, "回転電極を用いた電界整列による伝熱シートの熱伝導率向上" 令和 6 年 電気学会 基礎・材料・共通部門大会, 愛媛大学城北キャンパス, 愛媛県松山市, 2024 年 9 月 2-4 日 (口頭) 3-B-a2-4
- 市来 宗一郎, 清家 清弥, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, "電界整列ダイヤモンド鎖の密度を意図的に変化させた熱分布伝熱シートの作製" 2024 年第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 東京都市大学世田谷キャンパス, 東京都世田谷区, 2024 年 3 月 22-25 日(口頭) 22a-12P-7
- 市来宗一郎, 清家清弥, 稲葉優文, 中野道彦, 末廣純也, "電界整列ダイヤモンド粒子をフィラーに用いた意図的熱伝導率分布を有する伝熱シートの作製" 第37回ダイヤモンドシンポジウム, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県平塚市, 2023 年 11 月 14-16 日 (ポスター) P1-02
- 稲葉優文, 清家清弥, 市来宗一郎, 中野道彦, 末廣純也, "ダイヤモンドフィラーを電界整列した伝熱シートに対する重力の影響" 第 37 回ダイヤモンドシンポジウム, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県平塚市, 2023 年 11 月 14-16 日 (口頭) 303
- 清家清弥, 市来宗一郎, 大曲新矢, 稲葉優文, 中野道彦, 末廣純也, "電界整列多結晶ダイヤモンドフレークの伝熱シートフィラーへの応用" 第 37 回ダイヤモンドシンポジウム, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県平塚市, 2023 年 11 月 14-16 日 (ポスター) 304

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

## 目的

半導体デバイスの高性能化、高集積化に伴い、電子デバイスの発熱が問題になっているため、小さい素子から効率よく熱を逃がす、サーマルマネジメントの重要性が増している。放熱技術の向上は、デバイスの損失低減や長寿命化、冷却効率向上に伴う省エネ化、冷却機能の簡素化によるシステムの小型化など、高い経済効果がある。昨今の電子デバイスでは、半導体素子のモールド内の熱抵抗は低減されてきているものの、最終的なヒートシンクへの熱伝達を担う熱界面材料（Thermal interface material: TIM）の高性能化が未達である。富士経済研究所のレポート[1]によれば 2023 年の TIM 関連放熱関連の経済規模は 10 万ドル程度で、今後も増加傾向と予想され、国内では化学メーカーなどが研究開発を進めている。現状では TIM は放熱系全体の半分程度の熱抵抗に相当している。この熱抵抗低減には、TIM の熱伝導率の向上が急務である。

デバイスとヒートシンクなどの放熱構造の間には、表面の粗さに起因する空隙層が存在するため、熱が伝わりにくい。これを克服するには、凹凸に追従する柔軟性、面直の熱輸送方向に高い熱伝導性、高周波・パワー用途ではさらに高い絶縁性を同時に満たした TIM の 1 種として、高熱伝導・高絶縁・フレキシブルな放熱シートが要求される。放熱シートは絶縁・高熱伝導性のフィラーと柔軟な樹脂母材により構成される複合材料である。シリコンやエポキシなどの典型的な弾性樹脂基材の熱伝導率は $\sim 0.2 \text{ W/mK}$ と低く、他の多くのポリマー材料も一般に熱伝導率が低い。これまで、放熱シートの高熱伝導率化は、熱伝導性フィラーの高充填化により実現されてきたが、高充填化は柔軟性の低下、フィラーの使用量増加による高コスト化、比重の大きいフィラーによる重量化につながり好ましくない。しかし、フィラー充填量を低下させれば熱伝導性が低下する。現状の製品では、柔軟性をある程度犠牲にした高熱伝導率化が行われているが、作業時のリワーク性低下、経年時のクラック発生などの課題がある。このトレードオフを解決するには、高熱伝導率のフィラーを、充填率を抑えつつ混入し、高い熱伝導率と柔軟性、さらに特にパワーデバイス用途ではデバイスとの電気絶縁（電動自動車では 1200 V 以上、低誘電損）を同時に達成する必要がある。その手段としては、フィラー形状の変更とフィラーの配置制御、フィラー・樹脂間の界面制御・異径粒子の複合による内部の熱抵抗低減などが挙げられる。

フィラーの配置制御においては、主にフィラーの鎖状構造を形成すること（ここでは整列と呼ぶ）が試みられている。フィラーの整列には、剪断場による整列、磁界整列、電界整列等が考案されている。剪断場による整列は、主に 2 次元材料などを面内方向に整列することに用いられるが、面直方向への整列が困難である。磁界整列は、高磁場により粒子を配向させることは可能であるが、整列した鎖状構造の形成には向かない。磁性微粒子をフィラーに付加し、磁石として整列させることは可能であるが、工程が増えるデメリットがある。電界整列は、フィラーの誘電分極を利用した整列方法であり、材料を選ばないメリットがある。

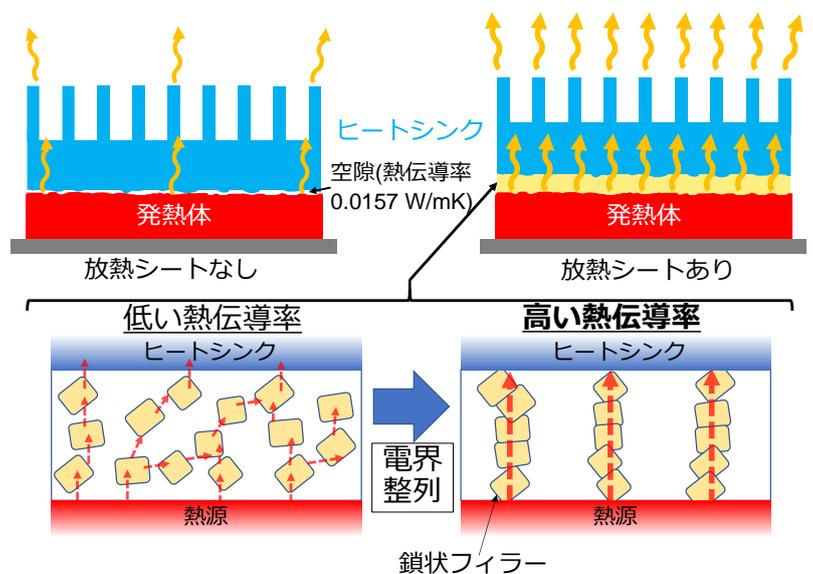


図 1 フィラーの電界整列により伝熱シート（放熱シート）の熱伝導性と柔軟性密着性を両立する。

筆者は、高熱伝導・高絶縁・フレキシブルな放熱シートの開発にむけて、樹脂中における絶縁・高熱伝導性フィラーの電界整列に取り組んでいる(図 1)。電界整列法は電圧を印加することによるフィラーの誘電分極を利用したものである。電圧を印加すると樹脂中でフィラーが正と負に分極し、分極したフィラー同士がクーロン力で引き合うことにより整列する。さらに、シートを電極に挟んで電圧を印加するだけでなく電圧の印加中に回転を加えることでフィラーの樹脂中における沈降の抑制に成功している[2,3]。フィラーの沈降は重力による影響のもので、それを打ち消す方向にゆっくりと回転をさせながら電圧を印加することでシート下部から上部まで一直線に整列したサンプルを作製することができる。この回転機構を有した電圧印加装置を利用することにより、フィラー濃度を変化させた場合においていずれの場合でも熱伝導率が向上していることが分かっている。最大の熱伝導率についてはフィラー濃度 80 wt% (54 vol%)において 1.92 W/m K を記録している。

リチウムイオン電池において不均一な発熱が大きな問題になっている。電池内で発熱領域とそうでない領域が存在することにより電池の寿命が低下してしまうというものである。これを解決するには電池内の発熱領域にはより高熱伝導な領域を保持するシートを接触させて非発熱領域にはそれほど熱伝導率の高くない領域で問題ないようなシートの作製が適している。これにより必要とするフィラーの質量も低減し、コスト削減につながったうえで効率的な熱伝導経路と電池内の均温を実現することができる。我々はこのような熱分布伝熱シートを提案した(図2)。ここで、本申請時点で熱配線シートと呼称したものと同様のサンプルを熱分布伝熱シートと改名している。

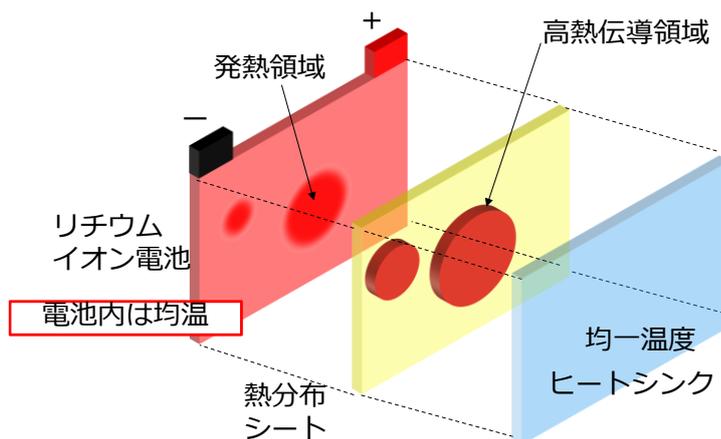


図2 熱分布伝熱シートのコンセプト図。均一温度のヒートシンクと不均一に発熱するデバイスの間に挿入することで発熱体内を均一温度に保つ。

### 熱分布シートの作製

PET フィルム(10 cm×10 cm)とシリコンシート(9 cm×9 cm シートに 4 cm×4 cm の井戸を作製)を用いて型枠を作製した(図3)。PDMS(dimethylpolysiloxane)に硬化剤、小粒径ダイヤモンド(20 μm)を加えた低濃度懸濁液を作り型枠に流し込んだ。低濃度懸濁液を全体に敷き詰めたシートの上から大粒径ダイヤモンド(50 μm)の PDMS 懸濁液を滴下した。滴下後シートを 30 分間真空脱泡した。脱泡完了後、PET フィルムで蓋をしてシートを平行平板回転電極で挟む。10 分間電圧を印加しながら回転させた。その後シートを硬化させるためにヒーター温度 80°C で 50 分間熱を加えた。その際電圧と回転は維持したまま硬化をした。印加電圧は 5.0 kVpp, 60 Hz の交流電界である。

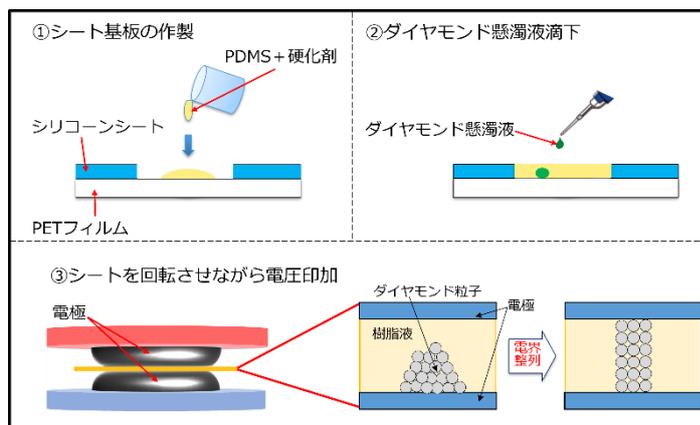


図3 熱分布伝熱シートの作製プロセス

## 結果

## シートの熱伝導性評価

## (3.2) 熱分布伝熱シートの観察

図4はシート断面から観察した光学顕微鏡像である。電圧なし・回転なしの時にはフィラーが完全にまとまっており（フィラー凝集体）、滴下後変化していない様子がわかる。電圧印加あり・回転なしの場合、重力の影響でフィラー凝集体は沈降しているものの、凝集体表面からいくつかの粒子が電圧方向に引き出される形で整列している様子が観察された。電圧印加・電極回転した場合は、シート下部から上部にかけてフィラーが分布していることがわかる。

実際に熱伝導率に差があるかを確認するために、熱拡散率の測定を行った。一般的な均質材料に対してはレーザーフラッシュ法などを用いて測定することが可能であるが、今回我々が作製したような熱伝導率分布シートに関してはその測定方法は適していない。それは熱伝導率に分布があることを示す必要性があるためである。それを実現するためにスポット周期加熱放射測温法を用いた装置(株式会社ベテル社製)で測定を行った。

スポット周期加熱放射測温法とは、資料の厚み方向及び面内方向の熱拡散率が測定でき、測定できる熱拡散率の範囲が広いなどの特徴を持つ優れた測定手法である[4]。これは試料の表面を周期的に加熱し、試料の裏面の温度上昇を放射温度計で計測して熱拡散率を求める測定法である。試料の厚み方向だけでなく面内方向も測定でき、試料の平均的な熱拡散率だけでなく局所的な分布も求めることができる。今回は厚み方向の熱拡散率の測定を行ったため、加熱点と検出点が同軸になるように設定し、ポイントごとに軸を走査して測定を行った。測定条件は、測定範囲10mm×10mmにおいて0.5mmピッチで測定を行っている。1つのポイントにおいて周波数を変化させながら加熱点と検出点の位相差を計測し、横軸に周波数の平方根、縦軸に位相差をプロットすることで線形のグラフを得ることができる。この傾きと $\theta = d \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \cdot \sqrt{f}$ の式より熱拡散率 $\alpha$ を求めることができる。今回は厚み方向の熱拡散率の測定を行ったため、加熱点と検出点が同軸になるように設定し、ポイントごとに軸を走査して測定を行った。測定条件は、測定範囲10mm×10mmにおいて0.5mmピッチで測定を行った。1つのポイントにおいて周波数を変化させながら加熱点と検出点の位相差を計測し、横軸に周波数の平方根、縦軸に位相差をプロットすることで線形のグラフを得ることができる。このグラフの傾きから熱拡散率 $\alpha$ を求めることができる。

実際に発熱点と検出点の位相差を計測して位相差を出し、プロットしたものが図8である。測定したシートは、20 $\mu\text{m}$ のダイヤモンドとPDMSの懸濁液を全体に分散した3 vol%シートに50 $\mu\text{m}$ ダイヤモンドを54 vol%充填した懸濁液を滴下したものである。



電圧印加なし・回転なし



電圧印加あり・回転なし



電圧印加あり・回転あり

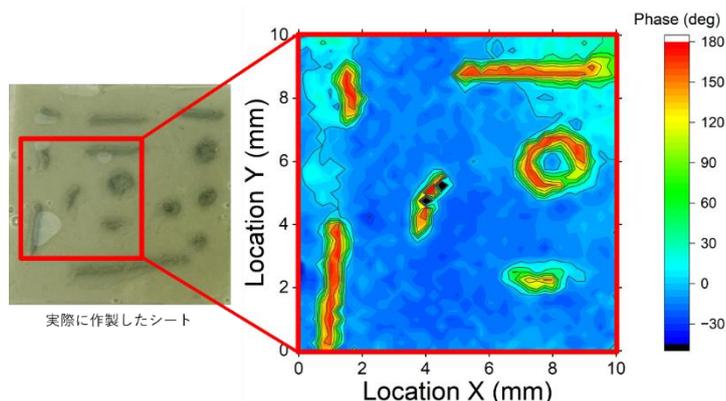
図4 熱分布伝熱シート(50 $\mu\text{m}$ :5 $\mu\text{m}$ =7:3)の断面図(65 vol%懸濁液を滴下)

図5 周期加熱放射測温法による位相差の測定

高熱伝導率であると考えられる大粒径高濃度フィラーを含むポイントと、低熱伝導率であると考えられる小粒径低濃度フィラーを含むポイントでは明らかに大きな位相差が生じている。その位相差をもとに熱拡散率の計算を行うと、熱拡散率の高いところで $0.09\text{ mm}^2/\text{s}$ 、低いところで $0.06\text{ mm}^2/\text{s}$ という結果が得られた。これより1枚のシート中で熱伝導率に分布を持たせたシートを作製することができたといえる。

#### 参考文献

1. <https://www.fuji-keizai.co.jp/report/detail.html?code=162302807>
2. [https://shingi.jst.go.jp/list/list\\_2023/2023\\_kyushu-u.html#20231012X-007](https://shingi.jst.go.jp/list/list_2023/2023_kyushu-u.html#20231012X-007)
3. M. Inaba, Y. Chen, S. Seike, J. Hirotsu, M. Nakano, J. Suehiro, "Effect of the gravitational force on electrical alignment of diamond filler particles in polydimethylsiloxane-based heat-conduction sheets", *Diam. Relat. Mater.*, 146, 111246 (2024).
4. 羽鳥仁人, “周期加熱法を用いた高空間分解能熱浸透率測定法と 高機能熱拡散率測定手法の開発”. *エレクトロニクス実装学会誌*, 24 (2) , 168-173, 2021