

整理番号	2019-J-028	報告者氏名	稲葉 優文
------	------------	-------	-------

研究課題名

フレキシブル伝熱シートの高熱伝導率化と内部構造評価

<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>

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し、高い熱伝導率をもつフレキシブル伝熱シートが要求される。フレキシブル伝熱シートには、柔軟性を持つ樹脂に、高熱伝導率のフィラーを混入した複合材料が用いられるが、フィラーの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につながり好ましくない。高熱伝導率のフィラーを、充填率を抑えつつ混入することで、高い熱伝導率と柔軟性、さらにデバイスとの電気絶縁が同時に達成できれば、非常に有望なフレキシブル伝熱シートが実現でき、半導体デバイスのサーマルマネジメントに大きく貢献できる。そこで、ダイヤモンド微粒子の誘電泳動技術の確立と、そのフレキシブル伝熱シートへの応用を本研究の目的とした。

研究を①ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価、②ダイヤモンド微粒子を垂直方向に配向させたフレキシブル伝熱シートの作製に大きく分割した。①について、キャスルウォール型の電極を用い、ダイヤモンド微粒子が塩化ナトリウム水溶液中で電圧印加（電界勾配）により移動することを確認した。条件により、正の誘電泳動力、負の誘電泳動力が働いていた。電圧印加の周波数と、水溶液の導電率を変化させ、ダイヤモンド微粒子に誘電泳動力が働かないクロスオーバー周波数を求めた。このフィッティングパラメータから、ダイヤモンド微粒子表面が水溶液中で導電性を持ち、その値は 1 nS 程度であることがわかった。これにより、ダイヤモンド微粒子で誘電泳動可能であることが実験的に示された。本件は Jpn. J. Appl. Phys. に掲載された。

②について、ダイヤモンド微粒子が、アクリル樹脂溶媒中で整列するかを確認するため、平行に導線を配した櫛歯電極構造の上にダイヤモンド微粒子懸濁アクリル樹脂溶媒を滴下し、挙動を観察した。数分の電圧印加でダイヤモンド微粒子が鎖状に連なった構造を形成することが確認できた。次に、ダイヤモンド微粒子を面直方向に整列する系にて、伝熱シートを作製した。作製した伝熱シートの熱伝導率を、電圧印加を行った場合と行わなかった場合で比較し、電圧印加により、熱伝導率は 0.5 W/mK から 0.8 W/mK に向上した。この値はアクリル樹脂の場合 (0.22 W/mK) の 4 倍であり、ダイヤモンド微粒子をフィラーにすることで熱伝導率向上の効果が確認できた。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

学会発表

- 林 将平, 李 赫男, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, “ダイヤモンド微粒子の誘電泳動による電気的特性調査” 第33回ダイヤモンドシンポジウム, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区, 2019年11月13-15日. (ポスター) 2P-25
- 李 赫男, 林 将平, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, “ダイヤモンド微粒子フィラーの電界整列が複合材料の熱伝導特性に及ぼす影響” 誘電体・絶縁材料/放電・プラズマ・パルスパワー/高電圧 合同研究会, 三菱電機健康保険組合 湯布郷館, 大分県由布市湯布院町, 2020年1月24-25日. (口頭) DEI-20-043/EPP-20-021/HV-20-057
- 李 赫男, 林 将平, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, “電界整列を用いたダイヤモンド微粒子複合伝熱シートの熱伝導特性の向上” 令和2年電気学会全国大会, 2020年3月11-13日. (口頭) 大会中止
- 李 赫男, 神村 尊, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, “アクリル樹脂シートに混合したダイヤモンド微粒子の電界整列と熱伝導特性への影響”, 第73回電気, 情報関係学会九州支部連合大会, オンライン, 2020年9月26-27日. (口頭) 03-1P-09
- 神村 尊, 李 赫男, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也, “電界整列法で作製したダイヤモンドフィラー複合伝熱シートの熱伝導特性シミュレーション”, 第73回電気, 情報関係学会九州支部連合大会, オンライン, 2020年9月26-27日. (口頭) 03-1P-10

英字論文

- M. Inaba, S. Hayashi, H. Li, M. Kamimura, M. Nakano, J. Suehiro, "Dielectrophoretic properties of submicron diamond particles in sodium chloride aqueous solution" Jpn. J. Appl. Phys., 59, 046502 (March 2020). (DOI: 10.35848/1347-4065/ab7baf).
- M. Nakano, Z. Ding, M. Inaba, J. Suehiro, "DNA-induced changes in traveling wave dielectrophoresis velocity of microparticles" AIP Advances 10, 1, 015236 (January 2020). (DOI: 10.1063/1.5129725)
- M. Inaba, M. Kono, T. Oda, N. Phansiri, M. Nakano, J. Suehiro, "Response properties of nitrogen dioxide gas sensors with tin oxide decorated carbon nanotube channel fabricated by two-step dielectrophoretic assembly" AIP Adv., 10, 055223 (May 2020). (DOI: 10.1063/5.0008188)

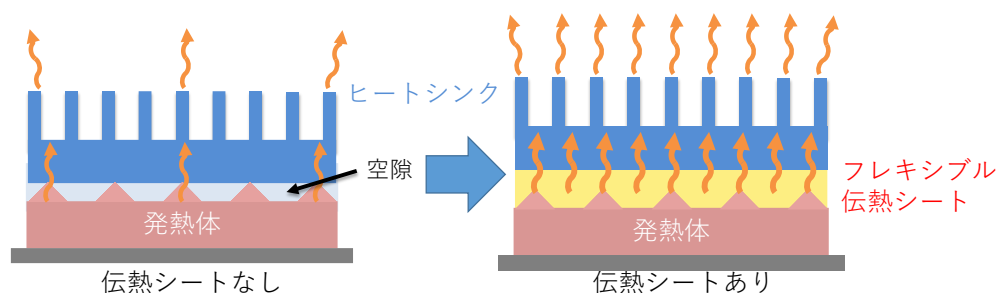
<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

研究の目的

電力駆動系の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。近年車載応用などで急速に市場が拡大している SiC パワーデバイスも例外でなく、SiC 自体の熱伝導率は高いものの、放熱部との接触熱抵抗が大きいと、放熱を効果的に実行できない。パワーデバイスは温度で特性が大きく変化することに加え、封止材などが温度上昇により劣化し、最終的にデバイス破壊につながることも懸念される。したがって、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。

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し、高い熱伝導率をもつフレキシブル伝熱シートが要求される(図 1)。フレキシブル伝熱シートには、柔軟性を持つ樹脂に、高熱伝導率のフィラーを混入した複合材料が用いられるが、フィラーの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につながり好ましくない。高熱伝導率のフィ

ラーを、充填率を抑えつつ混入することで、高い熱伝導率と柔軟性、さらにデバイスとの電気絶縁が同時に達成できれば、非常に有望なフレキシブル



伝熱シートが実現でき、半導体デバイスのサーマルマネジメントに大きく貢献できる。

そこで、ダイヤモンド微粒子の誘電泳動技術の確立と、そのフレキシブル伝熱シートへの応用を本研究の目的とする。

研究を①ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価、②ダイヤモンド微粒子を垂直方向に配向させたフレキシブル伝熱シートの作製に大きく分割する。

①ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価

ダイヤモンド微粒子の粒径、溶液を変化させ、誘電泳動の交流印加周波数を変化させることで誘電泳動特性の正負（微粒子が高電界部に移動する場合が正）を判定し、誘電泳動力が働かないクロスオーバー周波数を取得する。クロスオーバー周波数と、溶液の物性値から、ダイヤモンド微粒子のバルク・表面の電気物性を評価できる。加えて、ダイヤモンドの表面官能基を制御し、その効果を確認する。

②ダイヤモンド微粒子を垂直方向に配向させたフレキシブル伝熱シートの作製

アクリル、シリコン樹脂中にダイヤモンド微粒子を分散した溶液に、櫛歯電極構造により電界形成することでダイヤモンド微粒子を垂直配向させる。ダイヤモンド微粒子を樹脂に分散する際、ダイヤモンドの表面処理が重要になると考えられる。疎水性の樹脂を用いる場合、ダイヤモンド微粒子表面も疎水性が望ましいのか等、表面修飾を制御することで分散性の最適化を図る。これらにより形成したダイヤモンドフレキシブル伝熱シートの、縦方向の熱伝導率を評価する。評価には熱流測定法（自製装置による簡易測定）とフラッシュアニール法（外部委託）を併用する。また、電子デバイス向け伝熱シートには電気絶縁性も重要であるので、これに関しても評価する。加えて、フレキシブル伝熱シート中のフィラーの配置を知るために、既存の蛍光顕微鏡に共焦点スリットを導入した共焦点蛍光顕微鏡を用いて、ダイヤモンドの蛍光を 3 次元的に取得し、誘電泳動配向の効果を確認する。また、この評価からのフィードバックを得て、伝熱シートの内部構造最適化を行う。

経過

①ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価

ダイヤモンド微粒子の粒径、溶液を変化させ、誘電泳動の交流印加周波数を変化させることで誘電泳動特性の正負（微粒子が高電界部に移動する場合が正）を判定し、誘電泳動力が働かないクロスオーバー周波数を取得した。クロスオーバー周波数と、溶液の物性値から、ダイヤモンド微粒子のバルク・表面の電気物性を評価した。ここでは、市販のダイヤモンド微粒子をそのまま用いた。

ダイヤモンドの表面官能基を制御については現在研究途上である。ダイヤモンドの表面水素化のために、1000°C程度での処理が可能な赤外線ランプアニール炉（図 2）を導入した。しかし、新型コロナウイルスの流行により、2020 年度上期は十分に実験できず、今後、ダイヤモンドの表面官能基に関する研究を実施する予定である。

②ダイヤモンド微粒子を垂直方向に配向させたフレキシブル伝熱シートの作製

まず、ダイヤモンド微粒子がアクリル樹脂溶媒中で整列するかを確認するため、図3のような電極系にて、面内方向に電界を印加し、整列性を評価した。ダイヤモンド微粒子は、ミクロンオーダーのものを用いた。

樹脂溶媒中でダイヤモンド微粒子が整列することを確認した後、図4のような電極構成で、縦方向に不平等な電界を印加した。これにより樹脂溶媒を重合させたときに、ダイヤモンド微粒子の鎖状構造が構成されるはずである。この熱伝導率を評価するために、COMSOL multiphysics を用いて、熱伝導率を予想した。また、作製した伝熱シートの評価には定常熱流法を用いた。この測定装置は、名古屋大学廣谷助教に協力を仰ぎ、本グループで構成した(図5)。

樹脂とフィラーの混合の際、これまでは小型の攪拌装置を用いていたが、これでは混合中に気泡が入る問題があった。これを解消するため、ミックスローターを購入した。樹脂溶媒中の気泡混入の抑止に効果的に使用できている。

現在のところ、伝熱シートの作製、熱伝導率の評価が可能な実験系が確立されたが、伝熱シート中のフィラーの整列の確認、整列挙動観察が未達成である。過去に AlN 微粒子を用いた伝熱シート作製の際には、微粒子が電界整列中に沈降し、有効な熱伝導パスを形成できないことが示唆されている。この評価は今後行う。また、ダイヤモンド微粒子が Z 方向に整列することを確認するための共焦点顕微鏡の構築は、他の予算と合わせて現在構築中である。

電界整列中の微粒子の沈降に関しては、電界整列時の電界印加方法の工夫、電界整列時にサンプルを揺動する等の方法を検討する。



図2 赤外線ランプアニール炉

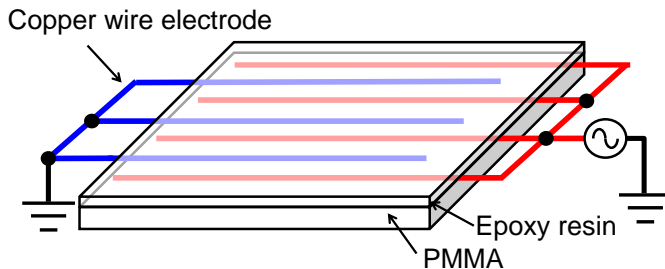


図3 高電圧印加可能な櫛歯電極構造 (面内方向整列)

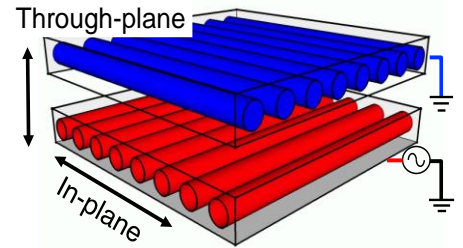


図4 交差櫛歯電極構造 (面直方向整列) 交差部に高電界が印加できる

結果、考察

①ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価

キャスルウォール型の電極を用い、ダイヤモンド微粒子が塩化ナトリウム水溶液中で電圧印加 (電界勾配) により移動することを確認した (図6)。条件により、正の誘電泳動力 (図6(b)、高電界部に集積)、負の誘電泳動力 (図6(c)、低電界部に集積) が働く。電圧印加の周波数と、水溶液の導電率を変化させ、ダイヤモンド微粒子に誘電泳動力が働かないクロスオーバー周波数を求め、図7に示す。

フィッティングカーブ (図7実線) から、ダイヤモンド微粒子表面が水溶液中で導電性を持ち、その値は1 nS程度であることがわかった。これは先行研究でラテックス微粒子の表面導電度と同等であることも確認できた。また、溶液伝導度が高い領域でフィッティングカーブと実験結果が大きく異なったが、これは溶液の熱対流の効果である。これにより、ダイヤモンド微粒子で誘電泳動可能であることが実験的に示された。本件は Jpn. J. Appl. Phys.に掲載された。

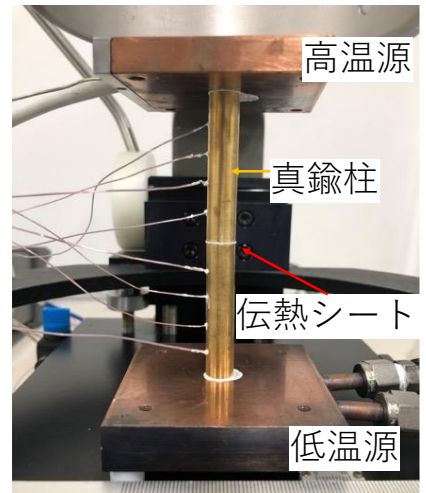
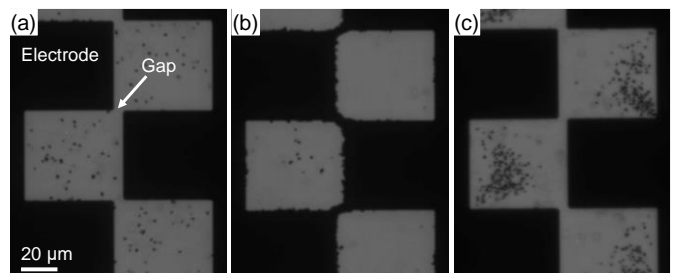


図5 熱伝導率測定装置 (定常熱流法)

→図6 キャスルウォール電極上のだいたったダイヤモンド微粒子に電界を印加した際の挙動 (a) 印加前、(b) 印加後 (正の誘電泳動) (c) 印加後 (負の誘電泳動)



②ダイヤモンド微粒子を垂直方向に配向させたフレキシブル伝熱シート

ダイヤモンド微粒子が、アクリル樹脂溶媒中で整列するかを確認するため、平行に導線を配した櫛歯電極構造の上にダイヤモンド微粒子懸濁アクリル樹脂溶媒を滴下し、挙動を観察した。数分の電圧印加でダイヤモンド微粒子が鎖状に連なった構造を形成することが確認できた(図8)。このとき、印加電圧は、本グループで過去にAlNの微粒子の電界整列を実施した条件と同様の3kV, 4kHzの交流とした。次に、ダイヤモンド微粒子を面直方向に整列する系(図4)にて、伝熱シートを作製した。このとき、ダイヤモンドフィラーは60 wt%となるように調製した。図9に、作製した伝熱シートの熱伝導率を、電圧印加を行った場合と行わなかった場合と比較した。電圧印加によ

り、直径30 μm のダイヤモンド微粒子混合伝熱シートの熱伝導率は0.5 W/mKから0.8 W/mKに向上した。この値はアクリル樹脂の場合(0.22 W/mK)のおよそ4倍であり、ダイヤモンド微粒子をフィラーにすることで熱伝導率向上の効果が確認できた。COMSOLの有限要素法シミュレーションにより、この熱伝導率を評価した。図10に、シミュレーションモデルの模式図を示す。円筒状の樹脂中に、球形のダイヤモンド微粒子が鎖状に存在することを仮定し、ダイヤモンド/樹脂界面に界面熱抵抗を導入した。シミュレーション上で界面熱抵抗を変化させたときの熱伝導率を図11に示す。界面熱抵抗

が $10^{-8} \text{ Km}^2/\text{W}$ 以下である時、熱伝導率は1.6 W/mKでほぼ一定となった。これは、界面熱抵抗が十分に小さく、系の熱伝導率に影響しないことを意味している。界面熱抵抗が大きくなると、ダイヤモンド微粒子の高い熱伝導率を反映することが出来ず、シートの熱伝導率が低下する。本研究で作製した電界整列伝熱シートの熱伝導率は0.8 W/mKであり、ここでシミュレーションした系が実際を模倣しているとすれば界面熱抵抗は $10^{-6} \text{ Km}^2/\text{W}$ 程度と予想される。本研究の方法では、ダイヤモンドと樹脂間には化学結合が形成されていないと考えられ、これにより界面熱抵抗が上昇していると予想される。今後、界面熱抵抗を低減し、効果的な熱伝導率を実現するために、シリコンカップリング剤などを用いてダイヤモンド微粒子-樹脂間に化学結合を形成し、熱伝導率向上を図る予定である。

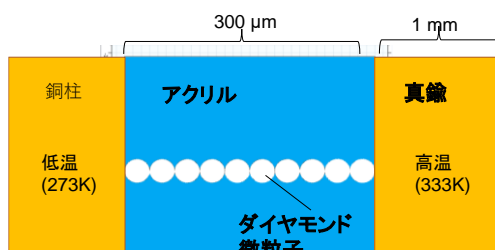


図10 電界整列したダイヤモンド微粒子が樹脂中に存在する電界整列伝熱シートのシミュレーションモデル。定常熱流法の測定様式を反映している。

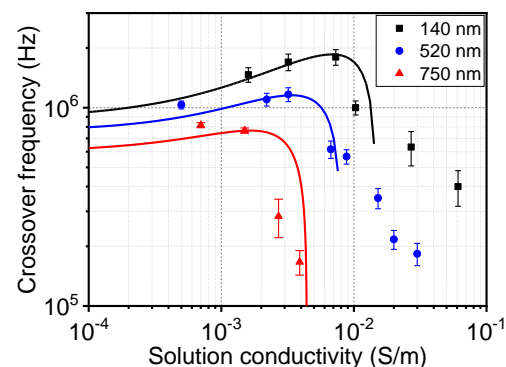


図7 NaCl水溶液中のダイヤモンド微粒子のクロスオーバー周波数

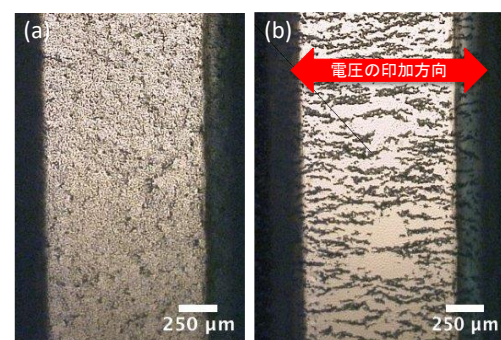


図8 アクリル樹脂溶媒中でのダイヤモンド微粒子の電界整列挙動(a)印加前(b)印加後

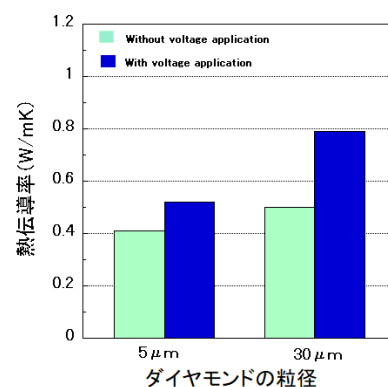


図9 電界印加の有無による伝熱シートの熱伝導率の変化

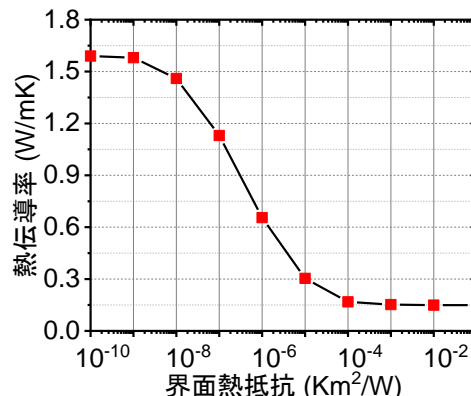


図11 界面熱抵抗を変化した際の熱伝導率のシミュレーション結果