



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0038664
(43) 공개일자 2025년03월19일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01L 23/373 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
H01L 23/3737 (2013.01)
C08J 5/18 (2021.05)
- (21) 출원번호 10-2025-7003698
- (22) 출원일자(국제) 2023년07월21일
심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2025년02월05일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2023/026893
- (87) 국제공개번호 WO 2024/019174
국제공개일자 2024년01월25일
- (30) 우선권주장
PCT/JP2022/028528 2022년07월22일 일본(JP)

- (71) 출원인
가부시끼가이샤 레조낙
일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1초메 9방
1고
- (72) 발명자
코부네 미카
일본국 도쿄도 미나토쿠 시바다이몬 1초메 13반
9고 가부시끼가이샤 레조낙나이
고르골 리카르도 미조구치
일본국 도쿄도 미나토쿠 시바다이몬 1초메 13반
9고 가부시끼가이샤 레조낙나이
- (74) 대리인
특허법인원전

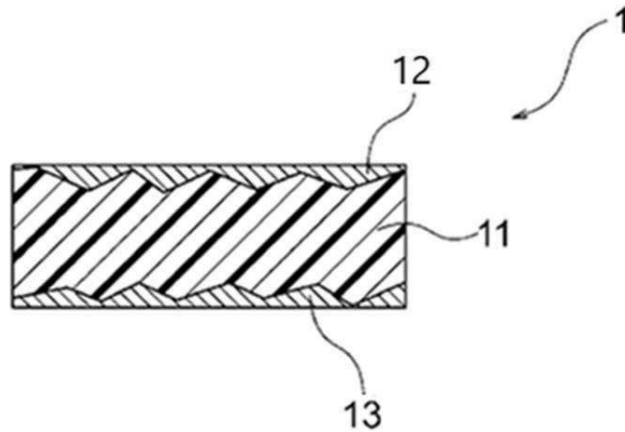
전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 액상 열전도 재료, 열전도 시트 제작용 부재의 조합, 열전도 시트, 방열 장치 및 열전도 시트의 제조 방법

(57) 요약

열전도율이 5W/(m·K) 이상이며, 열전도성 입자를 포함하는 열전도층상의 적어도 일부에 도포함으로써 액상층을 형성하기 위한 액상 열전도 재료.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

H01L 23/29 (2013.01)

H01L 23/31 (2013.01)

H01L 23/3731 (2013.01)

H01L 23/3735 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

열전도율이 $5W/(m \cdot K)$ 이상이며, 열전도성 입자를 포함하는 열전도층상의 적어도 일부에 도포함으로써 액상층을 형성하기 위한 액상 열전도 재료.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

열전도성 필러 및 수지 성분을 포함하는 액상 열전도 재료.

청구항 3

청구항 2에 있어서,

상기 열전도성 필러의 입자 지름이 $0.1\mu m \sim 50\mu m$ 인 액상 열전도 재료.

청구항 4

청구항 2 또는 청구항 3에 있어서,

상기 수지 성분은 열경화성의 수지 성분을 포함하는 액상 열전도 재료.

청구항 5

청구항 1 내지 청구항 4 중 어느 한 항에 있어서,

$25^{\circ}C$ 에서의 점도가 $4000Pa \cdot s$ 이하인 액상 열전도 재료.

청구항 6

청구항 1 내지 청구항 5 중 어느 한 항에 기재된 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비하는 열전도 시트 제작용 부재의 조합.

청구항 7

금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비하는 열전도 시트 제작용 부재의 조합.

청구항 8

청구항 7에 있어서,

상기 금속 성분의 용점은, $50^{\circ}C$ 이하인 열전도 시트 제작용 부재의 조합.

청구항 9

열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 포함하는 열전도층과,

상기 열전도층의 주면(主面)의 적어도 일부에 위치하는 청구항 1 내지 청구항 5 중 어느 한 항에 기재된 액상 열전도 재료인 제1 액상 열전도 재료, 또는 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료인 제2 액상 열전도 재료를 포함하는 액상층

을 구비하는 열전도 시트.

청구항 10

청구항 9에 있어서,

상기 열전도성 입자는, 인편상(鱗片狀) 입자, 타원체상(橢圓體狀) 입자 및 봉상(棒狀) 입자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 흑연 입자(A)를 포함하고,

상기 열전도층에서는, 상기 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 상기 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 상기 봉상 입자의 경우에는 장축 방향이, 두께 방향으로 배향되어 있는 열전도 시트.

청구항 11

청구항 9 또는 청구항 10에 있어서,

상기 액상층의 최대 두께는, 0.5 μm~20 μm인 열전도 시트.

청구항 12

청구항 9 내지 청구항 11 중 어느 한 항에 있어서,

상기 액상층은 상기 제1 액상 열전도 재료를 포함하고, 상기 액상층은 가열에 의해 경화 가능한 열전도 시트.

청구항 13

발열체와, 방열체와, 상기 발열체 및 상기 방열체 사이에 배치되는 청구항 9 내지 청구항 11 중 어느 한 항에 기재된 열전도 시트를 구비하고,

상기 열전도층에 있어서, 상기 발열체 측에 위치하는 주면 및 상기 방열체 측에 위치하는 주면 중 적어도 한쪽의 주면의 적어도 일부에 상기 액상층이 위치하는 방열 장치.

청구항 14

발열체와, 방열체와, 상기 발열체 및 상기 방열체 사이에 배치되고, 또한 청구항 12에 기재된 열전도 시트에 있어서, 상기 액상층이 경화되어 이루어지는 접착층을 구비하는 열전도 시트를 구비하고,

상기 열전도층에 있어서, 상기 발열체 측에 위치하는 주면 및 상기 방열체 측에 위치하는 주면 중 적어도 한쪽의 주면의 적어도 일부에 상기 접착층이 위치하는 방열 장치.

청구항 15

청구항 9 내지 청구항 12 중 어느 한 항에 기재된 열전도 시트를 제조하는 열전도 시트의 제조 방법으로서,

상기 열전도성 입자를 함유하는 조성물을 준비하는 공정과, 상기 조성물을 사용하여 상기 열전도층을 형성하는 공정과, 상기 열전도층의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정을 가지는 열전도 시트의 제조 방법.

청구항 16

청구항 10에 기재된 열전도 시트를 제조하는 열전도 시트의 제조 방법으로서,

상기 흑연 입자(A)를 함유하는 조성물을 준비하는 공정과,

상기 조성물을 시트화하여 시트를 얻는 공정과,

상기 시트의 적층체를 제작하는 공정과,

상기 적층체의 측단면을 슬라이스하는 공정과,

슬라이스하여 얻어진, 열전도층에 상당하는 슬라이스 시트의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정을 가지는 열전도 시트의 제조 방법.

발명의 설명

기술 분야

본 개시는, 액상 열전도 재료, 열전도 시트 제작용 부재의 조합, 열전도 시트, 방열 장치 및 열전도 시트의 제조 방법에 관한 것이다.

[0001]

배경 기술

- [0002] 최근, 다층 배선판을 사용한 반도체 패키지에 있어서의 배선 및 전자 부품의 탑재 밀도의 고밀도화에 의한 발열량이 증대하고, 반도체 소자의 고집적화에 의한 단위면적당의 발열량이 증대하고 있어, 반도체 패키지로부터의 열방산성을 높이는 것이 요망되고 있다.
- [0003] 반도체 패키지 등의 발열체와 알루미늄, 구리 등의 방열체 사이에, 열전도 그리스 또는 열전도 시트를 사이에 두고 밀착시킴으로써 열을 방산하는 방열 장치가 일반적으로 간편하게 사용되고 있다. 통상, 열전도 그리스보다도 열전도 시트쪽이, 방열 장치를 조립할 때 작업성이 우수하다.
- [0004] 최근, CPU(중앙 처리장치, Central Processing Unit)의 칩은 멀티 코어화 및 멀티 칩화에 의해 대면적화하는 경향이 있다. 또한, 발열체인 CPU와 방열체의 압착 압력을 낮추는 경향이 있다. 그 때문에, 열전도 시트에는 압착시의 유연성이 요구되고 있다. 또한, 칩 단차에 의해 열전도 시트가 두꺼워져도 저열 저항이 되도록, 열전도 시트는 열전도성이 우수할 것이 요구되고 있다.
- [0005] 열전도 시트로서, 열전도 필러를 충전한 수지 시트도 알려져 있다. 열전도 필러를 충전한 열전도성이 우수한 수지 시트로서, 열전도성이 높은 무기 입자를 열전도 필러로서 선택하고, 또한 무기 입자를 시트면에 대하여 수직으로 배향시킨 수지 시트가 여러 가지 제안되고 있다.
- [0006] 예를 들면, 시트면에 관하여 거의 수직인 방향으로 열전도 필러(질화붕소)가 배향된 열전도 시트(예를 들면, 특허문헌 1 참조), 및 겔상 물질에 분산된 탄소섬유가 시트면에 대하여 수직으로 배향된 구조의 열전도 시트(예를 들면, 특허문헌 2 참조)가 제안되고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0007] (특허문헌 0001) 특허문헌 1: 일본국 공개특허공보 특개2002-26202호
(특허문헌 0002) 특허문헌 2: 일본국 공개특허공보 특개2001-250894호

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0008] 특허문헌 1 및 2에서는, 시트면에 대하여 수직인 방향으로 열전도 필러, 탄소섬유 등을 배향시킴으로써 열저항을 억제하는 방법이 검토되고 있다. 반도체의 고성능화 및 대형화에 따른 발열량의 증대에 대응하기 위해, 열전도 시트의 가일층의 저열 저항화가 요망되고 있다. 그 때문에, 열전도 시트에 포함되는 열전도 필러, 탄소섬유 등의 배향 이외의 수법도 고려한 후에 저열 저항화를 도모하는 것이 바람직하다.
- [0009] 본 개시의 목적은, 열전도 시트 등의 열전도층에 적용함으로써 열저항을 저감 가능한 액상 열전도 재료, 전술의 액상 열전도 재료 또는 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료를 구비하고, 열저항이 작은 열전도 시트를 제작 가능한 열전도 시트 제작용 부재의 조합, 및, 열저항이 작은 열전도 시트, 이를 구비하는 방열 장치 및 열저항이 작은 열전도 시트를 제조 가능한 열전도 시트의 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

- [0010] 상기 과제를 해결하기 위한 구체적 수단은, 이하의 태양(態樣)을 포함한다.
- [0011] <1> 열전도율이 5W/(m·K) 이상이며, 열전도성 입자를 포함하는 열전도층상의 적어도 일부에 도포함으로써 액상층을 형성하기 위한 액상 열전도 재료.
- [0012] <2> 열전도성 필러 및 수지 성분을 포함하는 <1>에 기재된 액상 열전도 재료.
- [0013] <3> 상기 열전도성 필러의 입자 지름이 0.1 μ m-50 μ m인 <2>에 기재된 액상 열전도 재료.
- [0014] <4> 상기 수지 성분은 열경화성의 수지 성분을 포함하는 <2> 또는 <3>에 기재된 액상 열전도 재료.

- [0015] <5> 25℃에서의 점도가 4000Pa·s 이하인 <1>~<4> 중 어느 하나에 기재된 액상 열전도 재료.
- [0016] <6> <1>~<5> 중 어느 하나에 기재된 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비하는 열전도 시트 제작용 부재의 조합.
- [0017] <7> 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비하는 열전도 시트 제작용 부재의 조합.
- [0018] <8> 상기 금속 성분의 용점은, 50℃ 이하인 <7>에 기재된 열전도 시트 제작용 부재의 조합.
- [0019] <9> 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 포함하는 열전도층과,
- [0020] 상기 열전도층의 주면(主面)의 적어도 일부에 위치하는 <1>~<5> 중 어느 하나에 기재된 액상 열전도 재료인 제1 액상 열전도 재료, 또는 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료인 제2 액상 열전도 재료를 포함하는 액상층
- [0021] 을 구비하는 열전도 시트.
- [0022] <10> 상기 열전도성 입자는, 인편상(鱗片狀) 입자, 타원체상(橢圓體狀) 입자 및 봉상(棒狀) 입자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 흑연 입자(A)를 포함하고,
- [0023] 상기 열전도층에서는, 상기 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 상기 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 상기 봉상 입자의 경우에는 장축 방향이, 두께 방향으로 배향되어 있는 <9>에 기재된 열전도 시트.
- [0024] <11> 상기 액상층의 최대 두께는, 0.5μm~20μm인 <9> 또는 <10>에 기재된 열전도 시트.
- [0025] <12> 상기 액상층은 상기 제1 액상 열전도 재료를 포함하고, 상기 액상층은 가열에 의해 경화 가능한 <9>~<11> 중 어느 하나에 기재된 열전도 시트.
- [0026] <13> 발열체와, 방열체와, 상기 발열체 및 상기 방열체 사이에 배치되는 <9>~<11> 중 어느 하나에 기재된 열전도 시트를 구비하고,
- [0027] 상기 열전도층에 있어서, 상기 발열체 측에 위치하는 주면 및 상기 방열체 측에 위치하는 주면 중 적어도 한쪽의 주면의 적어도 일부에 상기 액상층이 위치하는 방열 장치.
- [0028] <14> 발열체와, 방열체와, 상기 발열체 및 상기 방열체 사이에 배치되고, 또한 <12>에 기재된 열전도 시트에 있어서, 상기 액상층이 경화되어 이루어지는 접착층을 구비하는 열전도 시트를 구비하고,
- [0029] 상기 열전도층에 있어서, 상기 발열체 측에 위치하는 주면 및 상기 방열체 측에 위치하는 주면 중 적어도 한쪽의 주면의 적어도 일부에 상기 접착층이 위치하는 방열 장치.
- [0030] <15> <9>~<12> 중 어느 하나에 기재된 열전도 시트를 제조하는 열전도 시트의 제조 방법으로서,
- [0031] 상기 열전도성 입자를 함유하는 조성물을 준비하는 공정과, 상기 조성물을 사용하여 상기 열전도층을 형성하는 공정과, 상기 열전도층의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정을 가지는 열전도 시트의 제조 방법.
- [0032] <16> <10>에 기재된 열전도 시트를 제조하는 열전도 시트의 제조 방법으로서,
- [0033] 상기 흑연 입자(A)를 함유하는 조성물을 준비하는 공정과,
- [0034] 상기 조성물을 시트화하여 시트를 얻는 공정과,
- [0035] 상기 시트의 적층체를 제작하는 공정과,
- [0036] 상기 적층체의 측단면을 슬라이스하는 공정과,
- [0037] 슬라이스하여 얻어진, 열전도층에 상당하는 슬라이스 시트의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정을 가지는 열전도 시트의 제조 방법.

발명의 효과

- [0038] 본 개시에 의하면, 열전도 시트 등의 열전도층에 적용함으로써 열저항을 저감 가능한 액상 열전도 재료, 전술의 액상 열전도 재료 또는 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료를 구비하고, 열저항이 작은 열전도 시트를 제작 가능한 열전도 시트 제작용 부재의 조합, 및, 열저항이 작은 열전도 시트, 이를 구비하는 방열 장치 및 열저항

이 작은 열전도 시트를 제조 가능한 열전도 시트의 제조 방법을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0039] [도 1] 본 발명의 일 실시 형태인, 열전도 시트의 개략 구성도이다.
- [도 2] 본 발명의 일 실시 형태인, 발열체가 반도체 칩, 방열체가 히트 스프레더인 방열 장치의 개략 단면도이다.
- [도 3] 실시예 1 내지 4 및 비교예 1 내지 2에 있어서, 화상 해석에 의한 계면 상태를 나타내는 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0040] 이하, 본 발명을 실시하기 위한 형태에 대하여 상세하게 설명한다. 단, 본 발명은 이하의 실시 형태로 한정되는 것은 아니다. 이하의 실시 형태에 있어서, 그 구성 요소(요소 스텝 등도 포함)는, 특별히 명시한 경우를 제외하고, 필수는 아니다. 수치 및 그 범위에 대해서도 동일하며, 본 발명을 제한하는 것은 아니다.
- [0041] 본 개시에 있어서 「공정」이라는 말에는, 다른 공정으로부터 독립한 공정에 더하여, 다른 공정과 명확하게 구별할 수 없는 경우여도 그 공정의 목적이 달성되면, 해당 공정도 포함된다.
- [0042] 본 개시에 있어서 「~」를 사용하여 나타난 수치 범위에는, 「~」의 전후에 기재되는 수치가 각각 최소값 및 최대값으로서 포함된다.
- [0043] 본 개시 중에 단계적으로 기재되어 있는 수치 범위에 있어서, 하나의 수치 범위로 기재된 상한값 또는 하한값은, 다른 단계적인 기재의 수치 범위의 상한값 또는 하한값으로 치환해도 된다. 또한, 본 개시 중에 기재되어 있는 수치 범위에 있어서, 그 수치 범위의 상한값 또는 하한값은, 실시예에 나타나 있는 값으로 치환해도 된다.
- [0044] 본 개시에 있어서 각 성분은 해당하는 물질을 복수 종(種) 포함하고 있어도 된다. 조성물 중에 각 성분에 해당하는 물질이 복수 종 존재하는 경우, 각 성분의 함유율 또는 함유량은, 특별히 단정 짓지 않는 한, 조성물 중에 존재하는 해당 복수 종의 물질의 합계의 함유율 또는 함유량을 의미한다.
- [0045] 본 개시에 있어서 각 성분에 해당하는 입자는 복수 종 포함하고 있어도 된다. 조성물 중에 각 성분에 해당하는 입자가 복수 종 존재하는 경우, 각 성분의 입자 지름은, 특별히 단정 짓지 않는 한, 조성물 중에 존재하는 해당 복수 종의 입자의 혼합물에 대한 값을 의미한다.
- [0046] 본 개시에 있어서 「층」 또는 「막」이라는 말에는, 해당 층 또는 막이 존재하는 영역을 관찰했을 때에, 해당 영역의 전체에 형성되어 있는 경우에 더하여, 해당 영역의 일부에만 형성되어 있는 경우도 포함된다.
- [0047] 본 개시에 있어서 「적층」이라는 말은, 층을 겹쳐 쌓는 것을 나타내고, 2 이상의 층이 결합되어 있어도 되고, 2 이상의 층이 착탈 가능해도 된다.
- [0048] [액상 열전도 재료]
- [0049] 본 개시의 액상 열전도 재료는, 열전도율이 $5W/(m \cdot K)$ 이상이며, 열전도성 입자를 포함하는 열전도층상의 적어도 일부에 도포함으로써 액상층을 형성하기 위한 재료이다.
- [0050] 본 개시에 있어서, 액상 열전도 재료란, $0^{\circ}C \sim 50^{\circ}C$ 중 적어도 일부의 온도에서 액상이 되는 열전도성의 재료를 의미한다.
- [0051] 본 개시에 있어서, 열전도율은, 크세논 플래시(Xe-flash)법에 의해 측정할 수 있다.
- [0052] 열전도 시트와 열전도 시트에 접촉하는 발열체, 방열체 등의 피착체와의 접촉에 의해 생기는 간극에 의한 저항(「접촉 열저항」이라고도 한다)은, 열전도 시트에 포함되는 열전도성 입자의 구성, 열전도 시트의 조성에 의해 저감하는 것은 어렵다. 본 개시의 액상 열전도 재료는, 열전도성 입자를 포함하는 열전도층상의 적어도 일부에 도포됨으로써 액상층을 구비하는 열전도 시트 등을 형성하기 위한 재료이다. 액상층이 형성된 열전도층을 발열체, 방열체 등의 피착체와 가열 압착시킬 때, 액상층이 열전도층과 피착체 사이에서 유동(流動)한다. 이에 의해, 열전도 시트와 피착체의 간극(예를 들면, 열전도 시트의 요철에 유래하는 간극)이 유동한 액상층으로 메워지기 때문에, 액상층을 통하여 열전도 시트와 피착체를 밀착시킬 수 있다. 그 결과, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다. 또한, 액상 열전도 재료의 열전도율이 $5W/(m \cdot K)$ 이상임으로써, 액상층을 열전도층상에 배치한 것에

의한 열전도 시트의 열전도성의 저하가 억제되어 열전도 시트의 열저항의 상승이 억제된다.

- [0053] 발열체, 방열체 등의 피착체의 표면에 요철이 존재하는 경우에도, 접촉 열저항이 발생하기 쉬워진다. 이 경우, 열전도 시트에 포함되는 열전도 필러 등의 배향을 조정시키는 방법으로는 열저항을 저감시키는 것은 곤란하다. 한편, 본 개시의 액상 열전도 재료를 사용함으로써, 액상층을 통하여 열전도 시트와, 표면에 요철이 존재하는 피착체를 밀착시킬 수 있다. 이 때, 열전도 시트와 피착체를 가열 압착할 때에 생기는 간극(예를 들면, 피착체의 요철에 유래하는 간극)이 액상층으로 메워지게 되기 때문에, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다.
- [0054] 본 개시의 액상 열전도 재료는, 열전도성 필러 및 수지 성분을 포함하는 것이 바람직하다. 수지 성분은 25℃에서 액상의 성분을 포함하고 있어도 된다.
- [0055] 열전도성 필러로서는, 열전도성이 우수한 금속 함유 입자, 비금속 입자 등을 들 수 있다. 열전도성 필러는, 예를 들면, 열전도율이 10W/(m·K) 이상인 필러여도 된다. 열전도성 필러는, 절연성이어도 되고, 도전성이어도 된다.
- [0056] 열전도성 필러는, 은, 산화알루미늄, 수산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화베릴륨, 질화붕소, 질화알루미늄, 질화규소, 탄화규소, 이산화규소, 플루오르화알루미늄, 플루오르화칼슘, 산화아연, 다이아몬드, 갈륨, 인듐 및 주석으로부터 선택되는 적어도 1종의 입자여도 된다.
- [0057] 액상 열전도성 재료에 포함되는 열전도성 필러는 1종 단독이어도 되고, 2종 이상의 조합이어도 된다.
- [0058] 본 개시의 액상 열전도 재료는, 200℃ 이하의 용점을 가지는 저융점 금속 입자를 함유하고 있어도 되고, 함유하고 있지 않아도 된다.
- [0059] 열전도성 필러의 입자 지름은, 열전도성이 우수한 관점 및 피착체와 열전도 시트 사이의 간극을 보다 저감시키는 관점에서, 0.1μm~50μm여도 되고, 0.2μm~20μm여도 되고, 0.5μm~10μm여도 된다.
- [0060] 열전도성 필러의 입자 지름(D50)은, 레이저 회절·산란법을 적용한 레이저 회절식 입도 분포 장치(예를 들면, 닛키소 가부시키가이샤제 「마이크로 트릭 시리즈 MT3300」)를 사용하여 측정되고, 질량 누적 입도 분포 곡선을 소립경(小粒径)측에서 그린 경우에, 질량 누적이 50%가 되는 입자 지름에 대응한다.
- [0061] 상기 수지 성분은, 비경화성의 수지 성분이어도 되고, 열경화성, 광경화성 등의 경화성의 수지 성분이어도 된다. 수지 성분은, 경화시의 피착체, 열전도성 등과의 밀착성의 관점에서, 열경화성의 수지 성분을 포함하는 것이 바람직하다. 수지 성분은, 1종의 수지 성분을 포함하고 있어도 되고, 2종 이상의 수지 성분을 포함하고 있어도 된다.
- [0062] 비경화성의 수지 성분으로서, 25℃에서 액상인 비경화성의 수지 성분이 바람직하고, 액상 실리콘 화합물, 액상 (메타)아크릴 화합물, 액상 폴리에스터 화합물 등이 보다 바람직하다.
- [0063] 열경화성의 수지 성분으로서, 25℃에서 액상인 열경화성의 수지 성분이 바람직하고, 액상 에폭시 화합물, 경화성의 액상 실리콘 화합물, 경화성의 액상 (메타)아크릴 화합물 등이 보다 바람직하다.
- [0064] 액상 열전도 재료에 포함되는 열전도성 필러의 함유율은, 예를 들면, 열전도성과 밀착성의 밸런스의 관점에서, 액상 열전도 재료 전량에 대하여, 70질량%~98질량%인 것이 바람직하고, 75질량%~95질량%인 것이 보다 바람직하고, 80질량%~93질량%인 것이 더 바람직하다.
- [0065] 액상 열전도 재료에 포함되는 수지 성분의 함유율은, 예를 들면, 열전도성과 밀착성의 밸런스의 관점에서, 액상 열전도 재료 전량에 대하여, 2질량%~30질량%인 것이 바람직하고, 5질량%~25질량%인 것이 보다 바람직하고, 7질량%~20질량%인 것이 더 바람직하다.
- [0066] 액상 열전도 재료에 포함되는 열전도성 필러 및 수지 성분의 합계 함유율은, 액상 열전도 재료 전량에 대하여, 80질량%~100질량%여도 되고, 90질량%~100질량%여도 된다.
- [0067] 액상 열전도 재료는, 열전도성 필러 및 수지 성분 이외의 성분을 포함하고 있어도 되고, 포함하고 있지 않아도 된다.
- [0068] 본 개시의 액상 열전도 재료는, 25℃에서의 점도가 4000Pa·s 이하인 것이 바람직하고, 0.001Pa·s~3000Pa·s여도 되고, 10Pa·s~2000Pa·s여도 된다. 25℃에서의 점도가 4000Pa·s 이하임으로써, 액상층이 열전도층과 피착체 사이에서 유동하기 쉬워지기 때문에, 열전도 시트와 피착체의 간극이 액상층으로 적합하게 메워지기 쉬운 경향이 있다.

- [0069] 25℃에서의 점도는, 25℃에서 레오 미터를 사용하여 $5.0s^{-1}$ 의 전단 속도의 조건으로 측정된다. 상세하게는, 「점도」는, 전단 점도로서, 콘 플레이트(직경 40mm, 콘각 0°)를 장착한 회전식의 전단 점도계를 사용하여, 온도 25℃에서 측정된다.
- [0070] [열전도 시트 제작용 부재의 조합 1]
- [0071] 본 개시의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 1은, 본 개시의 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비한다. 열전도 재료는, 열전도 시트의 열전도층을 형성하기 위한 재료이다. 열전도 재료로부터 구성되는 열전도층상의 적어도 일부에 액상 열전도 재료를 도포하여 액상층을 형성함으로써 열전도 시트를 얻을 수 있다.
- [0072] 열전도 재료는, 열전도성 입자를 포함하며, 25℃에서 고형인 것이 바람직하다.
- [0073] 열전도 재료는, 열전도성 입자를 포함한다. 열전도성 입자로서는, 흑연, 탄소, 은, 산화알루미늄, 수산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화베릴륨, 질화붕소, 질화알루미늄, 질화규소, 탄화규소, 이산화규소, 플루오르화알루미늄, 플루오르화칼슘 및 산화아연으로부터 선택되는 적어도 1종의 입자인 것이 바람직하다. 열전도성 입자는, 열전도층으로 했을 때의 열전도성의 관점에서, 흑연 입자, 탄소 입자 및 질화붕소 입자가 바람직하고, 흑연 입자가 보다 바람직하다.
- [0074] 열전도성 입자는, 인편상 입자, 타구상(楕球狀) 입자 및 봉상 입자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 하나인 것이 바람직하고, 인편상 입자, 타원체상 입자 및 봉상 입자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 흑연 입자(이하, 「흑연 입자(A)라고도 한다」)인 것이 보다 바람직하다. 열전도성 입자가 인편상 입자인 경우에는 면 방향이 열전도 재료의 두께 방향으로 배향되어 있는 것이 바람직하고, 열전도성 입자가 타원체상 입자인 경우에는 장축 방향이 열전도 재료의 두께 방향으로 배향되어 있는 것이 바람직하고, 열전도성 입자가, 봉상 입자인 경우에는 장축 방향이 열전도 재료의 두께 방향으로 배향되어 있는 것이 바람직하다.
- [0075] 이하, 열전도성 입자가 흑연 입자(A)인 경우의 바람직한 형태에 대해 설명한다.
- [0076] 흑연 입자(A)는, 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향이, 두께 방향으로 배향되어 있는 것이 바람직하다. 또한, 흑연 입자(A)는, 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향으로, 결정 중의 6원환면이 배향되어 있는 것이 보다 바람직하다. 6원환면이란, 육방정계에 있어서 6원환이 형성되어 있는 면이며, (0001)결정면을 의미한다.
- [0077] 흑연 입자(A)의 형상은, 인편상이 보다 바람직하다. 인편상의 흑연 입자를 선택함으로써, 열전도성이 보다 향상되는 경향이 있다. 이것은 예를 들면, 인편상의 흑연 입자는, 열전도 재료 중에서, 소정의 방향으로 보다 용이하게 배향되기 때문이라고 생각할 수 있다.
- [0078] 흑연 입자(A)의 결정 중의 6원환면이, 인편상 입자의 면 방향, 타원체상 입자의 장축 방향 또는 봉상 입자의 장축 방향으로 배향되어 있는지 여부는, X선 회절 측정에 의해 확인할 수 있다. 흑연 입자(A)의 결정 중의 6원환면의 배향 방향은, 구체적으로는 이하의 방법으로 확인한다.
- [0079] 우선, 흑연 입자(A)의 인편상 입자의 면 방향, 타원체상 입자의 장축 방향 또는 봉상 입자의 장축 방향이, 시트의 면 방향을 따라 배향된 측정용 샘플 시트를 제작한다. 측정용 샘플 시트의 구체적인 제작 방법으로서, 예를 들면, 이하의 방법을 들 수 있다.
- [0080] 수지와, 수지에 대하여 10체적% 이상의 양의 흑연 입자(A)의 혼합물을 시트화한다. 여기서 사용하는 「수지」란, X선 회절의 방해가 되는 피크가 나타나지 않는 재료이며, 또한 시트물을 형성 가능한 재료이면 특별히 제한되지 않는다. 구체적으로는, 아크릴 고무, NBR(아크릴로니트릴부타다이엔 고무), SIBS(스타이렌-아이소뷰틸렌-스타이렌 공중합체) 등, 바인더로서의 응집력을 가지는 비정질 수지를 사용할 수 있다.
- [0081] 이 혼합물의 시트를, 원래 두께의 1/10 이하가 되도록 프레스하고, 프레스한 시트의 복수 장을 적층하여 적층체를 형성한다. 이 적층체를 1/10 이하까지 더 누르는 조작을 3회 이상 반복하여 측정용 샘플 시트를 얻는다. 이 조작에 의해, 측정용 샘플 시트 중에서는, 흑연 입자(A)가 인편상 입자인 경우에는 면 방향, 타원체상 입자인 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자인 경우에는 장축 방향이, 측정용 샘플 시트의 면 방향을 따라 배향된 상태가 된다.
- [0082] 상기와 같이 제작한 측정용 샘플 시트의 표면에 대하여 X선 회절 측정을 실시한다. $2\theta=77^\circ$ 부근에 나타나는 흑

연의 (110)면에 대응하는 피크의 높이 H_1 와, $2\theta=27^\circ$ 부근에 나타나는 흑연의 (002)면에 대응하는 피크의 높이 H_2 를 측정한다. 이와 같이 제작한 측정용 샘플 시트에서는, H_1 를 H_2 로 나눈 값이 0~0.02가 된다.

- [0083] 이에 의해, 「흑연 입자(A)의 결정 중의 6원환면이, 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향으로 배향되어 있다」란, 흑연 입자(A)를 함유하는 시트의 표면에 대하여, X선 회절 측정을 실시하여, $2\theta=77^\circ$ 부근에 나타나는 흑연 입자(A)의 (110)면에 대응하는 피크의 높이를, $2\theta=27^\circ$ 부근에 나타나는 흑연 입자(A)의 (002)면에 대응하는 피크의 높이로 나눈 값이 0~0.02가 되는 상태를 말한다.
- [0084] 본 개시에 있어서, X선 회절 측정은 이하의 조건으로 실시한다.
- [0085] 장치: 예를 들면, 부르카·에이엑스에스 가부시킴가이샤 「D8DISCOVER」
- [0086] X선원: 파장 1.5406nm의 CuK α , 40kV, 40mA
- [0087] 스텝(측정 폭): 0.01°
- [0088] 스텝 타임: 720sec
- [0089] 여기서, 「흑연 입자가 인편상 입자인 경우에는 면 방향, 타원체상 입자인 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자인 경우에는 장축 방향이 열전도 재료의 두께 방향으로 배향되어 있다」란, 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향과, 열전도 재료의 표면(주면)이 이루는 각도(이하, 「배향 각도」라고도 한다)가, 60° 이상인 것을 말한다. 배향 각도는, 80° 이상인 것이 바람직하고, 85° 이상인 것이 보다 바람직하고, 88° 이상인 것이 더 바람직하다.
- [0090] 배향 각도는, 열전도 재료의 단면을 SEM(주사형 전자현미경)으로 관찰하여, 임의의 50개의 흑연 입자(A)에 대하여, 인편상 입자의 경우에는 면 방향과, 타원체상 입자의 경우에는 장축 방향과, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향과, 열전도 재료 표면(주면)이 이루는 각도(배향 각도)를 측정했을 때의 평균값이다.
- [0091] 흑연 입자(A)의 입자 지름은 특별히 제한되지 않는다. 흑연 입자(A)의 평균 입자 지름은, 질량 평균 입자 지름으로서, 열전도 재료의 평균 두께의 1/2 이상 평균 두께 이하인 것이 바람직하다. 흑연 입자(A)의 질량 평균 입자 지름이 열전도 재료의 평균 두께의 1/2 이상이면, 열전도 재료 중에 효율적인 열전도 패스가 형성되어, 열전도율이 향상되는 경향이 있다. 흑연 입자(A)의 질량 평균 입자 지름이 열전도 재료의 평균 두께 이하이면, 열전도 재료의 표면으로부터의 흑연 입자(A)의 돌출이 억제되어, 열전도 재료 표면의 밀착성이 우수한 경향이 있다.
- [0092] 인편상 입자의 경우에는 면 방향, 타원체상 입자의 경우에는 장축, 및 봉상 입자의 경우에는 장축 방향이, 두께 방향으로 배향되도록 열전도 재료를 제작하는 방법은 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면 일본국 공개특허공보 특개2008-280496호에 기재되어 있는 방법을 이용할 수 있다. 구체적으로는, 조성물을 사용하여 시트를 제작하고, 해당 시트를 적층하여 적층체를 제작하고, 해당 적층체의 측단면을(예를 들면, 적층체의 주면에서 나오는 법선에 대하여 $0^\circ \sim 30^\circ$ 의 각도로) 슬라이스하는 방법(이하, 「적층 슬라이스법」이라고도 한다)을 이용할 수 있다.
- [0093] 또한, 상기 적층 슬라이스법을 이용하는 경우, 원료로서 사용하는 흑연 입자(A)의 입자 지름은, 질량 평균 입자 지름으로서, 열전도 재료의 평균 두께의 1/2배 이상인 것이 바람직하고, 평균 두께를 초과해도 된다. 원료로서 사용하는 흑연 입자(A)의 입자 지름이 열전도 재료의 평균 두께를 초과해도 되는 이유는, 예를 들면, 열전도 재료의 평균 두께를 초과하는 입자 지름의 흑연 입자(A)를 포함하고 있어도, 흑연 입자(A)채로 슬라이스하여 열전도 재료를 형성하기 때문에, 결과적으로 흑연 입자(A)가 열전도 재료의 표면으로부터 돌출하지 않기 때문이다. 또한 이와 같이 흑연 입자(A)채로 슬라이스하, 열전도 재료의 두께 방향으로 관통하는 흑연 입자(A)가 다수 발생하고, 극히 효율적인 열전도 패스가 형성되어, 열전도성이 보다 향상되는 경향이 있다.
- [0094] 적층 슬라이스법을 이용하는 경우, 원료로서 사용하는 흑연 입자(A)의 입자 지름은, 질량 평균 입자 지름으로서, 열전도 재료의 평균 두께의 1배~5배인 것이 보다 바람직하고, 2배~4배인 것이, 더 바람직하다. 흑연 입자(A)의 질량 평균 입자 지름이, 열전도 재료의 평균 두께의 1배 이상이면, 더 효율적인 열전도 패스가 형성되어, 열전도성이 보다 향상된다. 열전도 재료의 평균 두께의 5배 이하이면, 흑연 입자(A)의 표면부를 차지하는 면적이 너무 커지는 것이 억제되어, 밀착성의 저하를 억제할 수 있다.
- [0095] 흑연 입자(A)의 질량 평균 입자 지름(D50)은, 레이저 회절·산란법을 적용한 레이저 회절식 입도 분포 장치(예를 들면, 닛코소 가부시킴가이샤 「마이크로 트럭 시리즈 MT3300」)를 사용하여 측정되며, 질량 누적 입도 분포

곡선을 소립경 측에서 그린 경우에, 질량 누적이 50%가 되는 입자 지름에 대응한다.

- [0096] 열전도 재료는, 인편상 입자, 타원체상 입자 및 봉상 입자 이외의 흑연 입자를 포함하고 있어도 되고, 구상 흑연 입자, 인조 흑연 입자, 박편화(薄片化) 흑연 입자, 산 처리 흑연 입자, 팽창 흑연 입자, 탄소섬유 등을 포함하고 있어도 된다.
- [0097] 흑연 입자(A)로서는, 인편상 입자가 바람직하고, 결정화도가 높고 또한 대립경(大粒徑)의 인편을 얻기 쉬운 관점에서, 시트화한 팽창 흑연을 분쇄하여 얻어지는, 인편상의 팽창 흑연 입자가 바람직하다.
- [0098] 열전도 재료 중의 흑연 입자(A)의 함유율은, 예를 들면, 열전도성과 밀착성의 밸런스의 관점에서, 15체적%~50체적%인 것이 바람직하고, 20체적%~45체적%인 것이 보다 바람직하고, 25체적%~40체적%인 것이 더 바람직하다.
- [0099] 흑연 입자(A)의 함유율이 15체적% 이상이면, 열전도성이 향상되는 경향이 있다. 또한, 흑연 입자(A)의 함유율이 50체적% 이하이면, 점착성 및 밀착성의 저하를 억제할 수 있는 경향이 있다.
- [0100] 또한, 열전도 재료가 인편상 입자, 타원체상 입자 및 봉상 입자 이외의 흑연 입자를 함유하는 경우에는, 흑연 입자 전체의 함유율이 상기 범위인 것이 바람직하다.
- [0101] 흑연 입자(A)의 함유율(체적%)은, 다음 식에 의해 구한 값이다.
- [0102] 흑연 입자(A)의 함유율(체적%)=
$$\frac{A_w}{A_d} / \{ \frac{A_w}{A_d} + \frac{X_w}{X_d} \} \times 100$$
- [0103] A_w : 흑연 입자(A)의 질량 조성(질량%)
- [0104] X_w : 그 밖의 임의 성분의 질량 조성(질량%)
- [0105] A_d : 흑연 입자(A)의 밀도(본 개시에 있어서 A_d 는 2.1로 계산한다.)
- [0106] X_d : 그 밖의 임의 성분의 밀도
- [0107] 열전도층 중의 구상 흑연 입자, 인조 흑연 입자, 산 처리 흑연 입자 또는 탄소섬유의 함유율은, 각각 독립하여 0체적%~10체적%여도 되고, 0체적%~5체적%여도 되고, 0체적%~1체적%여도 된다.
- [0108] 열전도층 중의 흑연 입자(A)와 탄소섬유와의 질량비인 흑연 입자(A):탄소섬유는, 100:0~100:30이어도 되고, 100:0~100:20이어도 되고, 100:0~100:10이어도 된다. 탄소섬유는 일반적으로 딱딱하기 때문에, 흑연 입자(A)보다도 탄소섬유의 양이 적음으로써, 열전도 시트의 유연성을 확보할 수 있으며, 접촉 열저항의 상승이 억제되는 경향이 있다.
- [0109] <25℃에서 액상인 성분(B)>
- [0110] 열전도 재료는, 25℃에서 액상인 성분(이하, 「액상 성분(B)」이라고도 한다)을 함유해도 된다. 본 개시에 있어서 「25℃에서 액상」이란, 25℃에 있어서 유동성과 점성을 나타내며, 또한 점성을 나타내는 척도인 점도가 25℃에 있어서 0.0001Pa·s~1000Pa·s인 물질을 의미한다. 25℃에서 액상인 성분의 점도는, 25℃에서 레오 미터를 사용하여 5.0s⁻¹의 전단 속도의 조건으로 측정된다. 상세하게는, 「점도」는, 전단 점도로서, 콘 플레이트(직경 40mm, 콘각 0°)를 장착한 회전식의 전단 점도계를 사용하여, 온도 25℃에서 측정된다.
- [0111] 액상 성분(B)의 25℃에 있어서의 점도는 0.001Pa·s~100Pa·s인 것이 바람직하고, 0.01Pa·s~10Pa·s인 것이 보다 바람직하다.
- [0112] 액상 성분(B)은 25℃에서 액상인 한 특별히 제한되지 않으며, 고분자 화합물(폴리머)인 것이 바람직하다. 액상 성분(B)으로서, 폴리부텐, 폴리이소프렌, 폴리설파이드, 아크릴로나이트릴 고무, 실리콘 고무, 탄화수소 수지, 터펜 수지, 아크릴 수지 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 내열성의 관점에서, 액상 성분(B)은 폴리부텐을 포함하는 것이 바람직하다. 액상 성분(B)은 1종을 단독으로 사용해도 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0113] 여기서, 폴리부텐은 아이소부텐 또는 노멀부텐을 중합하여 얻어지는 중합체를 말한다. 아이소부텐과 노멀부텐을 공중합하여 얻어지는 중합체도 포함한다. 구조로서는, 「-CH₂-C(CH₃)₂-」 또는, 「-CH₂-CH(CH₂CH₃)-」로 표시되는 구조 단위를 가지는 중합체를 말한다. 폴리아이소부틸렌이라고 칭해지는 경우도 있다. 폴리부텐은 상기 구조를 포함하고 있으면 되고, 그 밖의 구조에 대하여는 특별히 제한되지 않는다.
- [0114] 폴리부텐으로서, 부텐의 단독 중합체, 및 부텐과 다른 모노머 성분과의 공중합체를 들 수 있다. 다른 모노머 성분과의 공중합체의 예로서는, 예를 들면, 아이소부텐과 스타이렌의 공중합체 또는 아이소부텐과 에틸렌의 공

중합체를 들 수 있다. 공중합체는, 랜덤 공중합체, 블록 공중합체 및 그래프트 공중합체 중 어느 하나여도 된다.

- [0115] 폴리부텐으로서, 예를 들면, 니치유 가부시키가이샤의 「니치유 폴리부텐™·에마웨트(등록상표)」, JXTG에네르기 가부시키가이샤의 「닛세키 폴리부텐」, JXTG에네르기 가부시키가이샤의 「테트락스」, JXTG에네르기 가부시키가이샤의 「하이모르」, 및 토모에고교 가부시키가이샤의 「폴리아이소부틸렌」을 들 수 있다.
- [0116] 액상 성분(B)은, 예를 들면, 내열성 및 내습도성이 우수한 응력 완화제와 점착성 부여제를 겸하여 주로 기능한다고 생각된다. 또한, 후술하는 핫멜트제(E)와 병용함으로써, 응집력 및 가열시의 유동성을 보다 높일 수 있는 경향이 있다.
- [0117] 열전도 재료 중, 액상 성분(B)의 함유율은, 점착력, 밀착성, 시트 강도, 내가수분해성 등을 보다 높이는 관점에서, 10체적%~55체적%인 것이 바람직하고, 15체적%~50체적%인 것이 보다 바람직하고, 20체적%~50체적%인 것이 더 바람직하다.
- [0118] 액상 성분(B)의 함유율이 10체적% 이상이면, 점착성 및 밀착성이 보다 향상되는 경향이 있다. 액상 성분(B)의 함유율이 55체적% 이하이면, 시트 강도 및 열전도성의 저하를 보다 효과적으로 억제할 수 있는 경향이 있다.
- [0119] <아크릴산 에스터계 고분자(C)>
- [0120] 열전도 재료는 아크릴산 에스터계 고분자(C)를 함유해도 된다. 아크릴산 에스터계 고분자(C)는, 예를 들면, 점착성 부여제와 휨에 추종하기 위해 두께가 복원되는 탄성 부여제를 겸해 주로 기능한다고 생각된다.
- [0121] 아크릴산 에스터계 고분자(C)는, 예를 들면, 아크릴산 뷰틸, 아크릴산 에틸, 아크릴로나이트릴, 아크릴산, 글라이시딜메타크릴레이트, 아크릴산2-에틸헥실 등을 주요한 원료 성분으로 하고, 필요에 따라 아크릴산 메틸 등을 공중합시킨 아크릴산 에스터계 고분자(소위 아크릴 고무)가 적합하게 사용된다. 아크릴산 에스터계 고분자(C)는 1종을 단독으로 사용해도 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0122] 아크릴산 에스터계 고분자(C)의 중량 평균 분자량은 100,000~1,000,000인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 250,000~700,000이며, 더 바람직하게는 400,000~600,000이다. 중량 평균 분자량이, 100,000 이상이면 막(膜) 강도가 우수한 경향이 있으며, 1,000,000 이하이면 유연성이 우수한 경향이 있다.
- [0123] 중량 평균 분자량은, 겔퍼미에이션크로마토그래피에 의해, 표준 폴리스타이렌의 검량선을 사용하여 측정할 수 있다.
- [0124] 아크릴산 에스터계 고분자(C)의 유리 전이 온도(Tg)는, 20℃ 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 -70℃~-0℃이며, 더 바람직하게는 -50℃~-20℃이다. 유리 전이 온도가 20℃ 이하이면, 유연성 및 점착성이 우수한 경향이 있다.
- [0125] 유리 전이 온도(Tg)는, 인장에 의한 동적 점탄성 측정을 실시하고, 그에 따라 도출되는 tan δ로부터 산출할 수 있다.
- [0126] 아크릴산 에스터계 고분자(C)는 내부 첨가에 의해 열전도 재료 전체에 존재시켜도 되고, 표면에 도포 또는 함침함으로써 표면에 국재화시켜도 된다. 특히, 편면에 도포, 또는 편면에 함침하면, 편면에만 강한 텍성을 부여할 수 있기 때문에, 핸들링성이 좋은 시트를 얻을 수 있는 점에서 바람직하다.
- [0127] 열전도층 중, 아크릴산 에스터계 고분자(C)의 함유율은, 3체적%~25체적%인 것이 바람직하고, 5체적%~20체적%인 것이 보다 바람직하고, 7체적%~15체적%인 것이 더 바람직하다.
- [0128] <핫멜트제(D)>
- [0129] 열전도 재료는 핫멜트제(D)를 함유하고 있어도 된다. 핫멜트제(D)는, 열전도 재료의 강도 향상, 및 가열시의 유동성을 향상시키는 효과가 있다.
- [0130] 핫멜트제(D)로서는, 예를 들면, 방향족계 석유 수지, 터펜페놀 수지, 및 사이클로펜타다이엔계 석유 수지를 들 수 있다. 또한, 핫멜트제(D)는 수소화 방향족계 석유 수지, 또는 수소화 터펜페놀 수지이어도 된다. 핫멜트제(D)는 1종을 단독으로 사용해도 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0131] 그 중에서도, 액상 성분(B)으로서 폴리부텐을 사용하는 경우에는, 핫멜트제(D)는, 수소화 방향족계 석유 수지, 및 수소화 터펜페놀 수지로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종을 포함하는 것이 바람직하다. 이들 핫

멜트제(D)는, 안정성이 높고, 또한 폴리부텐과의 상용성이 우수하기 때문에, 열전도 재료를 구성한 경우에, 보다 우수한 열전도성, 유연성, 및 핸들링성을 달성할 수 있는 경향이 있다.

[0132] 시판으로 입수 가능한 수소화 방향족계 석유 수지로서는, 예를 들면, 아라카와 가가쿠고교 가부시킴이사의 「아르콘」, 및 이데미츠코산 가부시킴이사의 「아이마브」를 들 수 있다. 또한, 시판으로 입수 가능한 수소화 터펜페놀 수지로서는, 예를 들면, 야스하라 케미칼 가부시킴이사의 「클리어론」을 들 수 있다. 또한, 시판으로 입수 가능한 사이클로펜타다이엔계 석유 수지로서는, 예를 들면, 닛뽀제온 가부시킴이사의 「퀀트」, 및 마루젠 세키유가가쿠 가부시킴이사의 「마르카렛트」를 들 수 있다.

[0133] 핫멜트제(D)는, 25℃에서 고형이며, 연화 온도가 40℃~150℃인 것이 바람직하다. 핫멜트제(D)로서 열가소성의 수지를 사용하면, 열압착시의 연화 유동성이 향상되는 결과, 밀착성이 향상되는 경향이 있다. 또한, 연화 온도가 40℃ 이상이면, 실온 부근에서의 응집력을 유지할 수 있는 결과, 필요한 시트 강도를 얻기 쉬워져 취급성이 우수한 경향이 있다. 연화 온도가 150℃ 이하이면, 열압착시의 연화 유동성이 높아지는 결과, 밀착성이 향상되는 경향이 있다. 연화 온도는, 60℃~120℃인 것이 보다 바람직하다. 또한, 연화 온도는, 환구법(JIS K2207:1996)으로 측정된다.

[0134] 열전도 재료 중의 핫멜트제(D)의 함유율은, 점착력, 밀착성, 시트 강도 등을 높이는 관점에서, 3체적%~25체적%인 것이 바람직하고, 5체적%~20체적%인 것이 보다 바람직하고, 5체적%~15체적%인 것이 더 바람직하다.

[0135] 핫멜트제(D)의 함유율이 3체적% 이상이면, 점착력, 가열 유동성, 시트 강도 등이 충분하게 되는 경향이 있으며, 25체적% 이하이면, 유연성이 충분하게 되어 핸들링성 및 내서멀 사이클성이 우수한 경향이 있다.

[0136] <산화 방지제(E)>

[0137] 열전도 재료는, 예를 들면 고온시의 열안정성을 부여하는 목적으로, 산화 방지제(F)를 함유하고 있어도 된다. 산화 방지제(E)로서는, 페놀계 산화 방지제, 인계 산화 방지제, 아민계 산화 방지제, 황계 산화 방지제, 하이드라진계 산화 방지제, 아마이드계 산화 방지제 등을 들 수 있다. 산화 방지제(E)는, 사용되는 온도 조건 등에 의해 적절히 선택해도 되며, 페놀계 산화 방지제가 보다 바람직하다. 산화 방지제(E)는 1종을 단독으로 사용해도 2종 이상을 병용해도 된다.

[0138] 시판으로 입수 가능한 페놀계 산화 방지제로서는, 예를 들면, 가부시킴이사의 아데카의 아데카스타브 A0-50, 아데카스타브 A0-60, 및 아데카스타브 A0-80을 들 수 있다.

[0139] 열전도 재료 중의 산화 방지제(E)의 함유율은 특별히 제한되지 않으며, 0.1체적%~5체적%인 것이 바람직하고, 0.2체적%~3체적% 이하인 것이 보다 바람직하고, 0.3체적%~1체적% 이하인 것이 더 바람직하다. 산화 방지제(E)의 함유율이 0.1체적% 이상이면, 산화 방지 효과를 충분히 얻을 수 있는 경향이 있다. 산화 방지제(E)의 함유율이 5체적% 이하이면 열전도 재료의 강도가 저하하는 것을 억제할 수 있는 경향이 있다.

[0140] <그 밖의 성분>

[0141] 열전도 재료는, 흑연 입자(A), 액상 성분(B), 아크릴산 에스터계 고분자(C), 핫멜트제(D), 및 산화 방지제(E) 이외의 그 밖의 성분을, 목적에 따라 함유하고 있어도 된다. 예를 들면, 열전도 재료는 난연성의 관점에서, 난연제를 함유하고 있어도 된다. 난연제는 특별히 한정되지 않으며, 통상 사용되는 난연제로부터 적절히 선택할 수 있다. 예를 들면, 적인계 난연제 및 인산 에스터계 난연제를 들 수 있다. 그 중에서도, 안전성이 우수하고, 가소화 효과에 의해 밀착성이 향상되는 관점에서, 인산 에스터계 난연제가 바람직하다.

[0142] 적인계 난연제로서는, 순수한 적인 입자 외에, 안전성 또는 안정성을 높이는 목적으로 여러 가지의 코팅을 실시한 것, 마스터 배치화한 것 등을 사용해도 된다. 구체적으로는, 린가카쿠고교 가부시킴이사의 노바레드, 노바엑셀, 노바쿠엘, 노바펠릿(모두 상품명) 등을 들 수 있다.

[0143] 인산 에스터계 난연제로서는, 트라이메틸포스페이트, 트라이에틸포스페이트, 트라이부틸포스페이트 등의 지방족 인산 에스터; 트라이페닐포스페이트, 트라이크레실포스페이트, 크레실다이페닐포스페이트, 트라이자일레닐포스페이트, 크레실다이2,6-자일레닐포스페이트, 트리스(t-부틸화 페닐)포스페이트, 트리스(아이소프로필화 페닐)포스페이트, 인산 트리아릴아이스프로필화물 등의 방향족 인산 에스터; 레조시놀비스다이페닐포스페이트, 비스페놀 A 비스(다이페닐포스페이트), 레조시놀비스다이자일레닐포스페이트 등의 방향족 축합 인산 에스터 등을 들 수 있다.

[0144] 이들 중에서도 비스페놀 A 비스(다이페닐포스페이트)가, 내가수분해성이 우수하고, 또한 가소화 효과에 의해 밀

착성을 향상시키는 효과가 우수한 관점에서 바람직하다.

- [0145] 열전도 재료 중의 난연제의 함유율은 제한되지 않으며, 난연성이 발휘되는 양으로 사용할 수 있고, 30체적% 이하 정도로 하는 것이 바람직하고, 난연제 성분이 열전도층의 표면에 스며나오는 것에 의한 열저항의 악화를 억제하는 관점에서, 20체적% 이하로 하는 것이 바람직하다.
- [0146] [열전도 시트 제작용 부재의 조합 2]
- [0147] 본 개시의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 2는, 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료와, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 구비한다. 열전도 재료로 구성되는 열전도층상의 적어도 일부에 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료를 도포하여 액상층을 형성함으로써 열전도 시트를 얻을 수 있다.
- [0148] 본 개시의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 2에 있어서의 열전도 재료의 바람직한 형태는, 전술의 본 개시의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 1에 있어서의 열전도 재료의 바람직한 형태와 동일하다.
- [0149] 본 개시의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 2는, 열전도 재료로 구성되는 열전도층상의 적어도 일부에, 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료를 도포함으로써 액상층을 구비하는 열전도 시트를 형성하기 위한 재료이다. 액상층이 형성된 열전도층을 발열체, 방열체 등의 피착체와 가열 압착시킬 때, 액상층이 열전도층과 피착체 사이에서 유동한다. 이에 의해, 열전도 시트와 피착체의 간극이 유동한 액상층으로 메워지기 때문에, 액상층을 통하여 열전도 시트와 피착체를 밀착시킬 수 있다. 그 결과, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다. 또한, 액상층에 금속 성분이 포함됨으로써 액상층은 열전도성이 우수하기 때문에, 열전도 시트의 열저항의 상승이 억제된다.
- [0150] (금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료)
- [0151] 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료는, 0℃~50℃ 중 적어도 일부의 온도에서 액상이 되는 금속 성분을 포함하는 열전도성의 재료를 의미한다. 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료의 열전도율은, 5W/(m·K) 이상인 것이 바람직하고, 10W/(m·K) 이상인 것이 보다 바람직하고, 30W/(m·K) 이상인 것이 더 바람직하다.
- [0152] 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료는, 액상의 금속 성분으로 이루어지는 재료여도 되고, 액상의 금속 성분과 그 밖의 성분으로 이루어지는 재료여도 된다.
- [0153] 액상 열전도성 재료 중에 포함되는 금속 성분의 함유율은, 액상 열전도성 재료 전량에 대하여 50질량%~100질량%여도 되고, 70질량%~100질량%여도 되고, 90질량%~100질량%여도 된다.
- [0154] 전술의 금속 성분의 용점은, 50℃ 이하인 것이 바람직하고, 45℃ 이하인 것이 보다 바람직하고, 0℃~40℃인 것이 더 바람직하다.
- [0155] 전술의 금속 성분으로서, 갈륨, 인듐, 주석 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 갈륨을 포함하는 금속 성분이 바람직하다.
- [0156] [열전도 시트]
- [0157] 본 개시의 열전도 시트는, 열전도성 입자를 포함하는 열전도 재료를 포함하는 열전도층과, 상기 열전도층의 주면의 적어도 일부에 위치하는 본 개시의 액상 열전도 재료인 제1 액상 열전도 재료, 또는 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료인 제2 액상 열전도 재료를 포함하는 액상층을 구비한다.
- [0158] 제1 액상 열전도 재료의 바람직한 형태는, 전술의 액상 열전도 재료의 바람직한 형태와 동일하다. 제2 액상 열전도성 재료의 바람직한 형태는, 전술의 열전도 시트 제작용 부재의 조합 2에 있어서의 금속 성분을 포함하는 액상 열전도 재료와 동일하다.
- [0159] 본 개시의 열전도 시트에서는, 피착체와 접촉하는 표면에 요철이 존재하고 있는 경우가 있다. 이 때, 열저항의 대부분이, 열전도 시트와 열전도 시트에 접촉하는 발열체, 방열체 등의 피착체의 접촉에 의해 생기는 간극에 의한 저항(접촉 열저항)에 유래한다. 본 개시의 열전도 시트에서는, 제1 액상 열전도 재료 또는 제2 액상 열전도 재료를 포함하는 액상층을 열전도층의 주면의 적어도 일부에 배치함으로써, 열전도 시트와 발열체, 방열체 등의 피착체를 가열 압착시킬 때에 열, 압력 등에 의해 액상층이 유동한다. 액상층이 유동함으로써 열전도 시트와 피착체를 가열 압착할 때에 생기는 간극(예를 들면, 열전도 시트의 요철에 유래하는 간극)이 해당 액상층으로 메워진다. 이에 의해, 열전도 시트와 피착체의 간극을 저감하면서, 열전도 시트와 피착체를 밀착시킬 수 있기 때문에, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다.
- [0160] 발열체, 방열체 등의 피착체의 표면에 요철이 존재하는 경우에도, 접촉 열저항이 발생하기 쉬워진다. 이 경우,

열전도 시트에 포함되는 열전도 필러 등의 배향을 조정시키는 방법으로는 열저항을 저감시키는 것은 곤란하다. 한편, 본 개시의 열전도 시트를 사용함으로써, 액상층을 통하여 열전도 시트와 표면에 요철이 존재하는 피착체를 밀착시킬 수 있다. 이 때, 열전도 시트와 피착체를 가열 압착할 때에 생기는 간극(예를 들면, 피착체의 요철에 유래하는 간극)이 액상층으로 메워지기 때문에, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다.

- [0161] 열전도층의 평균 두께는 특별히 제한되지 않으며, 목적에 따라 적절히 선택할 수 있다. 열전도층의 두께는 사용되는 반도체 패키지 등의 사양에 의해 적절히 선택할 수 있다. 두께가 작을수록 열저항이 저하하는 경향이 있으며, 두께가 클수록 휨 추종성이 향상되는 경향이 있다. 열전도층의 평균 두께는, 20 μm ~3000 μm 여도 되고, 열전도성 및 밀착성의 관점에서, 30 μm ~500 μm 인 것이 바람직하고, 50~400 μm 인 것이 보다 바람직하다.
- [0162] 열전도층의 평균 두께는, 전자현미경을 사용하여, 측정 대상의 단면을 관찰함으로써 무작위로 3개소의 두께를 측정하여, 그 산술 평균값으로서 주어진다.
- [0163] 본 개시의 열전도 시트에 있어서, 액상층은 열전도층의 주면의 적어도 일부에 위치하고 있으면 되고, 해당 주면 전체에 액상층이 위치해도 되고, 해당 주면의 일부(예를 들면, 발열체, 방열체 등의 피착체와 접촉하는 부분)에 액상층이 위치해도 된다.
- [0164] 열전도층에 있어서, 하나의 주면에 액상층이 위치해도 되고, 두 주면에 액상층이 위치해도 된다.
- [0165] 액상층의 최대 두께는, 0.5 μm ~50 μm 인 것이 바람직하고, 0.5 μm ~30 μm 인 것이 보다 바람직하고, 0.5 μm ~20 μm 인 것이 더 바람직하다. 액상층의 최대 두께가 0.5 μm 이상임으로써, 피착체와 열전도 시트 사이의 간극이 보다 저감되어 접촉 열저항을 보다 저감할 수 있는 경향이 있다. 액상층의 최대 두께가 50 μm 이하임으로써, 열전도 시트의 열전도성에 보다 우수하고, 또한, 피착체와 열전도 시트를 접촉시켰을 때에 액상층이 외부에 누출되는 것을 억제할 수 있는 경향이 있다.
- [0166] 전자현미경을 사용하여, 측정 대상의 단면을 관찰함으로써 열전도층의 최대 두께 및 액상층의 최대 두께를 측정해도 된다. 혹은, 마이크로 미터를 사용하여 열전도층의 최대 두께를 측정해도 되고, 열전도층의 최대 두께 및 액상층을 구비하는 열전도 시트의 최대 두께를 측정하여, 해당 열전도 시트의 최대 두께로부터 열전도층의 최대 두께를 뺀으로써 액상층의 최대 두께를 측정해도 된다.
- [0167] 열전도층의 두 주면에 액상층이 형성되어 있는 경우, 액상층의 최대 두께는, 두 주면에 형성된 액상층의 두께의 합계의 최대값을 의미한다.
- [0168] 액상층이 제1 액상 열전도 재료를 포함하는 경우, 액상층은 경화 가능해도 되고, 가열에 의해 경화 가능해도 된다. 가열에 의해 경화 가능한 경우, 예를 들면, 제1 액상 열전도 재료는, 전술의 25℃에서 액상인 열경화성의 수지 성분을 포함하는 것이 바람직하다.
- [0169] 열전도 시트는, 적어도 한쪽의 면에 보호 필름을 가지고 있어도 되고, 양면에 보호 필름을 가지고 있는 것이 바람직하다. 이에 의해, 열전도 시트의 점착면을 보호할 수 있다.
- [0170] 보호 필름은, 예를 들면, 폴리에틸렌, 폴리에스터, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리이미드, 폴리에테리미드, 폴리에테르나프탈레이트, 메틸펜텐 등의 수지 필름, 코트지, 코트포, 및 알루미늄 등의 금속박을 사용할 수 있다. 이들 보호 필름은, 1종 단독으로 사용해도, 2종 이상 조합하여 다층 필름으로 해도 된다. 보호 필름은, 실리콘계, 실리카계 등의 이형제 등으로 표면 처리되어 있는 것이 바람직하다.
- [0171] 열전도 시트의 용도는 특별히 한정되지 않는다. 본 개시의 열전도 시트는, 반도체 칩을 방열체로 하고, 히트 스프레더를 방열체로 한 경우의, 반도체 칩과 히트 스프레더를 개재하는 열전도 시트(TIM1; Thermal Interface Material 1)로서 특히 적합하다.
- [0172] 열전도 시트의 실시 형태에 대해 도 1을 사용하여 설명한다. 본 개시의 열전도 시트는 이하의 실시 형태에 한정되지 않는다.
- [0173] 도 1에 나타내는 열전도 시트(1)는, 열전도층(11) 및 액상층(12, 13)을 구비하고, 열전도층(11)의 한쪽의 주면에 액상층(12)이 위치하고, 또한, 열전도층(11)의 다른 쪽의 주면에 액상층(13)이 위치하고 있다.
- [0174] 도 1에 나타내듯이, 열전도 시트(1)의 두 주면은, 액상층(12, 13)이 설치됨으로써 요철이 저감되어 있어도 된다. 열전도층(11)의 주면에 액상층(12, 13)이 설치되어 있음으로써, 열전도층(11)의 요철을 액상층(12, 13)으로 메울 수 있고, 열전도 시트(1)를 피착체와 접촉시켰을 때에 피착체의 표면의 요철도 액상층(12, 13)에 의해 메울 수 있다.

- [0175] [열전도 시트의 제조 방법]
- [0176] 열전도 시트의 제조 방법은, 상기의 구성을 가지는 열전도 시트를 얻는 방법이면 특별히 제한되지 않는다. 열전도 시트의 제조 방법은, 상기 열전도성 입자를 함유하는 조성물을 준비하는 공정(「준비 공정」이라고도 한다)과, 상기 조성물을 사용하여 상기 열전도층을 형성하는 공정(「형성 공정」이라고도 한다)과, 상기 열전도층의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정(「액상층 형성 공정」이라고도 한다)을 가진다.
- [0177] <준비 공정>
- [0178] 준비 공정에서는, 열전도성 입자와 임의의 그 밖의 성분을 함유하는 조성물을 준비한다. 각 성분을 배합하는 방법으로서, 각 성분을 균일하게 혼합하는 것이 가능하면, 어느 방법을 사용해도 되고, 특별히 한정되지 않는다.
- [0179] <형성 공정>
- [0180] 형성 공정에서는, 열전도성 입자와 임의의 그 밖의 성분을 함유하는 조성물을 사용하여 상기 열전도층을 형성한다. 예를 들면, 전술의 조성물을 시트상으로 성형하여 열전도층을 형성하면 된다.
- [0181] <액상층 형성 공정>
- [0182] 액상층 형성 공정은, 열전도층의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성할 수 있으면, 어느 방법이어도 되고, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면, 열전도층의 주면의 적어도 일부에 제1 액상 열전도 재료 또는 제2 액상 열전도 재료를 부여하면 된다.
- [0183] 열전도 시트의 제조 방법에서는, 열전도 시트의 고열 전도성의 관점에서, 열전도성 입자가 전술의 흑연 입자(A)인 열전도 시트를 제조하는 것이 바람직하다. 흑연 입자(A)를 포함하는 열전도 시트의 제조 방법으로서, 예를 들면 이하의 방법을 들 수 있다.
- [0184] 일 실시 형태에 있어서, 열전도 시트의 제조 방법은, 흑연 입자(A)와 임의의 그 밖의 성분을 함유하는 조성물을 준비하는 공정(전술의 준비 공정)과, 상기 조성물을 시트화하여 시트를 얻는 공정(전술의 형성 공정의 일부이며, 「시트 제작 공정」이라고도 한다)과, 상기 시트의 적층체를 제작하는 공정(전술의 형성 공정의 일부이며, 「적층체 제작 공정」이라고도 한다)과, 상기 적층체의 측단면을 슬라이스하는 공정(전술의 형성 공정의 일부이며, 「슬라이싱 공정」이라고도 한다)과, 슬라이스하여 얻어진 슬라이스 시트(열전도층에 상당)의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성하는 공정(전술의 액상층 형성 공정)을 가진다.
- [0185] 또한, 열전도 시트의 제조 방법은, 액상층 형성 공정 후에 열전도 시트에 보호 필름을 첨부(貼付)하여 라미네이트 하는 공정(「라미네이트 공정」이라고도 한다)을 더 가지고 있어도 된다.
- [0186] 열전도 시트를 이러한 방법으로 제조함으로써, 효율적인 열전도 패스가 형성되고 쉽고, 그 때문에 고열 전도성과 밀착성이 우수한 열전도 시트를 얻을 수 있는 경향이 있다.
- [0187] <준비 공정>
- [0188] 준비 공정에서는, 흑연 입자(A)와 임의의 그 밖의 성분(예를 들면, 25℃에서 액상인 성분(B), 아크릴산 에스테르계 고분자(C), 핫멜트제(D), 산화 방지제(E), 그 밖의 성분)을 함유하는 조성물을 준비한다. 각 성분을 배합하는 방법으로서, 각 성분을 균일하게 혼합하는 것이 가능하면, 어느 방법을 사용해도 되고, 특별히 한정되지 않는다. 또한, 조성물은 시판의 것을 입수하여 준비해도 된다. 조성물의 조제의 상세는, 일본국 공개특허공보 특개2008-280496호의 단락 [0033]을 참조할 수 있다.
- [0189] <시트 제작 공정>
- [0190] 시트 제작 공정은, 앞의 공정에서 얻어진 조성물을 시트화할 수 있으면, 어느 방법으로 실시해도 되고, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면, 압연, 프레스, 압출, 및 도공으로 이루어지는 균으로부터 선택되는 적어도 하나의 성형 방법을 이용하여 실시하는 것이 바람직하다. 시트 제작 공정의 상세는, 일본국 공개특허공보 특개2008-280496호의 단락 [0034]를 참조할 수 있다.
- [0191] <적층체 제작 공정>
- [0192] 적층체 제작 공정은, 앞의 공정에서 얻어진 시트의 적층체를 형성한다. 적층체는, 예를 들면, 독립한 복수 매의 시트를 차례로 중첩하여 제작해도 되고, 1매의 시트를 접어 제작해도 되고, 시트의 1매를 권회(捲回)시켜 제작

해도 된다. 적층체 제작 공정의 상세는, 일본국 공개특허공보 특개2008-280496호의 단락 [0035]~[0037]을 참조할 수 있다.

[0193] <슬라이싱 공정>

[0194] 슬라이싱 공정은, 앞의 공정에서 얻어진 적층체의 측면면을 슬라이스할 수 있으면, 어느 방법이어도 되고, 특별히 한정되지 않는다. 열전도층의 두께 방향으로 관통하는 흑연 입자(A)에 의해 극히 효율적인 열전도 패스가 형성되고, 열전도성이 보다 향상되는 관점에서, 흑연 입자(A)의 질량 평균 입자 지름의 2배 이하의 두께로 슬라이스하는 것이 바람직하다. 슬라이싱 공정의 상세는, 일본국 공개특허공보 특개2008-280496호의 단락 [0038]을 참조할 수 있다.

[0195] <액상층 형성 공정>

[0196] 액상층 형성 공정은, 슬라이스하여 얻어진 슬라이스 시트(열전도층에 상당)의 주면의 적어도 일부에 액상층을 형성할 수 있으면, 어느 방법이어도 되고, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면, 열전도층의 주면의 적어도 일부에 제1 액상 열전도 재료 또는 제2 액상 열전도 재료를 부여하면 된다.

[0197] <라미네이트 공정>

[0198] 라미네이트 공정은, 액상층 형성 공정에서 얻어진 열전도 시트를 보호 필름에 첩부할 수 있으면, 어느 방법이어도 되고, 특별히 한정되지 않는다.

[0199] [방열 장치]

[0200] 본 개시의 방열 장치는, 발열체와, 방열체와, 발열체 및 방열체 사이에 배치되는 본 개시의 열전도 시트를 구비하고, 상기 열전도층에 있어서, 상기 발열체 측에 위치하는 주면 및 상기 방열체 측에 위치하는 주면 중 적어도 한쪽의 주면의 적어도 일부에 상기 액상층이 위치하는 장치이다. 열전도층에 있어서, 발열체 측에 위치하는 주면의 적어도 일부 및 방열체 측에 위치하는 주면의 적어도 일부에 액상층이 각각 위치하는 것이 바람직하고, 방열체 측에 위치하는 주면의 발열체와 대면하는 영역 및 방열체 측에 위치하는 주면의 방열체와 대면하는 영역에 액상층이 각각 위치하는 것이 보다 바람직하다.

[0201] 발열체로서는, 반도체 칩, 반도체 패키지, 파워 모듈 등을 들 수 있다. 방열체로서는, 히트 스프레더, 히트 싱크, 수냉 파이프 등을 들 수 있다.

[0202] 이하, 방열 장치의 일례를 도 2를 이용하여 보다 구체적으로 설명한다. 발열체로서 반도체 칩을 사용하고, 방열체로서 히트 스프레더를 사용한 방열 장치에 대해 설명한다. 반도체 칩 및 히트 스프레더는, 각각 발열체 및 방열체의 일례이며, 본 개시는 이들에 한정되지 않는다. 열전도 시트(1)를, 반도체 칩(2)에 대하여 그 한쪽 면을 밀착시키고, 다른 쪽 면을 히트 스프레더(3)에 밀착시켜 사용한다. 반도체 칩(2)은 기판(4)에 언더필재(5)를 사용하여 고정되어 있으며, 히트 스프레더(3)은 쉘재(6)에 의해 기판(4)에 고착되고, 열전도 시트(1)와 반도체 칩(2) 및 히트 스프레더(3)의 밀착성을, 누름으로써 향상시키고 있다. 또한, 1매의 열전도 시트(1)에 대하여, 발열체 및 방열체가 각각 1개일 필요는 없다. 예를 들면, 1매의 열전도 시트(1)에 대하여 복수의 반도체 칩(2)이 설치되어도 되고, 복수 매의 열전도 시트(1)에 대하여 하나의 반도체 칩(2)이 설치되어도 되고, 복수 매의 열전도 시트(1)에 대하여 복수의 반도체 칩(2)이 설치되어도 된다. 열전도 시트(1)의 반도체 칩(2) 측의 주면 및 열전도 시트(1)의 히트 스프레더(3) 측의 주면에는, 액상층이 위치하고 있다. 예를 들면, 도 1에 나타나는 열전도 시트(1)에서는, 액상층(13)이 열전도 시트(1)의 반도체 칩(2) 측의 주면에 위치하고, 액상층(12)이 열전도 시트(1)의 히트 스프레더(3) 측의 주면에 위치하고 있다. 또한, 액상층(13)이 반도체 칩(2)과 접촉하고 있어도 되고, 액상층(12)이 히트 스프레더(3)와 접촉하고 있어도 된다.

[0203] 방열 장치는, 발열체와 방열체 사이에, 본 개시의 열전도 시트를 배치시켜 이루어진다. 열전도 시트를 통하여 발열체와 방열체가 적층됨으로써, 발열체로부터의 열을 방열체에 효율적으로 전도할 수 있다. 효율적으로 열전도할 수 있음으로써, 방열 장치의 사용에 있어서 수명이 향상되고, 장기 사용에 있어서도 안정되어 기능하는 방열 장치를 제공할 수 있다.

[0204] 열전도 시트를 특히 적합하게 사용할 수 있는 온도 범위는, 예를 들면, -10℃~150℃여도 되고, -10℃~100℃여도 되고, -10℃~80℃여도 된다. 이 점에서, 방열체로서는, 예를 들면, 반도체 패키지, 디스플레이, LED, 전등, 자동차용 파워 모듈 및 산업용 파워 모듈을 적합한 발열체의 예로서 들 수 있다.

[0205] 방열체로서는, 예를 들면, 알루미늄 또는 구리 핀, 판 등을 이용한 히트 싱크, 히트 파이프에 접속되어 있는 알

루미늄 또는 구리 블록, 내부에 냉각 액체를 펌프로 순환시키고 있는 알루미늄 또는 구리 블록, 및 펠티에 소자 및 이를 구비한 알루미늄 또는 구리 블록을 들 수 있다.

- [0206] 방열 장치는, 발열체와 방열체에 열전도 시트의 각각의 면을 접촉시킴으로써 구성된다. 발열체와 열전도 시트의 한쪽 면을 접촉시키는 방법, 및 방열체와 열전도 시트의 다른 쪽 면을 접촉시키는 방법은, 각각을 충분히 밀착시킨 상태에서 고정할 수 있는 방법이면 특별히 제한되지 않는다.
- [0207] 예를 들면, 발열체와 방열체 사이에 열전도 시트를 배치하여, 0.05MPa~1MPa 정도로 가압 가능한 지그로 고정하고, 이 상태로 발열체를 발열시키거나, 또는 오븐 등에 의해 80℃~200℃ 정도로 가열하는 방법을 들 수 있다. 또한, 80℃~200℃, 0.05MPa~1MPa로 가열 가압할 수 있는 프레스기를 사용하는 방법을 들 수 있다. 이 방법에서 바람직한 압력의 범위는, 0.10MPa~1MPa이며, 바람직한 온도의 범위는, 100℃~180℃이다. 압력을 0.10MPa 이상 또는 가열 온도를 100℃ 이상으로 함으로써, 우수한 밀착성이 얻어지는 경향이 있다. 또한, 압력이 1MPa 이하 또는 가열 온도가 180℃ 이하임으로써, 밀착의 신뢰성이 보다 향상되는 경향이 있다. 이것은 열전도 시트가 과도하게 압축되어 두께가 얇아지거나, 주변 부재의 비틀림 또는 잔류 응력이 너무 커지거나 하는 것을 억제할 수 있기 때문이라고 생각된다.
- [0208] 발열체와 방열체 사이에 배치되는 열전도 시트로서는, 전술의 열전도 시트이면 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면, 도 1에 나타나는 열전도 시트를 발열체와 방열체 사이에 배치해도 된다.
- [0209] 도 1에 나타나는 열전도 시트(1)를 사용한 경우, 발열체와 방열체 사이에 열전도 시트(1)를 배치한 상태로 가열 가압함으로써, 열전도 시트(1)의 주면에 위치하는 액상층(12 및 13)이 유동한다. 열전도 시트(1)와 발열체 및 방열체를 가열 압착할 때에 생기는 간극이 유동한 액상층으로 메워진다. 이에 의해, 열전도 시트와 피착체의 간극을 저감할 수 있다.
- [0210] 예를 들면, 열경화성의 수지 성분을 포함하는 제1 액상 열전도 재료를 사용함으로써 액상층이 가열에 의해 경화 가능한 경우, 가열 압착에 의해 액상층이 유동하여 열전도 시트와 피착체의 간극을 메울 때, 가열에 의해 열경화성의 수지 성분이 경화한다. 이에 의해, 액상층이 경화되어 이루어지는 접착층을 통하여 열전도 시트와 피착체를 밀착시킬 수 있다.
- [0211] 열전도 시트는, 발열체와 방열체 사이에 배치하여 압착하기 전의 초기 두께에 대한, 압착 후에 보다 감소한 두께의 비율(압축율)이, 1%~35%여도 된다.
- [0212] 고정은, 클립 외에, 나사, 스프링 등의 지그를 사용해도 되고, 접착제 등의 통상 사용되는 수단으로 더 고정되어 있는 것이, 밀착을 지속시키는데 있어서 바람직하다.
- [0213] 발열체와 열전도 시트의 계면 및 방열체와 열전도 시트의 계면에 있어서, 측정 영역의 면적에 대한 기체 영역의 면적 비율로 산출되는 공극율이 0%~20.0%인 것이 바람직하고, 0%~15.0%인 것이 보다 바람직하다. 이에 의해, 열전도 시트와 발열체 또는 방열체를 가열 압착할 때에 생기는 간극(예를 들면, 열전도 시트의 요철에 유래하는 간극 및 발열체 또는 방열체의 요철에 유래하는 간극)이 저감된다. 그 결과, 접촉 열저항이 큰폭으로 저감된다고 추측된다.
- [0214] 본 개시에서는, 액상 열전도 재료가 위치하는 열전도층의 주면 측 및 액상 열전도 재료가 위치하지 않는 열전도층의 주면 측 양쪽의 경우에 있어서, 공극율이 전술의 수치 범위를 만족하는 것이 바람직하다.
- [0215] 본 개시에 있어서, 계면의 공극율은, 이하와 같이 하여 구할 수 있다. 우선, 초음파 화상 진단 장치(예를 들면, Insight-300, 인사이트 가부시키가이샤)를 사용하여, 반사법, 35MHz의 조건으로 계면의 첩부 상태를 관찰한다. 첩부되지 않은 기체 영역의 면적의 비율을 산출하여, 이하의 식에 근거하여 계면의 공극율을 구하면 된다.
- [0216] 계면의 공극율(%)=100×(기체 영역의 면적/측정 영역의 면적)
- [0217] 계면의 공극율은, 예를 들면, 액상 열전도 재료의 25℃에서의 점도, 열전도층에 대한 액상 열전도 재료의 부여량, 열전도 시트의 압축율 등을 조정함으로써, 그 수치 범위가 조정 가능해진다.
- [0218] **실시예**
- [0219] 이하, 실시예에 의해 본 발명을 상세하게 설명하지만, 본 발명은 이들 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- [0220] [실시예 1~실시예 4]
- [0221] 하기 재료를 표 1에 나타내는 혼합 비율(체적%)이 되도록, 혼련기(가부시키가이샤 모리야마, DS3-SGHM-E형 가압

쌍완형 니더)에 투입하고, 온도 150℃의 조건으로 혼련하여, 조성물을 얻었다.

[0222] <흑연 입자(A)>

[0223] (A)-1: 인편상의 팽창 흑연 입자(쇼와덴코 마테리아르즈 가부시카가이샤 「HGF-L」, 질량 평균 입자 지름: 270 μm, 전술의 X선 회절 측정을 이용한 방법에 의해, 결정 중의 6원환면이, 인편상 입자의 면 방향으로 배향되어 있는 것을 확인했다).

[0224] <액상 성분(B)>

[0225] (B)-1: 아이소뷰텐·노멀뷰텐 공중합체(니치유 가부시카가이샤 「니치유 폴리뷰텐TM·에마웨트(등록상표), 그레이드 30N」)

[0226] (B)-2: 아이소뷰텐의 단독 중합체(신닛뽀세키유 가부시카가이샤 「테트락스 6T」)

[0227] <아크릴산 에스터계 고분자(C)>

[0228] (C)-1: 아크릴산 에스터 공중합 수지(아크릴산 뷰틸/아크릴산 에틸/아크릴로나이트릴/아크릴산 공중합체, 중량 평균 분자량: 53만, Tg= -39℃)

[0229] <핫멜트제(D)>

[0230] (D)-1: 수소화 석유 수지(아라카와 가가쿠고교 가부시카가이샤 「아르콘 P90」)

[0231] <산화 방지제(E)>

[0232] (E)-1: 힌다드페놀계 산화 방지제(가부시카가이샤 아테카 「아테카스타브 A0-60」)

[0233] (열전도층의 제작)

[0234] 혼련하여 얻은 조성물을 압출 성형기(가부시카가이샤 파커, 상품명: HKS40-15형 압출기)에 넣어, 폭 20cm, 두께 1.5mm~1.6mm의 평판 형상으로 압출하여 일차 시트를 얻었다. 얻어진 일차 시트를, 40mm×150mm형 날을 사용하여 프레스 편칭하고, 편칭한 시트를 61매 적층하여, 높이가 80mm가 되도록, 높이 80mm의 스페이서를 사이에 두고 적층 방향으로 90℃에서 30분간 압력을 가하여, 40mm×150mm×80mm의 적층체를 얻었다. 이어서, 이 적층체의 80mm×150mm의 측단면을 목공용 슬라이서로 슬라이스하여, 두께 0.11mm의 열전도층을 얻었다. 또한, 각 실시예 및 각 비교예에서 사용한 열전도층의 두께는 동일한 정도였다.

[0235] (열전도 시트의 제작)

[0236] 하기에 나타내는 조성인 액상 열전도 재료를 준비했다. 준비한 액상 열전도 재료를 전술과 같이 하여 얻은 열전도층의 하나 또는 두 주면에 도포하고, 전용 주격으로 액상 성분을 균일하게 넓히는 조작을 거침으로써 열전도층의 하나 또는 두 주면에 액상층이 형성된 열전도 시트를 얻었다.

[0237] <액상 열전도 재료의 조성>

[0238] 제1 액상 열전도 재료(표 중의 액상 재료 1): Artic Silver, Inc.사의 AS-05A(액상 에스터 화합물 및 은 입자 함유, 필러의 함유율 86질량%, 25℃에서의 점도 145Pa·s, 열전도율 9W/(m·K))

[0239] 제2 액상 열전도 재료(표 중의 액상 재료 2): JunPus International Co., Ltd.사의 JP-DX1(액상 실리콘 화합물 및 나노 다이아몬드 함유, 필러의 함유율 92질량%, 25℃에서의 점도 3000Pa·s, 열전도율 16W/(m·K))

[0240] 제3 액상 열전도 재료(표 중의 액상 재료 3): Thermal Grizzly사의 Conductionaut(주석, 갈륨, 인듐 함유 금속, 25℃에서의 점도 0.0021Pa·s, 열전도율 73W/(m·K))

[0241] (비교예 1 및 비교예 2)

[0242] 표 1에 나타내는 각 재료를 표 1의 혼합 비율(체적%)이 되도록, 실시예 1~실시예 4와 동일한 공정으로 혼련, 적층, 프레스, 및 슬라이스하여, 열전도층을 제작했다. 비교예 1에서는, 액상층을 형성하지 않고 열전도층을 열전도 시트로서 사용했다. 비교예 2에서는, 이하에 나타내는 열전도율이 5W/(m·K) 미만인 그리스를 사용한 점 이외는, 각 실시예와 동일하게 하여 액상층을 구비하는 열전도 시트를 얻었다.

[0243] 액상 재료(표 중의 액상 재료 4): 신에츠 가가쿠고교사의 G-747(액상 실리콘 화합물 및 산화 아연 함유, 필러의 함유율 84질량%, 25℃에서의 점도 50Pa·s, 열전도율 0.9W/(m·K))

표 1

		체적%
흑연 입자(A)	(A)-1	33.8
액상 성분(B)	(B)-1	28.4
	(B)-2	13.1
아크릴산 에스터계 고분자(C)	(C)-1	10.0
핫멜트제(D)	(D)-1	14.3
산화 방지제(E)	(E)-1	0.4
합계(체적%)		100

[0244]

[0245] 실시예 1~4 및 비교예 1~2의 열전도 시트에 있어서, 각 평가는 이하의 방법에 의해 실시했다. 결과를 표 2 및 도 3에 나타낸다.

[0246] (열저항의 측정)

[0247] 열저항은 탁상형 크세논 플래시 애널라이저(LFA 467 Hyper Flash)를 사용하여 측정했다. $\Phi 14\text{mm}$ 의 열전도 시트를 1mm의 구리판에 끼워, 3층 구조의 샘플을 제작했다. 샘플 제작 조건으로서는, 온도 150℃, 압력 0.14MPa에서 3분 가압한 후, 상온에서 충분히 냉각했다. 또한, 측정의 사전 처리로서 카본 스프레이로 구리 표면에 흑화 처리를 가하여, 측정했다. 3층 구조로부터 구리판분의 영향을 제외한 열전도율 λ 를 얻고, 얻어진 열전도율 λ 와 두께 t 로부터, 이하의 식으로 단위면적(1 cm^2)당의 열저항값 $X(\text{K} \cdot \text{cm}^2/\text{W})$ 를 이하와 같이 산출했다.

[0248] $X=(10 \times t) / \lambda$

[0249] t : 실시예 1~4 또는 비교예 1~2의 열전도 시트의 두께(mm)

[0250] λ : 열전도율(W/m · K)

[0251] (계면의 공극율의 평가)

[0252] (열저항의 측정)에 기재된 방법으로 제작한 3층 구조의 샘플에 있어서, 계면의 공극율의 평가는 이하와 같이 평가했다. 초음파 화상 진단 장치(Insight-300, 인사이트 가부시키가이샤)를 사용하여, 반사법, 35MHz, 게인 레벨을 10dB, 콘트라스트 문턱값 30%~70%의 조건으로 계면의 첩부 상태를 관찰했다. 또한, 그 화상을 화상 해석 소프트웨어(ImageJ)에 의해 2치화(구체적으로는, 막대그래프의 0~83을 흑색부, 84~255를 백색부로 하여 흑백화)하고, $\Phi 11\text{mm}$ 의 면적(측정 영역의 면적, 또한, 도 3에서는, $\Phi 14\text{mm}$ 의 화상을 나타낸다) 중, 첩부되지 않은 기체 영역의 면적의 비율을 산출하여, 이하의 식에 근거하여 계면의 공극율(%)을 구했다. 또한, 실시예 3에 대해서는, 공극율은 미측정이다.

[0253] 계면의 공극율(%)=100×(기체 영역의 면적/측정 영역의 면적)

[0254] (두께의 평가)

[0255] 실시예 1~4 및 비교예 1의 열전도 시트에 대해 동일한 조건으로 압축을 실시했다. 다음으로, 마이크로 미터를 사용하여 압축 후의 열전도 시트의 최대 두께(표 2 중의 「압축 후의 두께」)를 측정했다. 액상층의 최대 두께에 대해서는, 액상층을 구비하는 열전도 시트의 최대 두께를, 액상층을 포함하지 않는 열전도 시트의 최대 두께에서 뺀으로써 액상층의 최대 두께를 구했다.

표 2

		실시예1	실시예2	실시예3	실시예4	비교예1	비교예2
액상 재료	-	1	2	3	2	-	4
액상 재료의 양	mg	5.0	4.7	56.0	22.4	-	4.5
도포면	-	편면	편면	양면	양면	없음	편면
압축 후 두께	μm	102	104	119	131	101	-
액상층의 최대 두께	μm	1	3	18	30	-	-
열저항	$\text{K} \cdot \text{cm}^2/\text{W}$	0.112	0.127	0.086	0.135	0.143	0.160
열저항의 변화율 (비교예 1이 기준)	%	-22%	-11%	-40%	-6%	-	+12%
계면의 공극율(면 1)	%	0.5	2.2	-	0	35.1	2.3
계면의 공극율(면 2)	%	12.8	10.0	-	0	35.7	20.1

[0256]

[0257]

열전도율이 $5\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 이상인 액상 재료를 사용한 실시예 1~4에서는, 액상 재료를 사용하지 않은 비교예 1 및 열전도율이 $5\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 미만인 액상 재료를 사용한 비교예 2보다도 열저항을 저감 가능한 것이 확인되었다.

[0258]

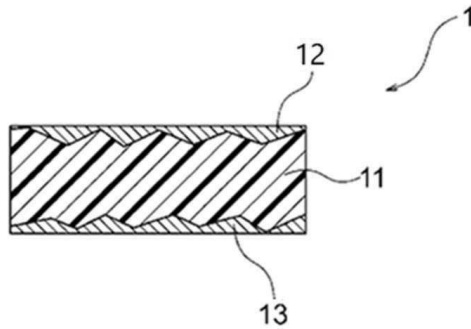
PCT/JP2022/028528의 개시는, 그 전체가 참조에 의해 본 명세서에 원용된다.

[0259]

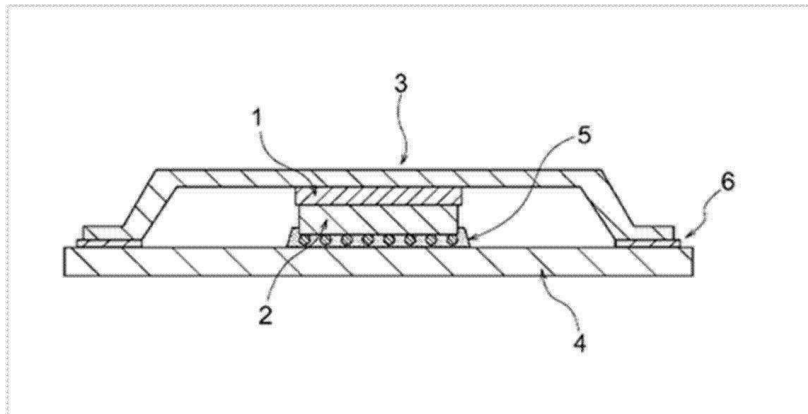
본 명세서에 기재된 모든 문헌, 특허출원, 및 기술 규격은, 개개의 문헌, 특허출원, 및 기술 규격이 참조에 의해 원용됨이 구체적이면서 개개에 기록된 경우와 동일한 정도로, 본 명세서 중에 참조에 의해 원용된다.

도면

























도면1



도면2



도면3

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	비교예 1	비교예 2
면 1	C-SAM Φ14mm						
	계면의 공극						
	계면의 공극율 Φ11mm, %	0.5	2.2	-	0.0	35.1	2.3
면 2	C-SAM Φ14mm						
	계면의 공극						
	계면의 공극율 Φ11mm, %	12.8	10.0	-	0.0	35.7	20.1