



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 공개특허공보(A)**

(11) 공개번호 10-2020-0050943  
(43) 공개일자 2020년05월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C08J 5/18 (2006.01) C08K 3/38 (2006.01)  
H01L 23/373 (2006.01) H05K 7/20 (2006.01)

(52) CPC특허분류  
C08J 5/18 (2013.01)  
C08K 3/38 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2020-7001496  
(22) 출원일자(국제) 2018년08월27일  
심사청구일자 없음

(85) 번역문제출일자 2020년01월16일  
(86) 국제출원번호 PCT/JP2018/031599  
(87) 국제공개번호 WO 2019/049707  
국제공개일자 2019년03월14일

(30) 우선권주장  
JP-P-2017-171087 2017년09월06일 일본(JP)

(71) 출원인  
텐카 주식회사  
일본 도쿄도 주오쿠 니혼바시무로마치 2초메 1방  
1고

(72) 발명자  
야마가타 도시타카  
일본 후쿠오카켄 오무타시 신카이마치 1 텐카 주  
식회사 오무타고쥬 나이

와다 고스케  
일본 후쿠오카켄 오무타시 신카이마치 1 텐카 주  
식회사 오무타고쥬 나이

가네코 마사히데  
일본 후쿠오카켄 오무타시 신카이마치 1 텐카 주  
식회사 오무타고쥬 나이

(74) 대리인  
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 2 항

(54) 발명의 명칭 열 전도성 시트

**(57) 요약**

열 전도성이 우수한 시트를 제공하는, 특히 전자 부품용 방열 부재로서 바람직한 열 전도성 시트를 제공한다.  
인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자를 열 경화성 수지 중에 분산하여 이루어지는 열 전도성 시트로서, 상기 2 차 응집 입자가, 50  $\mu\text{m}$  이상 120  $\mu\text{m}$  이하의 평균 입자경, 51 % 이상 60 % 이하의 기공률, 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 0.2 MPa 이상 2.0 MPa 이하이고, 상기 열 전도성 시트에 있어서의 상기 2 차 응집 입자의 충전율이 50 체적% 이상 70 체적% 이하인 것을 특징으로 하는 열 전도성 시트.

(52) CPC특허분류

*H01L 23/3737* (2013.01)

*H05K 7/20481* (2013.01)

*C08K 2003/385* (2013.01)

*C08K 2201/001* (2013.01)

*C08K 2201/005* (2013.01)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자를 열 경화성 수지 중에 분산하여 이루어지는 열 전도성 시트로서, 상기 2 차 응집 입자가, 50  $\mu\text{m}$  이상 120  $\mu\text{m}$  이하의 평균 입자경, 51 % 이상 60 % 이하의 기공률을 갖고, 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 0.2 MPa 이상 2.0 MPa 이하이고, 상기 열 전도성 시트에 있어서의 상기 2 차 응집 입자의 충전율이 50 체적% 이상 70 체적% 이하인 것을 특징으로 하는 열 전도성 시트.

#### 청구항 2

제 1 항에 기재된 열 전도성 시트를 포함한 방열 부재.

### 발명의 설명

#### 기술분야

[0001] 본 발명은, 열 전도성이 우수한 시트와 그 용도에 관한 것이고, 특히 전자 부품용 방열 부재로서 사용하였을 때에, 파워 디바이스, 트랜지스터, 사이리스터, CPU (중앙 처리 장치) 등의 발열성 전자 부품을 손상시키지 않고, 전자 기기에 장착할 수 있는 열 전도성 시트에 관한 것이다.

#### 배경기술

[0002] 파워 디바이스, 트랜지스터, 사이리스터, CPU 등의 발열성 전자 부품에 있어서는, 사용시에 발생하는 열을 어떻게 제거하는지가 중요한 문제로 되어 있다. 종래, 이와 같은 제열 (除熱) 방법으로는, 발열성 전자 부품을 전기 절연성의 열 전도성 시트를 개재하여 방열 핀이나 금속판에 장착하여, 열을 빠져나가게 하는 것이 일반적으로 실시되고 있고, 그 열 전도성 시트로는 실리콘 고무에 열 전도성 필러를 분산시킨 것이 사용되고 있다.

[0003] 최근, 전자 부품 내의 회로의 고집적화에 수반하여 그 발열량도 커지고 있어, 종래보다 더 높은 열 전도성을 갖는 재료가 요구되어 오고 있다. 열 전도성 재료의 열 전도성을 향상시키려면, 지금까지 산화알루미늄 분말, 질화붕소 분말, 질화알루미늄 분말과 같은 높은 열 전도성을 나타내는 필러를 유기 수지에 함유하는 수법이 일반적이었다. 또 충전성이 나쁜 인편 (鱗片) 상의 육방정 질화붕소 분말에 대해서는 2 차 응집 입자와 같은 형태로 유기 수지에 충전함으로써 고열 전도화를 달성한다는 방법이 실시되고 있었다 (특허문헌 1 ~ 4). 육방정 질화붕소 분말의 배향성에 관해서는, 특허문헌 5 또는 6 등에 기재가 있다.

### 선행기술문헌

#### 특허문헌

- [0004] (특허문헌 0001) 일본 공개특허공보 평11-60216호  
 (특허문헌 0002) 일본 공개특허공보 2003-60134호  
 (특허문헌 0003) 일본 공개특허공보 2008-293911호  
 (특허문헌 0004) 일본 공개특허공보 2009-24126호  
 (특허문헌 0005) 일본 공개특허공보 평09-202663호  
 (특허문헌 0006) 일본 공개특허공보 평11-26661호  
 (특허문헌 0007) 일본 특허 제6125273호  
 (특허문헌 0008) 일본 특허 제5036696호

### 발명의 내용

**해결하려는 과제**

[0005] 그러나, 종래 기술에서는 시트 형상인 열 전도성이 우수한 부재를 얻는 것은 곤란하였다. 특허문헌 7 과 같이 BN 성형체를 사용한 고열 전도 부재가 알려져 있지만, 이것들은 부재로서의 유연성이 부족하기 때문에 곡면 형상의 방열 용도나, 강한 체결 토크에서의 용도에 적합하지 않았다. 또, 부재의 두께를 300  $\mu\text{m}$  이하로 얇게 하는 것은 현실적이지 않았다. 또, 예를 들어 특허문헌 8 은 고열 전도성의 시트를 주장하고는 있지만, 이것에 사용하는 BN 응집 입자의 기공률은 50 % 이하로서, 열 전도율은 6  $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  정도를 달성할 수 있는 것에 불과하다.

**과제의 해결 수단**

[0006] 본 발명의 목적은, 열 전도성이 우수한 시트를 제공하는 것이다. 특히 전자 부품용 방열 부재로서 바람직한 열 전도성 시트를 제공하는 것이다.

[0007] 본 발명의 실시형태에서는, 상기의 과제를 해결하기 위해, 이하를 제공할 수 있다.

[0008] (1) 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자를 열 경화성 수지 중에 분산하여 이루어지는 열 전도성 시트로서, 상기 2 차 응집 입자가, 50  $\mu\text{m}$  이상 120  $\mu\text{m}$  이하의 평균 입자경, 51 % 이상 60 % 이하의 기공률, 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 0.2 MPa 이상 2.0 MPa 이하이고, 상기 열 전도성 시트에 있어서의 상기 2 차 응집 입자의 충전율이 50 체적% 이상 70 체적% 이하인 것을 특징으로 하는 열 전도성 시트.

[0009] (2) 상기 (1) 에 기재된 열 전도성 시트를 포함한 방열 부재.

**발명의 효과**

[0010] 본 발명의 실시형태에 의하면, 고열 전도율을 나타내는 시트를 제공할 수 있다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0011] 이하, 본 발명에 대해 상세하게 설명한다.

[0012] 본 발명의 실시형태에서 사용하는 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자는, 평균 입자경이 50 ~ 120  $\mu\text{m}$  일 필요가 있고, 나아가 평균 입자경은 70 ~ 90  $\mu\text{m}$  의 범위의 것이 바람직하다. 평균 입자경이 120  $\mu\text{m}$  보다 커지면, 입자와 입자가 접촉하였을 때의 간극이 커져, 열 전도성이 감소하는 문제가 발생하는 데다가, 얇은 시트를 얻는 것이 곤란해져 버린다. 반대로 평균 입자경이 50  $\mu\text{m}$  보다 작아지면 2 차 응집 입자의 열 경화성 수지에 대한 충전성이 나빠져, 열 전도성이 감소하는 문제가 발생한다.

[0013] 또한, 본 발명의 실시형태에 관련된 열 전도성 시트는, 방열성을 저해시키지 않는 범위에서, 알루미늄, 구리, 은, 카본 파이버, 카본 나노튜브 등의 도전성 분말을 함께 함유하고 있어도 된다.

[0014] 본 발명의 실시형태에서 사용하는 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자는, 기공률이 51 ~ 60 % 일 필요가 있고, 나아가 기공률은 53 ~ 57 % 의 범위의 것이 바람직하다. 기공률이 60 % 보다 커지면, 입자의 강도가 작아져, 시트화가 곤란해지는 문제가 생긴다. 반대로 기공률이 51 % 보다 작아지면 2 차 응집 입자에 대한 열 경화성 수지의 충전성이 나빠져, 열 전도성이 감소하는 문제가 발생한다. BN 응집 입자의 기공률을 51 ~ 60 % 로 함으로써, 종래 기술에서는 얻어지지 않을 정도로까지 수지에 대한 충전 효과가 향상되어, 고열 전도를 달성할 수 있다.

[0015] 본 발명의 실시형태에서 사용하는 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자는, 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 0.2 ~ 2.0 MPa 일 필요가 있고, 나아가서는 0.3 ~ 1.8 MPa 의 범위의 것이 바람직하고, 0.3 ~ 1.5 MPa 의 범위의 것이 보다 바람직하다. 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 2.0 MPa 보다 커지면, 2 차 응집의 변형이 생기지 않고 면 접촉은 되지 않고 점 접촉이 되어 열 전도성 시트의 열 전도성이 감소한다. 반대로 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도가 0.2 MPa 보다 작아지면, 2 차 응집 입자가 파괴되기 쉬운 이방성이 커져, 열 전도성 시트의 열 전도성이 감소한다.

[0016] 본 발명의 실시형태에 관련된 열 전도성 시트 중의 2 차 응집 입자의 충전율은, 전체 체적의 50 ~ 70 체적% 이고, 특히 55 ~ 65 체적% 인 것이 바람직하다. 2 차 응집 입자의 충전율이 50 체적% 미만에서는 열 전도성 시트의 열 전도성이 불충분해지고, 또 70 체적% 를 초과하면, 열 전도성 필러의 충전이 곤란해진다.

- [0017] 이상에서 서술한 바와 같이 특정 평균 입자경, 기공률, 및 입자 강도를 조합하여 갖는 2 차 응집 입자는, 열 전도성, 및 시트를 조제하는 데에 있어서의 물리적 성상이라는 관점에서 우수한 특징을 갖는다. 그리고 이 특정 2 차 응집 입자를, 50 체적% 이상 70 체적% 이하의 범위의 충전율로 사용하여 열 전도성 시트를 조제함으로써, 종래 기술에서는 달성할 수 없는 매우 높은 열 전도율 효과가 실현 가능해지는 것이다.
- [0018] 본 명세서에 있어서의 평균 입자경은, 시마즈 제작소 제조 「레이저 회절식 입도 분포 측정 장치 SALD-200」을 사용하여 측정을 실시한다. 평가 샘플은, 유리 비커에 50 cc 의 순수수와 측정하는 열 전도성 분말을 5 g 첨가하여, 스페큘러를 사용하여 교반하고, 그 후 초음파 세정기로 10 분간, 분산 처리를 실시한다. 분산 처리를 실시한 열 전도성 재료의 분말의 용액을, 스포이드를 사용하여 장치의 샘플러부에 1 방울씩 첨가하여, 흡광도가 측정 가능해질 때까지 안정되는 것을 기다린다. 이와 같이 하여 흡광도가 안정된 시점에서 측정을 실시한다. 레이저 회절식 입도 분포 측정 장치에서는, 센서로 검출한 입자에 의한 회절/산란광의 광 강도 분포의 데이터로부터 입도 분포를 계산한다. 평균 입자경은 측정되는 입자경의 값에 상대 입자량 (차분%) 을 곱하고, 상대 입자량의 합계 (100 %) 로 나누어 구할 수 있다. 또한, 평균 입자경은 입자의 평균 직경이다.
- [0019] 본 명세서에 있어서의 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자의 기공률은, 수은 압입식의 포로시미터로 측정함으로써 얻어진 값을 의미한다. 기공률은, 수은 포로시미터를 사용하여 세공 체적을 측정함으로써 구한 값이다. 수은 포로시미터를 사용한 세공 체적으로서는, 예를 들어 「PASCAL 140-440」 (FISONS INSTRUMENTS 사 제조) 을 사용하여 측정할 수 있다. 이 측정의 원리는, 식  $\varepsilon g = Vg / (Vg + 1 / \rho t) \times 100$  에 기초하고 있다. 식 중,  $\varepsilon g$  는 질화붕소 입자의 기공률 (%),  $Vg$  는 세공 체적으로부터 입자간 공극을 뺀 값 ( $\text{cm}^3/\text{g}$ ),  $\rho t$  는 1 차 입자의 육방정 질화붕소 입자의 밀도  $2.34 (\text{g}/\text{cm}^3)$  이다.
- [0020] 본 명세서에 있어서의 인편상 질화붕소의 1 차 입자가 응집된 2 차 응집 입자의 누적 파괴율 63.2 % 일 때의 입자 강도 (단일 과립 압괴 강도) 는, JIS R1639-5 : 2007 에 준거하여 구해진다. 또한 여기서 말하는 「63.2 %」란, 상기 JIS R1639-5 : 2007 이 인용하는 JIS R1625 : 2010 에서 교시되어 있는, 와이블 (Weibull) 분포 함수에 있어서의  $\ln \ln \{1 / (1 - F(t))\} = 0$  을 만족하는 값으로서 알려져 있는 것으로, 입자의 개수 기준의 값이다.
- [0021] 본 발명의 실시형태에서 사용할 수 있는 열 경화성 수지는, 미러블형 실리콘이 대표적인 것이지만, 대체로 필요한 유연성을 발현시키는 것이 어려운 경우가 많기 때문에, 높은 유연성을 발현시키기 위해서는 부가 반응형 실리콘이 바람직하다. 부가 반응형 액상 실리콘의 구체예로는, 1 분자 중에 비닐기와 H-Si 기의 양방을 갖는 1 액 반응형의 오르가노폴리실록산, 또는 말단 혹은 측사슬에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과 말단 혹은 측사슬에 2 개 이상의 H-Si 기를 갖는 오르가노폴리실록산의 2 액성의 실리콘 등이다. 예를 들어 아사히카세이 바커 실리콘사 제조, 상품명 「ELASTOSIL LR3303-20/A/B」가 있다.
- [0022] 본 발명의 실시형태에서 사용할 수 있는 부가 반응형 액상 실리콘에는 추가로, 아세틸알코올류, 말레산에스테르류 등의 반응 지연제, 십 ~ 수백  $\mu\text{m}$  의 에어로졸이나 실리콘 파우더 등의 증점제, 난연제, 안료 등을 병용할 수도 있다.
- [0023] 본 발명의 실시형태에 관련된 열 전도성 시트는 원한다면 두께를 200  $\mu\text{m}$  까지 얇게 할 수 있고, 유연성을 갖게 할 수 있기 때문에 장착 방법에 있어서의 자유도를 높일 수 있다.
- [0024] 본 발명의 실시형태에 관련된 열 전도성 시트에는, 보강재로서 유리 클로스도 병용할 수 있다. 유리 클로스로는, 유리를 다 썬 그대로의 상태의 생기 (生機) 클로스나 히트 클리닝, 커플링제 처리를 실시한 처리 클로스 등이 있고, 예를 들어 유니티카사 제조, 상품명 「H25 F104」가 있다.
- [0025] 본 발명의 열 전도성 시트의 제조 방법은, 부가 반응형 액상 실리콘에 질화붕소 분말의 응집 분말을 첨가하고, 자전·공전 믹서인 신키사 제조 「아와토리 렌타로」를 사용하여 혼합함으로써, 질화붕소 분말의 응집 분말이 해체되지 않고, 혼합물을 제조하는 것이 가능하다.
- [0026] 실시예
- [0027] 후술하는 열 전도성 시트의 열 전도성을 평가하기 위해, 시트 성형체를 제작하였다. 시트 성형체의 제작에 있어서는, 플런저식의 압출기를 사용함으로써, 질화붕소 분말의 응집 분말을 해체되지 않고, 시트화하였다. 열 전도성 평가용의 시트 성형체 샘플은 후술하는 표에 기재한 각각의 두께를 가지며, 또한 10 mm  $\times$  10 mm 의 크기로 하였다.

[0028] 열 전도율은, ASTM E-1461 에 준거한 수치 조성물의 열 확산율, 밀도, 비열을 모두 곱하여 산출하였다 (열 전도율 = 열 확산율 × 밀도 × 비열). 열 확산율은, 시료를 폭 10 mm × 10 mm × 두께 0.5 mm 로 가공하고, 레이저 플래시법에 의해 구하였다. 측정 장치는 크세논 플래시 애널라이저 (NETSCH 사 제조 LFA447 NanoFlash) 를 사용하여, 25 °C 에서 측정을 실시하였다. 밀도는 아르키메데스법을 이용하여 구하였다. 비열은, DSC (리가쿠사 제조 ThermoPlus Evo DSC8230) 를 사용하여 구하였다.

[0029] (실시예 1 ~ 7, 비교예 1 ~ 6)

[0030] 열 전도성 분말로서 표 1 에 나타내는 응집 육방정 질화붕소 분말 7 종류, 부가 반응형 액상 실리콘으로서 표 2, 3 에 나타내는 ELASTOSIL LR3303-20/A 액 1 종류 (백금 촉매를 함유한 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산), 및 동(同) B 액 1 종류 (H-Si 기를 갖는 오르가노폴리실록산 및 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산) 를 실온하에서 표 2 ~ 3 에 나타내는 배합 (체적%) 으로, 자전·공전 믹서인 신키사 제조 「아와토리 렌타로」 를 사용하여, 회전 속도 2000 rpm 으로 10 분 혼합하여 혼합물을 제조하였다.

[0031] 이 혼합물을 슬릿 (0.2 mm × 10 mm, 0.5 mm × 10 mm, 및 1 mm × 10 mm 의 어느 것) 이 형성된 다이스의 고정된 실린더 구조 금형 내에 100 g 충전하고, 피스톤으로 5 MPa 의 압력을 가하면서 슬릿으로부터 압출하여 소정 두께의 시트를 얻었다. 이 시트를 110 °C 에서 3 시간 가열하여, 열 전도성을 평가하는 시트를 제조하고, 상기 서술한 수법에 의해 열 전도율을 측정하였다. 결과를 표 2 ~ 3 에 나타냈다.

[0032] 표 2 의 실시예와 표 3 의 비교예로부터, 본 발명의 실시형태에 관련된 열 전도성 시트는, 우수한 열 전도성을 나타내고 있는 것을 알 수 있다. 한편, 비교예에서는, 애초부터 시트화 곤란하거나, 또는 열 전도율이 낮거나 한다는 문제가 발생하였다.

표 1

필러 기호	종별	평균 입자경 (μm)	기공률 (%)	입자 강도 (MPa)
열 전도성 필러 A	응집 육방정 질화붕소 분말	200	65	0.1
열 전도성 필러 B	응집 육방정 질화붕소 분말	120	60	0.3
열 전도성 필러 C	응집 육방정 질화붕소 분말	80	55	0.7
열 전도성 필러 D	응집 육방정 질화붕소 분말	50	51	1.8
열 전도성 필러 E	응집 육방정 질화붕소 분말	20	40	3.0
열 전도성 필러 F	응집 육방정 질화붕소 분말	55	45	2.5
열 전도성 필러 G	응집 육방정 질화붕소 분말	60	25	2.6

[0033]

표 2

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	실시예 7
질화붕소 분말의 종류	B	C	D	C	C	C	C
질화붕소 분말의 충전율 (체적%)	60	60	60	70	50	60	60
실리콘 수치 ELASTOSIL LR3303/20A 의 배합량 (체적%)	20	20	20	15	25	20	20
실리콘 수치 ELASTOSIL LR3303/20B 의 배합량 (체적%)	20	20	20	15	25	20	20
열 전도율 (W/(m·K))	8.2	8.5	8.2	8.2	8.0	8.5	8.5
두께 (mm)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.2	1.0

[0034]

표 3

	비교예 1	비교예 2	비교예 3	비교예 4	비교예 5	비교예 6
질화붕소 분말의 종류	A	E	C	C	F	G
질화붕소 분말의 충전율 (체적%)	60	60	10	80	60	70
실리콘 수지 ELASTOSIL LR3303/20A 의 배합량 (체적%)	20	20	45	10	20	15
실리콘 수지 ELASTOSIL LR3303/20B 의 배합량 (체적%)	20	20	45	10	20	15
열 전도율 (W/(m·K))	5.1	시트화 곤란	2.2	시트화 곤란	5.2	5.8
두께 (mm)	0.5		0.5		0.5	0.5

[0035]

[0036] 산업상 이용가능성

[0037] 본 발명의 열 전도성 시트를 전자 부품용 방열 부재로서 사용한 경우, 예를 들어, 파워 디바이스 등의 반도체 소자의 방열 부재로서 사용한 경우, 장기간 사용 가능해진다.