



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I848917 B

(45)公告日：中華民國 113 (2024) 年 07 月 21 日

(21)申請案號：107131242

(22)申請日：中華民國 107 (2018) 年 09 月 06 日

(51)Int. Cl. : C08K7/00 (2006.01)

C08K3/38 (2006.01)

C09K5/14 (2006.01)

(30)優先權：2017/09/06 日本

2017-171087

(71)申請人：日商電化股份有限公司(日本) DENKA COMPANY LIMITED (JP)

日本

(72)發明人：山縣利貴 YAMAGATA, TOSHITAKA (JP)；和田光祐 WADA, KOSUKE (JP)；金子政秀 KANEKO, MASAhide (JP)

(74)代理人：林彥丞

(56)參考文獻：

CN 105244335A

JP 2017-28128A

JP 2017-82091A

審查人員：簡昭莢

申請專利範圍項數：2 項 圖式數：0 共 10 頁

(54)名稱

熱傳導性薄片及散熱構件

(57)摘要

本發明提供一種熱傳導性優異的薄片，特別是提供一種適合作為電子零件用散熱構件的熱傳導性薄片。一種熱傳導性薄片，其係將鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子分散在熱硬化性樹脂中而形成，其特徵在於：該二次聚集粒子係為 50 μ m 以上 120 μ m 以下的平均粒子徑、51% 以上 60% 以下的氣孔率，且在累積破壞率 63.2% 時的粒子強度為 0.2MPa 以上 2.0MPa 以下，該熱傳導性薄片中的該二次聚集粒子的填充率為 50 體積% 以上 70 體積% 以下。



I848917

【發明摘要】

【中文發明名稱】

熱傳導性薄片及散熱構件

【中文】

本發明提供一種熱傳導性優異的薄片，特別是提供一種適合作為電子零件用散熱構件的熱傳導性薄片。一種熱傳導性薄片，其係將鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子分散在熱硬化性樹脂中而形成，其特徵在於：該二次聚集粒子係為 $50\mu\text{m}$ 以上 $120\mu\text{m}$ 以下的平均粒子徑、51%以上60%以下的氣孔率，且在累積破壞率63.2%時的粒子強度為0.2MPa以上2.0MPa以下，該熱傳導性薄片中的該二次聚集粒子的填充率為50體積%以上70體積%以下。

【發明說明書】

【中文發明名稱】

熱傳導性薄片及散熱構件

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種熱傳導性優異的薄片及其用途者，特別是關於一種在作為電子零件用散熱構件使用時，能不損傷功率元件、電晶體、閘流體、CPU（中央處理裝置）等發熱性電子零件，且能組裝進電子設備的熱傳導性薄片。

【先前技術】

【0002】 功率元件、電晶體、閘流體、CPU等發熱性電子零件中，如何去除使用時產生的熱已成為重要的問題。習知上，作為像這樣的去熱方法，一般進行上為將發熱性電子零件透過電性絕緣的熱傳導性薄片組裝在散熱鰭片或金屬板而使熱散出，作為該熱傳導性薄片則使用將熱傳導性填料分散在矽橡膠者。

【0003】 近年來，伴隨著電子零件內的電路高度集成化而其發熱量變大，相較於以往要求具有更高熱傳導性的材料。為了提升熱傳導性材料的熱傳導性，目前為止一般作法係將稱作氧化鋁粉末、氮化硼粉末、氮化鋁粉末的表現出高熱傳導性的填料包含至有機樹脂。另外關於填充性差的鱗片狀六方晶氮化硼粉末，則進行如後述的方法（專利文獻1~4）：以稱作二次聚集粒子的形態填充至有機樹脂，藉此達到高熱傳導化。而關於六方晶氮化硼粉末的配向性，則於專利文獻5或6等有記載。

[習知技術文獻]

[專利文獻]

【0004】

[專利文獻 1]日本特開平 11-60216 號公報

[專利文獻 2]日本特開 2003-60134 號公報

[專利文獻 3]日本特開 2008-293911 號公報

[專利文獻 4]日本特開 2009-24126 號公報

[專利文獻 5]日本特開平 09-202663 號公報

[專利文獻 6]日本特開平 11-26661 號公報

[專利文獻 7]日本特許第 6125273 號

[專利文獻 8]日本特許第 5036696 號

【發明內容】

【0005】 [發明所欲解決的課題]

然而，在習知技術，得到薄片形狀的熱傳導性優異的構件實為困難。雖已知如專利文獻 7 的使用 BN 成型體的高熱傳導性構件，惟該等構件因為缺乏作為構件的柔軟性，所以不利於曲面形狀的散熱用途或在強力鎖固轉矩的用途。又，將構件的厚度薄化至 300 μm 以下並不實際。又，例如專利文獻 8 雖提出高熱傳導性的薄片，惟使用在此薄片的 BN 聚集粒子的氣孔率為 50% 以下，熱傳導率僅能達到 6W/(m·K) 的水平。

【0006】 [解決課題的技術手段]

本發明目的為提供一種熱傳導性優異的薄片。特別是提供一種適合作為電子零件用散熱構件的熱傳導性薄片。

【0007】 在本發明的實施形態，為了解決上述課題，提供以下所述者。

【0008】 (1) 一種熱傳導性薄片，其係將鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子分散在熱硬化性樹脂中而形成，其特徵在於：該二次聚集粒子係為 50 μm 以上 120 μm 以下的平均粒子徑、51% 以上 60% 以下的氣孔率，且在累積破壞率 63.2% 時的粒子強度為 0.2MPa 以上 2.0MPa 以下，該熱傳導性薄片中的該二次聚集粒子的填充率為 50 體積% 以上 70 體積% 以下。

【0009】 (2) 一種散熱構件，包含該 (1) 所述之熱傳導性薄片。

【0010】 [發明功效]

若根據本發明實施形態，能提供表現出高熱傳導率的薄片。

【實施方式】

【0011】 以下，針對本發明詳細地說明。

【0012】 在本發明實施形態使用的鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子，其係平均粒子徑必須為 50~120 μm ，更進一步平均粒子徑較佳為 70~90 μm 的範圍者。若平均粒子徑變得大於 120 μm ，則粒子與粒子接觸時的空隙會變大，除了產生熱傳導性降低的問題，還難以得到薄的薄片。反之，若平均

粒子徑變得小於50 μm ，則二次聚集粒子填充至熱硬化性樹脂的填充性會變差，產生熱傳導性降低的問題。

【0013】 更進一步，本發明實施形態的熱傳導性薄片可在不損及散熱性的範圍，合併包含鋁、銅、銀、碳纖維、奈米碳管等的導電性粉末。

【0014】 在本發明實施形態使用的鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子，其係氣孔率必須為51~60%，更進一步氣孔率較佳為53~57%的範圍者。若氣孔率變得大於60%，則粒子的強度會變小，產生難以薄片化的問題。反之，若氣孔率變得小於51%，則二次聚集粒子對熱硬化性樹脂的填充性會變差，產生熱傳導性降低的問題。藉由將BN聚集粒子的氣孔率設為51~60%，填充至樹脂的填充效果係提升至在習知技術無法得到的水平，能達到高熱傳導。

【0015】 在本發明實施形態使用的鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子，其係累積破壞率63.2%時的粒子強度必須為0.2~2.0MPa，更進一步較佳為0.3~1.8MPa的範圍者，更佳為0.3~1.5MPa的範圍者。若累積破壞率63.2%時的粒子強度變得大於2.0MPa，則不會產生二次聚集的變形，無法成為面接觸而成為點接觸，使熱傳導性薄片的熱傳導性降低。反之，若累積破壞率63.2%時的粒子強度變得小於0.2MPa，則二次聚集粒子容易破壞導致異向性變大，使熱傳導性薄片的熱傳導性降低。

【0016】 本發明實施形態的熱傳導性薄片中的二次聚集粒子的填充率為全體積的50~70體積%，特別較佳為55~65體積%。若二次聚集粒子的填充率未滿50體積%，則熱傳導性薄片的熱傳導性會變得不足夠，另外若超過70體積%，則熱傳導性填料的填充會變困難。

【0017】 如以上所述，具有特定的平均粒子徑、氣孔率以及粒子強度組合的二次聚集粒子，就熱傳導性與調製薄片基礎上的物理性質狀態的觀點而言，具有優異的特徵。而藉由將此特定的二次聚集粒子以50體積%以上70體積%以下的範圍的填充率調製熱傳導性薄片，能實現在習知技術無法達到的極高熱傳導率效果。

【0018】 本說明書中平均粒子徑係使用島津製作所製的「雷射繞射式粒度分布測量裝置SALD-200」進行測量。評價樣本係將純水50cc與要測量的熱傳導性粉末5g添加至玻璃燒杯，使用刮勺攪拌後以超音波清洗機進行10分鐘分散處理。再將進行分散處理後的熱傳導性材料的粉末的溶液，使用滴管一滴滴添加

至裝置的取樣部，等待至其變化為能測量吸光度的穩定狀態。以像這樣的方式在吸光度變為穩定的時間點進行測量。在雷射繞射式粒度分布測量裝置，從以感測器檢測出的粒子造成的繞射／散射光的光強度分布資料計算粒度分布。平均粒子徑係將相對粒子量（差分%）乘上測量的粒子徑的值，再除以相對粒子量的合計（100%）而求出。附帶一提的是，平均粒子徑為粒子的平均直徑。

【0019】 本說明書中鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子的氣孔率意指藉由以水銀壓入式的孔隙計進行測量而得到的值。氣孔率為藉由使用水銀孔隙計測量細孔體積而求出的值。作為使用水銀孔隙計的細孔體積，例如能使用「PASCAL 140-440」（FISONS INSTRUMENTS公司製）測量。此測量原理係基於式： $\varepsilon_g = V_g / (V_g + 1/\rho_t) \times 100$ 。式中， ε_g 為氮化硼粒子的氣孔率（%）， V_g 為細孔體積減去粒子間空隙的值（ cm^3/g ）， ρ_t 為一次粒子的六方晶氮化硼粒子的密度2.34（ g/cm^3 ）。

【0020】 本說明書中鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子的累積破壞率63.2%時的粒子強度（單一顆粒壓壞強度）係依據JIS R1639-5：2007標準而求出。附帶一提的是，此處所稱「63.2%」係作為上述JIS R1639-5：2007標準引用的JIS R1625：2010標準中教示之滿足韋伯（Weibull）分布函數中 $\ln\{1/(1-F(t))\}=0$ 的值而為人所知者，且為粒子的個數基準的值。

【0021】 本發明實施形態中能使用的熱硬化性樹脂係以混煉型(Millable)矽膠為代表性者，惟總評上難以找出所需的柔軟性者的情況較多，故為了找出高柔軟性者較佳為附加反應型矽膠。作為附加反應型液狀矽膠的具體例，係有一分子中具有乙烯基與H-Si基兩者的一液反應型的有機聚矽氧烷或如後述的二液性的矽膠等：末端或側鏈具有乙烯基的有機聚矽氧烷、末端或側鏈具有2個以上H-Si基的有機聚矽氧烷。例如有旭化成WACKER矽膠公司製的商品名「ELASTOSIL LR3303-20/A/B」。

【0022】 本發明實施形態中能使用的附加反應型液狀矽膠更進一步能併用：乙醯基酒精類、馬來酸酯類等的反應延遲劑；十～數百 μm 的AEROSIL或矽膠粉末等的增黏劑、難燃劑、顏料等。

【0023】 本發明實施形態的熱傳導性薄片能根據所需將厚度薄化至200 μm ，因為能賦予柔軟性所以亦能提高組裝方法中的自由度。

【0024】 對於本發明實施形態的熱傳導性薄片，作為補強材料亦能併用玻璃纖維織物。作為玻璃纖維織物，係有將玻璃維持粗織狀態的未加工纖維織物或進行了熱清洗、耦合劑處理的處理纖維織物等，例如有尤尼吉可公司製的商品名「H25 F104」。

【0025】 本發明的熱傳導性薄片的製造方法係將氮化硼粉末的聚集粉末添加至附加反應型液狀矽膠，並藉由使用自轉/公轉攪拌機的日新基公司製的「脫泡練太郎」做混合，能不粉碎氮化硼粉末的聚集粉末而製造混合物。

【0026】 [實施例]

為了評價後述之熱傳導性薄片的熱傳導性，係製作了薄片成形體。在每一薄片成形體的製作上，藉由使用栓塞式的壓出機，不粉碎氮化硼粉末的聚集粉末而薄片化。熱傳導性評價用的薄片成形體樣本分別具有後述表格記載的厚度，且令其為 10mm×10mm 的大小。

【0027】 熱傳導率係將依據ASTM E-1461標準方法的樹脂組成物的熱擴散率、密度、比熱全部相乘後算出（熱傳導率＝熱擴散率×密度×比熱）。熱擴散率係將試料加工成寬度10mm×10mm×厚度0.5mm，並藉由雷射閃光法求出。測量裝置係使用氬閃光分析儀（NETZSCH公司製的LFA447 NanoFlash）在25°C進行測量。密度則使用阿基米德法求出。比熱則使用DSC（理學公司製的ThermoPlus Evo DSC8230）求出。

【0028】 （實施例1~7、比較例1~6）

現將如後述者在室溫下以表 2~3 所示的配方（體積%），使用自轉/公轉攪拌機的日新基公司製的「脫泡練太郎」，以旋轉速度 2000rpm 混合 10 分鐘而製造混合物：作為熱傳導性粉末而表示在表 1 的 7 種聚集的六方晶氮化硼粉末；作為附加反應型液狀矽膠而表示在表 2、3 的 1 種 ELASTOSIL LR3303-20/A 液（具有乙烯基的有機聚矽氧烷；其中，乙烯基含有鉑觸媒）；作為附加反應型液狀矽膠而表示在表 2、3 的 1 種 ELASTOSIL LR3303-20/B 液（具有 H-Si 基的有機聚矽氧烷與具有乙烯基的有機聚矽氧烷）。

【0029】 接著將此混合物 100g 填充至帶有狹縫（0.2mm×10mm、0.5mm×10mm以及1mm×10mm中任一者）的固定有晶粒的圓柱構造模具內，以活塞一邊施加5MPa的壓力一邊從狹縫壓出而得到預定厚度的薄片。將此薄片以

110°C加熱3小時，製造評價熱傳導性的薄片，再藉由上述作法測量熱傳導率。將結果表示在表2~3。

【0030】 從表2的實施例與表3的比較例可知，本發明實施形態的熱傳導性薄片表現出優異的熱傳導性。相反地，比較例則產生本質上就難以薄片化，或者是產生熱傳導率降低的問題。

【0031】 [表1]

填料記號	種類	平均粒子徑 (μm)	氣孔率 (%)	粒子強度 (MPa)
熱傳導性填料A	聚集的六方晶氮化硼粉末	200	65	0.1
熱傳導性填料B	聚集的六方晶氮化硼粉末	120	60	0.3
熱傳導性填料C	聚集的六方晶氮化硼粉末	80	55	0.7
熱傳導性填料D	聚集的六方晶氮化硼粉末	50	51	1.8
熱傳導性填料E	聚集的六方晶氮化硼粉末	20	40	3.0
熱傳導性填料F	聚集的六方晶氮化硼粉末	55	45	2.5
熱傳導性填料G	聚集的六方晶氮化硼粉末	60	25	2.6

【0032】 [表2]

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6	實施例 7
氮化硼粉末 的種類	B	C	D	C	C	C	C
氮化硼粉末 的填充率(體 積%)	60	60	60	70	50	60	60

矽膠樹脂 ELASTOSIL LR3303/20A 配方量(體積 %)	20	20	20	15	25	20	20
矽膠樹脂 ELASTOSIL LR3303/20B 配方量(體積 %)	20	20	20	15	25	20	20
熱傳導率 (W/(m·K))	8.2	8.5	8.2	8.2	8.0	8.5	8.5
厚度(mm)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.2	1.0

【0033】 [表3]

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
氮化硼粉末的 種類	A	E	C	C	F	G
氮化硼粉末的 填充率(體積 %)	60	60	10	80	60	70
矽膠樹脂 ELASTOSIL LR3303/20A 配 方量(體積%)	20	20	45	10	20	15
矽膠樹脂 ELASTOSIL LR3303/20B 配 方量(體積%)	20	20	45	10	20	15

熱 傳 導 率 (W/(m · K))	5.1	難以薄 片化	2.2	難以薄 片化	5.2	5.8
厚度 (mm)	0.5		0.5		0.5	0.5

【0034】 [產業上的可利用性]

在將本發明的熱傳導性薄片作為電子零件用散熱構件使用的情況，舉例而言，在作為功率元件等半導體元件的散熱構件使用的情況，能長時間地使用。

【發明申請專利範圍】

【第1項】一種熱傳導性薄片，其係將鱗片狀氮化硼的一次粒子聚集成二次聚集粒子分散在附加反應型矽膠樹脂中而形成，其特徵在於：

該二次聚集粒子具有 $50\mu\text{m}$ 以上 $120\mu\text{m}$ 以下的平均粒子徑、 51% 以上 60% 以下的氣孔率，且在累積破壞率 63.2% 時的粒子強度為 0.2MPa 以上 2.0MPa 以下，該熱傳導性薄片中的該二次聚集粒子的填充率為 50% 以上 70% 以下。

【第2項】一種散熱構件，包含申請專利範圍第1項所述之熱傳導性薄片。