

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5752299号
(P5752299)

(45) 発行日 平成27年7月22日(2015.7.22)

(24) 登録日 平成27年5月29日(2015.5.29)

(51) Int. Cl. F I
 HO 1 L 23/36 (2006.01) HO 1 L 23/36 D
 HO 5 K 7/20 (2006.01) HO 5 K 7/20 F

請求項の数 11 (全 20 頁)

(21) 出願番号	特願2014-123048 (P2014-123048)	(73) 特許権者	000108410
(22) 出願日	平成26年6月16日 (2014.6.16)		デクセリアルズ株式会社
(65) 公開番号	特開2015-29076 (P2015-29076A)		東京都品川区大崎一丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階
(43) 公開日	平成27年2月12日 (2015.2.12)	(74) 代理人	100113424
審査請求日	平成27年1月9日 (2015.1.9)		弁理士 野口 信博
(31) 優先権主張番号	特願2013-138460 (P2013-138460)	(72) 発明者	荒巻 慶輔
(32) 優先日	平成25年7月1日 (2013.7.1)		東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 デクセリアルズ株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(72) 発明者	芳成 篤哉
早期審査対象出願			東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 デクセリアルズ株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱伝導シートの製造方法、熱伝導シート、及び放熱部材

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物を所定の形状に成型して硬化することにより、上記熱伝導性樹脂組成物の成型体を得る工程と、

上記成型体をシート状に切断し、成型体シートを得る工程と、

上記成型体シートのスライス面をプレスすることにより、表面を上記成型体シートの本体より滲み出た上記バインダ樹脂の未硬化成分で被覆する工程とを有する熱伝導シートの製造方法。

【請求項2】

上記バインダ樹脂は、液状シリコーンゲルの主剤と硬化剤とを有し、上記主剤に対する上記硬化剤の配合を、以下の割合とする請求項1記載の熱伝導シートの製造方法。

主剤：硬化剤 = 35 : 65 ~ 65 : 35

【請求項3】

上記熱伝導性フィラーは、炭素繊維であり、

中空状の型内に、上記熱伝導性樹脂組成物を押し出して充填し、上記熱伝導性樹脂組成物を熱硬化することにより、上記炭素繊維が、上記押し出し方向に対してランダムに配向されている上記成型体を得る請求項1又は2に記載の熱伝導シートの製造方法。

【請求項4】

上記成型体シートは、スペーサを介してプレスされることにより、所定の厚さに成型される請求項1~3のいずれか1項に記載の熱伝導シートの製造方法。

【請求項 5】

複数の上記成型体シートを隣接し、一括してプレスすることにより、上記複数の成型体シートが一体化された上記熱伝導シートを得る請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の熱伝導シートの製造方法。

【請求項 6】

バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化されたシート本体を有し、

表面が上記シート本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分で被覆されている熱伝導シート。

【請求項 7】

プレスされることにより上記シート本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分によって、上記シート本体の全面が被覆されている請求項 6 記載の熱伝導シート。

【請求項 8】

上記熱伝導性フィラーは、炭素繊維であり、

上記シート本体の表面に臨む上記炭素繊維が、上記シート本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分によって被覆されている請求項 6 又は 7 に記載の熱伝導シート。

【請求項 9】

上記シート本体は、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化された複数の成型体シートが一体化されてなる請求項 6 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の熱伝導シート。

【請求項 10】

請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の方法で製造された請求項 6 記載の熱伝導シート。

【請求項 11】

電子部品の発する熱を放熱するヒートスプレッドと、

上記ヒートスプレッドに配設され、該ヒートスプレッドと上記電子部品との間に挟持される熱伝導シートとを備え、

上記熱伝導シートは、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化されたシート本体を有し、上記シート本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分によって、上記シート本体の全面が被覆されている放熱部品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、半導体素子等の発熱体とヒートシンク等の放熱体との間に配置される熱伝導シートの製造方法、熱伝導シート、及び熱伝導シートを備えた放熱部材に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、パーソナルコンピュータ等の各種電気機器やその他の機器に搭載されている半導体素子においては、駆動により熱が発生し、発生した熱が蓄積されると半導体素子の駆動や周辺機器へ悪影響が生じることから、各種冷却手段が用いられている。半導体素子等の電子部品の冷却方法としては、当該機器にファンを取り付け、機器筐体内の空気を冷却する方式や、その冷却すべき半導体素子に放熱フィンや放熱板等のヒートシンクを取り付ける方法等が知られている。

【0003】

半導体素子にヒートシンクを取り付けて冷却する場合、半導体素子の熱を効率よく放出させるために、半導体素子とヒートシンクとの間に熱伝導シートが設けられている。熱伝導シートとしては、シリコン樹脂に窒化ホウ素 (BN)、黒鉛等の鱗片状粒子、炭素繊維等の熱伝導性フィラー等の充填剤を分散含有させたものが広く用いられている (特許文献 1 参照)。

【0004】

これら熱伝導性フィラーは、熱伝導の異方性を有しており、例えば熱伝導性フィラーと

10

20

30

40

50

して炭素繊維を用いた場合、繊維方向には約 $600 \text{ W/m} \cdot \text{K} \sim 1200 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ の熱伝導率を有し、窒化ホウ素を用いた場合には、面方向では約 $110 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 、面方向に垂直な方向では約 $2 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ の熱伝導率を有し、異方性を有することが知られている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2012-23335号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

ここで、パーソナルコンピュータのCPUなどの電子部品はその高速化、高性能化に伴って、その放熱量は年々増大する傾向にある。しかしながら、反対にプロセッサ等のチップサイズは微細シリコン回路技術の進歩によって、従来と同等サイズかより小さいサイズとなり、単位面積あたりの熱流速は高くなっている。したがって、その温度上昇による不具合などを回避するために、CPUなどの電子部品をより効率的に放熱、冷却することが求められている。

【0007】

熱伝導シートの放熱特性を向上するためには、熱の伝わりにくさを示す指標である熱抵抗を下げるのが求められる。熱抵抗を下げるためには、発熱体である電子部品や、ヒートシンク等の放熱体に対する密着性を向上させることが有効となる。

【0008】

しかし、炭素繊維等の熱伝導性フィラーがシート表面に露出していると、発熱体や放熱体に対する追従性、密着性が悪く、熱抵抗を十分に下げることができない。また、熱伝導性フィラーをシート内に没入させるために、熱伝導シートを発熱体と放熱体との間で高い荷重で挟持させる方法も提案されているが、低荷重が求められる発熱体に用いる場合には、熱伝導性フィラーが没入せず、熱抵抗を下げるることができない。

【0009】

また、炭素繊維等の熱伝導性フィラーがシート表面に露出していると、シート表面の微粘着性（タック性）が低く、発熱体や放熱体に仮固定することができない。そのため、熱伝導シートを発熱体と放熱体との間に実装する際に、別途粘着シートや粘着剤を用いて仮固定する必要が生じる。しかし、このような粘着シートや粘着剤を介在させると、実装工程が煩雑となる。

【0010】

そこで、本発明は、シート自体に粘着性を持たせることにより、発熱体や放熱体に対する密着性を向上させ、熱伝導性に優れ、また、粘着剤等を用いることなく仮固定を行うことができ、実装性に優れた熱伝導シートの製造方法、熱伝導シート、及びこれを用いた放熱部材を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

上述した課題を解決するために、本発明に係る熱伝導シートの製造方法は、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物を所定の形状に成型して硬化することにより、上記熱伝導性樹脂組成物の成型体を得る工程と、上記成型体をシート状に切断し、成型体シートを得る工程と、上記成型体シートのスライス面をプレスすることにより、表面を上記成型体シートの本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分で被覆する工程とを有する。

【0012】

また、本発明に係る熱伝導シートは、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化されたシート本体を有し、表面が上記シート本体よりしみ出た上記バインダ樹脂の未硬化成分で被覆されているものである。

10

20

30

40

50

【 0 0 1 3 】

また、本発明に係る放熱部材は、電子部品の発する熱を放熱するヒートスプレッドと、上記ヒートスプレッドに配設され、該ヒートスプレッドと上記電子部品との間に挟持される熱伝導シートとを備え、上記熱伝導シートは、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化されたシート本体を有し、上記シート本体より滲み出た上記バインダ樹脂の未硬化成分によって、上記シート本体の全面が被覆されているものである。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 4 】

本発明によれば、シート本体表面がバインダ樹脂の未硬化成分に被覆され、表面に露出されていたフィラーも当該未硬化成分によって被覆される。これにより、シート本体表面に微粘着性（タック性）が付与され、発熱体や放熱体等の接着対象に対する追従性、密着性が向上し、熱抵抗を低減させることができる。

10

【 0 0 1 5 】

また、本発明によれば、シート本体の表面がバインダ樹脂の未硬化成分によって被覆され、表面に微粘着性が付与されることにより、発熱体や放熱体等の接着対象への仮固定が可能となる。したがって、本発明によれば、別途接着剤を用いる必要がなく、製造工程の省力化、低コスト化を実現することができる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 6 】

【 図 1 】 図 1 は、本発明が適用された熱伝導シート及び放熱部材を示す断面図である。

20

【 図 2 】 図 2 は、成型体シートがスペーサを介してプレスされる状態を示す斜視図である。

【 図 3 】 図 3 は、複数の成型体シートを隣接し、一括してプレスすることにより、大判の熱伝導シートを得る工程を示す斜視図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 7 】

以下、本発明が適用された熱伝導シートの製造方法、熱伝導シート、及び放熱部材について、図面を参照しながら詳細に説明する。なお、本発明は、以下の実施形態のみに限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々の変更が可能であることは勿論である。また、図面は模式的なものであり、各寸法の比率等は現実のものとは異なることがある。具体的な寸法等は以下の説明を参酌して判断すべきものである。また、図面相互間においても互いの寸法の関係や比率が異なる部分が含まれていることは勿論である。

30

【 0 0 1 8 】

本発明が適用された熱伝導シート 1 は、半導体素子等の電子部品 3 の発する熱を放熱するものであり、図 1 に示すように、ヒートスプレッド 2 の電子部品 3 と対峙する主面 2 a に固定され、電子部品 3 と、ヒートスプレッド 2 との間に挟持されるものである。また、熱伝導シート 1 は、ヒートスプレッド 2 とヒートシンク 5 との間に挟持される。そして、熱伝導シート 1 は、ヒートスプレッド 2 とともに、電子部品 3 の熱を放熱する放熱部材 4 を構成する。

40

【 0 0 1 9 】

ヒートスプレッド 2 は、例えば方形板状に形成され、電子部品 3 と対峙する主面 2 a と、主面 2 a の外周に沿って立設された側壁 2 b とを有する。ヒートスプレッド 2 は、側壁 2 b に囲まれた主面 2 a に熱伝導シート 1 が設けられ、また主面 2 a と反対側の他面 2 c に熱伝導シート 1 を介してヒートシンク 5 が設けられる。ヒートスプレッド 2 は、高い熱伝導率を有するほど、熱抵抗が減少し、効率よく半導体素子等の電子部品 4 の熱を吸熱することから、例えば、熱伝導性の良い銅やアルミニウムを用いて形成することができる。

【 0 0 2 0 】

電子部品 3 は、例えば B G A 等の半導体パッケージであり、配線基板 6 へ実装される。

50

またヒートスプレッタ2も、側壁2bの先端面が配線基板6に実装され、これにより側壁2bによって所定の距離を隔てて電子部品3を囲んでいる。

【0021】

そして、ヒートスプレッタ2の主面2aに、熱伝導シート1が接着されることにより、半導体素子4の発する熱を吸収し、ヒートシンク5より放熱する放熱部材4が形成される。ヒートスプレッタ2と熱伝導シート1との接着は、後述する熱伝導シート1自身の粘着力によって行うことができるが、適宜、接着剤を用いてもよい。接着剤としては、熱伝導シート1のヒートスプレッタ2への接着と熱伝導を担う公知の放熱性樹脂、あるいは放熱性の接着フィルムを用いることができる。

【0022】

[熱伝導シート1]

熱伝導シート1は、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物が硬化されたシート本体7を有し、シート本体より滲み出たバインダ樹脂の未硬化成分8によって、シート本体7の全面が被覆されている。

【0023】

熱伝導シート1は、バインダ樹脂に熱伝導性フィラーが含有された熱伝導性樹脂組成物を硬化して形成した樹脂成型体を、シート状に切断して成型体シートを得、その後、成型体シートをプレスすることにより製造される。詳しくは後述する。

【0024】

熱伝導シート1を構成する熱伝導性フィラーは、電子部品3からの熱を効率良くヒートスプレッタ2に伝導させるためのものであり、繊維状フィラーが好適に用いられる。このような繊維状フィラーとしては、平均径が小さすぎるとその比表面積が過大となって熱伝導シート1を作成する際の樹脂組成物の粘度が高く成りすぎることが懸念され、大きすぎると成型体の作成が困難になるおそれがあることから、好ましくは5~12 μm である。また、その平均繊維長は、好ましくは30~300 μm である。30 μm 未満ではその比表面積が過大となって熱伝導性樹脂組成物の粘度が高くなりすぎる傾向があり、300 μm より大きすぎると熱伝導シート1の圧縮を阻害する傾向がある。

【0025】

繊維状フィラーの具体例としては、好ましくは、例えば、炭素繊維、金属繊維(例えば、ニッケル、鉄等)、ガラス繊維、セラミックス繊維(例えば、酸化物(例えば、酸化アルミニウム、二酸化ケイ素等)、窒化物(例えば、窒化ホウ素、窒化アルミニウム等)、ホウ化物(例えば、ホウ化アルミニウム等)、炭化物(例えば、炭化ケイ素等)等の非金属系無機繊維)を挙げることができる。

【0026】

繊維状フィラーは、熱伝導シート1に対して要求される機械的性質、熱的性質、電気的性質などの特性に応じて選択される。中でも、高弾性率、良好な熱伝導性、高導電性、電波遮蔽性、低熱膨張性等を示す点からピッチ系炭素繊維あるいはポリベンザゾールを黒鉛化した炭素繊維を好ましく使用することができる。

【0027】

繊維状フィラーの熱伝導シート1中の含有量は、少なすぎると熱伝導率が低くなり、多すぎると粘度が高くなる傾向があるので、好ましくは16~40体積%である。

【0028】

なお、繊維状フィラーの他に、本発明の効果を損なわない範囲で、板状フィラー、鱗片状フィラー、球状フィラー等を併用することができる。特に、繊維状フィラーの熱伝導性樹脂組成物中での二次凝集の抑制という観点から、0.1~10 μm 径の球状フィラー(好ましくは球状アルミナや球状窒化アルミ)を、繊維状フィラー100質量部に対し、好ましくは50~900質量部併用することが好ましい。

【0029】

バインダ樹脂は、繊維状フィラーを熱伝導シート1内に保持するものであり、熱伝導シート1に要求される機械的強度、耐熱性、電気的性質等の特性に応じて選択される。この

10

20

30

40

50

ようなバインダ樹脂としては、熱可塑性樹脂、熱可塑性エラストマー、熱硬化性樹脂の中から選択することができる。

【0030】

熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体等のエチレン-オレフィン共重合体、ポリメチルペンテン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリ酢酸ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセタール、ポリフッ化ビニリデン及びポリテトラフルオロエチレン等のフッ素系重合体、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、スチレン-アクリロニトリル共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体(ABS)樹脂、ポリフェニレン-エーテル共重合体(PPE)樹脂、変性PPE樹脂、脂肪族ポリアミド類、芳香族ポリアミド類、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリメタクリル酸、ポリメタクリル酸メチルエステル等のポリメタクリル酸エステル類、ポリアクリル酸類、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィド、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルニトリル、ポリエーテルケトン、ポリケトン、液晶ポリマー、シリコーン樹脂、アイオノマー等が挙げられる。

10

【0031】

熱可塑性エラストマーとしては、スチレン-ブタジエンブロック共重合体又はその水添化物、スチレン-イソプレンブロック共重合体又はその水添化物、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー等が挙げられる。

20

【0032】

熱硬化性樹脂としては、架橋ゴム、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂等が挙げられる。架橋ゴムの具体例としては、天然ゴム、アクリルゴム、ブタジエンゴム、イソプレングム、スチレン-ブタジエン共重合ゴム、ニトリルゴム、水添ニトリルゴム、クロロプレングム、エチレン-プロピレン共重合ゴム、塩素化ポリエチレングム、クロロサルホン化ポリエチレングム、ブチルゴム、ハロゲン化ブチルゴム、フッ素ゴム、ウレタンゴム、及びシリコーンゴムが挙げられる。

30

【0033】

熱伝導性樹脂組成物は、繊維状フィラーとバインダ樹脂とに加えて、必要に応じて各種添加剤や揮発性溶剤とを、公知の手法により均一に混合することにより調整することができる。

【0034】

このような熱伝導シート1は、後述するように、シート状に切り出された後、プレスされることにより、シート本体7より全表面にわたってバインダ樹脂の未硬化成分8が滲み出し、当該未硬化成分8によって表面が被覆されている。これにより、熱伝導シート1は、スライス面に露出されていた繊維状フィラーがバインダ樹脂の未硬化成分に被覆され、表面に微粘着性(タック性)が発現する。したがって、熱伝導シート1は、電子部品3やヒートスプレッド2の表面に対する追従性、密着性が向上し、熱抵抗を低減させることができる。

40

【0035】

また、熱伝導シート1は、シート本体7の表面がバインダ樹脂の未硬化成分8によって被覆され、表面に微粘着性が発現することにより、ヒートスプレッド2の主面2aへの接着、あるいは、電子部品3の上面3aへの仮固定が可能となる。したがって、熱伝導シート1は、別途接着剤を用いる必要がなく、製造工程の省力化、低コスト化を実現することができる。

【0036】

ここで、熱伝導シート1は、熱伝導性樹脂組成物のバインダ樹脂の主剤と硬化剤の成分

50

比を調整することにより、所望の微粘着性（タック性）を得ることができる。例えば、熱伝導性樹脂組成物のバインダ樹脂として2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂を用いた場合、主剤と硬化剤の成分比率は、

主剤：硬化剤 = 35 : 65 ~ 65 : 35

とすることが好ましい。

【0037】

この成分比で調整することにより、熱伝導シート1は、シート形状を維持しつつ、プレスによってバインダ樹脂の未硬化成分8が滲み出し、シート本体7の全表面を被覆して、シート全体に適度な微粘着性を得ることができる。

【0038】

一方、この成分比よりも主剤の成分が少ないと、熱伝導シート1は、バインダ樹脂の硬化が進み、柔軟性に欠けるとともに、シート本体7のバインダ樹脂の未硬化成分8による被覆も不十分でシート本体7の少なくとも一部では微粘着性も発現しない。また、この成分比よりも硬化剤の成分が少ないと、粘着性が過剰に発現してシート形状が維持できず、また成型体からシート状に切り出すことも困難となり、取扱い性を損なう。

【0039】

[L*a*b表色系における明度L*について]

物体の色は、一般に、明度（明るさ）、色相（色合い）及び彩度（鮮やかさ）の3つの要素からなる。これらを正確に測定し、表現するには、これらを客観的に数値化して表現する表色系が必要となる。このような表色系としては、例えば、L*a*b表色系が挙げられる。L*a*b表色系は、例えば、市販されている分光測色計などの測定器によって、容易に測定を行うことができる。

【0040】

L*a*b表色系は、例えば、「JIS Z 8729」及び「JIS Z 8730」に記載されている表色系であって、各色を球形の色空間に配置して示される。L*a*b表色系においては、明度を縦軸（z軸）方向の位置で示し、色相を外周方向の位置で示し、彩度を中心軸からの距離で示す。

【0041】

明度を示す縦軸（z軸）方向の位置は、L*で示される。明度L*の値は正の数であり、その数字が小さいほど明度が低いことになり、暗くなる傾向を持つ。具体的に、L*の値は黒に相当する0から白に相当する100まで変化する。

【0042】

また、球形の色空間をL* = 50の位置で水平に切断した断面図において、x軸の正方向が赤方向、y軸の正方向が黄方向、x軸の負方向が緑方向、y軸の負方向が青方向である。x軸方向の位置は、-60 ~ +60の値をとるa*によって表される。y軸方向の位置は、-60 ~ +60の値をとるb*によって表される。このように、a*と、b*は、色度を表す正負の数字であり、0に近づくほど黒くなる。色相及び彩度は、これらのa*の値及びb*の値によって表される。

【0043】

L*a*b表色系においては、明度L*が大きくなると白っぽくなり、明度L*が小さくなると黒っぽくなる。また、L*a*b表色系においては、a*が-1未満になると緑っぽくなり、a*が-1以上となると赤っぽくなる。また、b*が-1未満になると青っぽくなり、b*が+1を超えると黄色っぽくなる。

【0044】

熱伝導性シート1は、硬化性樹脂組成物と、繊維状フィラーと、熱伝導性粒子とを含有し、繊維状フィラーの体積%を大きくすると、表面の明度L*が小さくなる傾向にあり、熱伝導性粒子の体積%を大きくすると明度L*が大きくなる傾向にある。具体的には、繊維状フィラーが、炭素繊維であり、熱伝導性粒子が、アルミナ、窒化アルミニウム、及び水酸化アルミニウムのうち、少なくともアルミナを含む1種以上である熱伝導性シートの表面を観察した場合において、炭素繊維の面積が多く、表面に露出される白色のアルミナ

10

20

30

40

50

や窒化アルミニウムが少ない場合、明度 L^* が小さくなる傾向にあり、炭素繊維の面積が少なく、表面に露出される白色のアルミナや窒化アルミニウムが多い場合、明度 L^* が大きくなる傾向にある。

【0045】

高い熱伝導率を有する熱伝導シートを得るためには、熱伝導率の高い繊維状フィラーの含有量を単純に増やすのではなく、形状を保持するために熱伝導性粒子を添加しなければならない。また、押し出し時の熱伝導性樹脂組成物の粘度を下げるために、繊維状フィラー及び熱伝導性粒子の配合を適量にしなければならない。

【0046】

明度 L^* の値が、所定の範囲内であることにより、良好な熱伝導率が得られることを見出した。すなわち、本実施の形態に係る熱伝導シート1は、硬化性樹脂組成物と、繊維状フィラーと、熱伝導性粒子とを含有し、熱伝導性シートの表面の $L^* a^* b$ 表色系における L^* 値が、25以上70以下である。これにより、熱伝導性シート1の厚み方向の熱伝導性を良好にすることができる。シートの表面がまだら模様、または筋状のラインが入っていても上記の L^* の範囲に入っていれば良い。シートの表面がまだら模様、または筋状のラインが入っている場合は、厚み方向に繊維状フィラーが一定方向に配向しておらずランダムに配向している。ランダムに配向していることで繊維状フィラー同士の交絡と熱伝導性粒子の接点が増え、一定方向に配向しているよりも熱伝導率が大きくなる。中空状の型の内部に熱伝導性樹脂組成物を押し出す工程において、スリットを通して出た熱伝導性樹脂組成物どうしが中空状の型の内部で密着する。その過程において表面に色の濃淡ができる。また、混合時間や攪拌速度などを調整することで熱伝導シート1の表面の $L^* a^* b$ 表色系における L^* 値を調整できる。混合時間を長くしたり、攪拌速度を大きくすると繊維状フィラーが小さくなり、 L^* 値が小さくなる。また、混合時間を短くしたり、攪拌速度を小さくすると繊維状フィラーが小さくならないので、 L^* を大きくすることができる。また、シートの表面に光沢がある場合は L 値が大きくなる傾向にある。オイルを混合したり、シリコーンのA/B比を変えることでシート表面の光沢度合いを調整することもできる。

【0047】

[熱伝導シートの製造工程]

本発明の熱伝導シート1は、以下の工程(A)~(C)を有する製造方法によって製造することができる。以下、工程毎に詳細に説明する。

【0048】

<工程A>

まず、繊維状フィラーをバインダ樹脂に分散させることにより熱伝導シート1形成用の熱伝導性樹脂組成物を調製する。この調製は、繊維状フィラーとバインダ樹脂と必要に応じて配合される各種添加剤や揮発性溶剤とを公知の手法により均一に混合することにより行うことができる。

【0049】

<工程B>

次に、調製された熱伝導性樹脂組成物から、押し出し成型法又は金型成型法により成型体ブロックを形成する。

【0050】

押し出し成型法、金型成型法としては、特に制限されず、公知の各種押し出し成型法、金型成型法の中から、熱伝導性樹脂組成物の粘度や熱伝導シート1に要求される特性等に応じて適宜採用することができる。

【0051】

押し出し成型法において、熱伝導性樹脂組成物をダイより押し出す際、あるいは金型成型法において、熱伝導性樹脂組成物を金型へ圧入する際、バインダ樹脂が流動し、その流動方向に沿って一部の繊維状フィラーが配向するが、多くは配向がランダムになっている。

【0052】

10

20

30

40

50

なお、ダイの先端にスリットを取り付けた場合、押し出された成型体ブロックの幅方向に対して中央部は、繊維状フィラーが配向しやすい傾向がある。その一方、成型体ブロックの幅方向に対して周辺部は、スリット壁の影響を受けて繊維状フィラーがランダムに配向されやすい。

【 0 0 5 3 】

成型体ブロックの大きさ・形状は、求められる熱伝導シート 1 の大きさに応じて決めることができる。例えば、断面の縦の大きさが 0.5 ~ 1.5 cm で横の大きさが 0.5 ~ 1.5 cm の直方体が挙げられる。直方体の長さは必要に応じて決定すればよい。

【 0 0 5 4 】

< 工程 C >

次に、形成された成型体ブロックをシート状にスライスする。これによりシート本体 7 を構成する成型体シートが得られる。スライスにより得られるシートの表面（スライス面）には、繊維状フィラーが露出する。スライスする方法としては特に制限はなく、成型体ブロックの大きさや機械的強度により公知のスライス装置（好ましくは超音波カッターやかな）の中から適宜選択することができる。成型体ブロックのスライス方向としては、成型方法が押し出し成型方法である場合には、押し出し方向に配向しているものもあるために押し出し方向に対して 60 ~ 120 度、より好ましくは 70 ~ 100 度の方向である。特に好ましくは 90 度（垂直）の方向である。

【 0 0 5 5 】

スライス厚としても、特に制限はなく、熱伝導シート 1 の使用目的等に応じて適宜選択することができる。

【 0 0 5 6 】

< 工程 D >

次いで、得られた成型体シートのスライス面をプレスする。プレスの方法としては、平盤と表面が平坦なプレスヘッドとからなる一对のプレス装置を使用することができる。また、ピンチロールでプレスしてもよい。

【 0 0 5 7 】

これにより成型体シートは、シート本体 7 よりバインダ樹脂の未硬化成分 8 がしみ出し、当該未硬化成分 8 によって表面が被覆された熱伝導シート 1 を得る。熱伝導シート 1 は、スライス面に露出されていた繊維状フィラーがバインダ樹脂の未硬化成分 8 に被覆され、表面に微粘着性（タック性）が発現する。したがって、熱伝導シート 1 は、電子部品 3 やヒートスプレッド 2 の表面に対する追従性、密着性が向上し、熱抵抗を低減させることができる。

【 0 0 5 8 】

また、熱伝導シート 1 は、シート本体 7 の表面がバインダ樹脂の未硬化成分 8 によって被覆され、表面に微粘着性が発現することにより、ヒートスプレッド 2 の主面 2 a への接着、あるいは、電子部品 3 の上面 3 a への仮固定が可能となる。したがって、熱伝導シート 1 は、別途接着剤を用いる必要がなく、製造工程の省力化、低コスト化を実現することができる。

【 0 0 5 9 】

さらに、熱伝導シート 1 は、取扱い中に表面の微粘着性を喪失した場合にも、プレスを行うと、再度シート本体 7 よりバインダ樹脂の未硬化成分 8 がしみ出し、当該未硬化成分 8 によって表面が被覆される。したがって、熱伝導シート 1 は、ヒートスプレッド 2 への接着位置や、電子部品 3 への仮固定位置がずれた場合にも、リペアが可能となる。

【 0 0 6 0 】

また、熱伝導シート 1 は、バインダ樹脂の未硬化成分 8 がシート本体 7 の全面からしみ出し、シート本体 7 の表裏面のみならず側面も被覆される。バインダ樹脂の未硬化成分 8 は絶縁性を有するため、熱伝導シート 1 は、側面に絶縁性が付与される。したがって、熱伝導シート 1 は、電子部品 3 とヒートスプレッド 2 とに挟持されて周辺に膨出し、周辺に配置された導電性の部材と接触した場合にも、熱伝導シート 1 を介して半導体素子やヒー

10

20

30

40

50

トシンクと当該導電性部材とが短絡することを防止することができる。

【0061】

なお、熱伝導シート1は、プレスされることにより厚み方向に圧縮され、繊維状フィラー同士の接触の頻度を増大させることができる。これにより、熱伝導シート1の熱抵抗を低減させることが可能となる。また、熱伝導シート1は、プレスされることにより、表面が平滑化される。

【0062】

プレスの際の圧力としては、低すぎるとプレスをしな場合と熱抵抗が変わらない傾向があり、高すぎるとシートが延伸する傾向があるので、好ましくは0.0098~9.8 MPa、より好ましくは0.049~9.3 MPaである。

【0063】

また、熱伝導シート1は、図2に示すように、プレスヘッドと対峙する載置面にスペーサ10を配置して成型体シート11がプレスされることにより、当該スペーサ10の高さに応じた所定のシート厚に形成することができる。

【0064】

熱伝導シート1は、プレスされることにより、シート本体7内のバインダ樹脂の未硬化成分8が滲み出し、シート表面の全体を被覆すると、滲み出しが止まる。プレス時間は、バインダ樹脂中のバインダ樹脂成分と硬化剤成分の配合比、プレス圧力、シート面積等に応じて、バインダ樹脂の未硬化成分8が滲み出し、シート本体7の表面の全体を被覆するのに十分な時間を適宜設定することができる。

【0065】

また、プレス工程は、バインダ樹脂の未硬化成分8の滲み出し、シート本体7表面の被覆の効果をより促進させるために、ヒータを内蔵したプレスヘッドを用いて、加熱しながら行ってもよい。このような効果を高めるため、加熱温度はバインダ樹脂のガラス転移温度以上で行うことが好ましい。これにより、プレス時間を短縮することができる。

【0066】

また、図3に示すように、スペーサ10を配置せずに、複数(例えば4枚)の成型体シート11を隣接させ、プレスヘッド12によって一括して熱プレスすることにより、複数の成型体シート11が一体化された大判の熱伝導シート1を製造することができる。この場合、各成型体シート11は、同一寸法、同一厚みで形成された略矩形状をなし、一辺を隣接する成型体シート11の一辺にそろえて均等間隔で隣接させることが好ましい。これにより、継ぎ目や凹凸のない均一の厚さの熱伝導シート1を製造できる。また、大判の熱伝導シート1は、複数の成型体シート11が一体化されるとともに、プレスによりバインダ樹脂の未硬化成分が滲み出し、シート本体7の表面全体が被覆される。

【実施例】

【0067】

次いで、本発明の第1の実施例(実施例1~7)及び第1の比較例(比較例1~4)について説明する。第1の実施例及び第1の比較例では、熱伝導性樹脂組成物のバインダ成分と硬化剤成分の成分比を変えて熱伝導シートのサンプルを形成し、各サンプルについて、PETフィルムからの剥離力(N/cm)、熱抵抗(K·cm²/W)を測定、評価するとともに、シート状への切り出し作業や剥離フィルムから剥離して貼り付けを行う際の作業性についても評価をした。

【0068】

[実施例1]

実施例1では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂に、シランカップリング剤でカップリング処理した平均粒径4µmのアルミナ粒子(熱伝導性粒子:電気化学工業株式会社製)20vol%と、平均繊維長150µm、平均繊維径9µmのピッチ系炭素繊維(熱伝導性繊維:日本グラファイトファイバー株式会社製)22vol%と、シランカップリング剤でカップリング処理した平均粒径1µmの窒化アルミ(熱伝導性粒子:株式会社トクヤマ製)24vol%を分散させて、シリコーン樹脂組成物(熱伝導性樹脂組成物)

10

20

30

40

50

を調製した。2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂は、シリコーンA液35質量%、シリコーンB液65質量%の比率で混合したものである。得られたシリコーン樹脂組成物を、内壁に剥離処理したPETフィルムを貼った直方体状の金型(20mm×20mm)の中に押し出してシリコーン成型体を成型した。得られたシリコーン成型体をオープンにて100℃で6時間硬化してシリコーン硬化物とした。得られたシリコーン硬化物を、オープンにて100℃、1時間加熱した後、超音波カッターで切断し、厚み1.53mmの成型体シートを得た。超音波カッターのスライス速度は、毎秒50mmとした。また、超音波カッターに付与する超音波振動は、発振周波数を20.5kHzとし、振幅を60μmとした。

【0069】

10

得られた成型体シートを剥離処理をしたPETフィルムで挟んだ後、厚さ1.49mmのスペーサを入れてプレスすることにより、厚さ1.50mmの熱伝導シートサンプルを得た。プレス条件は、80℃、2.45MPa設定で、3minとした。

【0070】

[実施例2]

実施例2では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液40質量%と、シリコーンB液60質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0071】

[実施例3]

20

実施例3では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液45質量%と、シリコーンB液55質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0072】

[実施例4]

実施例4では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液50質量%と、シリコーンB液50質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0073】

[実施例5]

30

実施例5では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液55質量%と、シリコーンB液45質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0074】

[実施例6]

実施例6では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液60質量%と、シリコーンB液40質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0075】

[実施例7]

40

実施例7では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液65質量%と、シリコーンB液35質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0076】

[比較例1]

比較例1では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液25質量%と、シリコーンB液75質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例1と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【0077】

[比較例2]

50

比較例 2 では、2 液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーン A 液 3 0 質量%と、シリコーン B 液 7 0 質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例 1 と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【 0 0 7 8 】

[比較例 3]

比較例 3 では、2 液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーン A 液 7 0 質量%と、シリコーン B 液 3 0 質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例 1 と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【 0 0 7 9 】

[比較例 4]

比較例 4 では、2 液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーン A 液 7 5 質量%と、シリコーン B 液 2 5 質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例 1 と同じ条件で、熱伝導シートサンプルを作成した。

【 0 0 8 0 】

[剥離力の測定]

実施例 1 ~ 7、及び比較例 1 ~ 4 に係る各熱伝導シートサンプルについて、剥離処理した P E T フィルムから剥がして剥離処理していない P E T に挟んだ後、厚さ 1 . 4 9 mm のスペーサを挟んで 8 0 、 2 . 4 5 M P a 設定で 3 分間プレスして常温まで冷却し、次いで P E T フィルムの端部を手で剥離し、試験機で挟持した後、9 0 ° 上方に 5 0 mm / m i n の速度で引っ張り、荷重を測定し、微粘着性（タック性）について評価した。各サンプルの剥離力（荷重）は所定の幅を持って計測される。評価基準としては、剥離力が 0 . 0 2 ~ 0 . 1 5 (N / c m) の範囲で振れた場合を最適 ()、剥離力が 0 . 0 2 ~ 0 . 0 4 (N / c m)、0 . 1 5 ~ 0 . 2 5 (N / c m) の範囲で振れた場合を良好 ()、剥離力が 0 ~ 0 . 0 2 (N / c m)、0 . 2 0 ~ 0 . 3 0 (N / c m) の範囲で振れた場合を普通 ()、剥離力が 0 (N / c m) の場合を不良 (x) とした。

【 0 0 8 1 】

[熱抵抗値の測定]

また、実施例 1 ~ 7、及び比較例 1 ~ 4 に係る各熱伝導シートサンプルについて、A S T M - D 5 4 7 0 に準拠した方法で荷重 0 . 5 k g f / c m ² 及び 7 . 5 k g f / c m ² で熱抵抗値を測定した。評価基準としては、荷重 0 . 5 k g f / c m ² において、熱抵抗が約 0 . 6 5 (K · c m ² / W) を超えない場合を最適 ()、熱抵抗が 0 . 6 5 ~ 0 . 8 4 7 (K · c m ² / W) を良好 ()、0 . 8 4 7 ~ 0 . 8 7 (K · c m ² / W) を普通 ()、0 . 8 7 (K · c m ² / W) 以上を不良 (x) とした。なお、荷重 7 . 5 k g f / c m ² において、特段の評価をしていないが、荷重 0 . 5 k g f / c m ² の場合と同様に評価することができる。

【 0 0 8 2 】

[作業性の評価]

さらに、実施例 1 ~ 7、及び比較例 1 ~ 4 に係る各熱伝導シートサンプルについて、シート状への切り出しや、剥離フィルムから剥離して貼り付けを行う際の作業性について評価をした。評価基準としては、超音波カッターによりシリコーン硬化物から厚さ 1 . 5 3 mm の成型シートを切り出すことができ、かつ熱伝導シートサンプルから P E T フィルムを隔離する際にシート本体の変形もなく、所定のタック性を発現した状態で貼着可能である場合を良好 (O)、切り出し作業や剥離・貼着作業に支障が出た場合を不良 (x) とした。

【 0 0 8 3 】

10

20

30

40

【 表 1 】

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7
シリコンA [%]	35	40	45	50	55	60	65
シリコンB [%]	65	60	55	50	45	40	35
PET剥離力 [N/cm]	0~0.02	0.02~0.04	0.02~0.04	0.02~0.05	0.05~0.10	0.05~0.10	0.10~0.15
微粘着性	△	○	○	◎	◎	◎	◎
組成物の硬さ [N/cm ²]	25~35	20~30	15~25	15~25	10~20	10~20	10~20
熱抵抗	○	○	○	◎	◎	◎	○
作業性	○	○	○	○	○	○	○
荷重0.5kgf/cm ² 時の熱抵抗 [K·cm ² /W]	0.817	0.732	0.685	0.618	0.525	0.641	0.813
荷重7.5kgf/cm ² 時の熱抵抗 [K·cm ² /W]	0.323	0.298	0.256	0.221	0.181	0.170	0.203

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
シリコンA [%]	25	30	70	75
シリコンB [%]	75	70	30	25
PET剥離力 [N/cm]	0	0	0.15~0.25	0.20~0.30
微粘着性	×	×	○	△
組成物の硬さ [N/cm ²]	35~45	30~40	5~15	2~12
熱抵抗	×	△	○	△
作業性	○	○	×	×
荷重0.5kgf/cm ² 時の熱抵抗 [K·cm ² /W]	0.876	0.847	0.847	0.878
荷重7.5kgf/cm ² 時の熱抵抗 [K·cm ² /W]	0.356	0.378	0.307	0.312

【 0 0 8 4 】

表 1 に示すように、実施例 1 ~ 7 に係る熱伝導シートサンプルでは、PET フィルムの剥離力 (N/cm) が 0 ~ 0.25 となり、適度な微粘着性 (タック性) が発現している

10

20

30

40

50

ことが分かる。なお、実施例 1 において、剥離力が 0 (N / c m) を含むが、P E T フィルムの剥離し始めの際の値は本来の剥離力よりも低く計測されることによるものである。

【 0 0 8 5 】

すなわち、実施例 1 ~ 7 に係る熱伝導シートサンプルでは、シートの全表面にわたってシリコン液の未硬化成分が滲み出し、被覆されることにより、適度な微粘着性が発現されている。したがって、実施例 1 ~ 7 に係る熱伝導シートサンプルは、貼り付け対象の表面に対する追従性、密着性が向上し、熱抵抗を低減させることができた。

【 0 0 8 6 】

また、実施例 1 ~ 7 に係る熱伝導シートサンプルは、表面がバインダ樹脂の未硬化成分によって被覆され、表面に微粘着性が付与されることにより、仮固定が可能となり、別途接着剤を用いる必要がなく、製造工程の省力化、低コスト化を実現することができる。

10

【 0 0 8 7 】

一方、比較例 1、2 に係る熱伝導シートサンプルでは、シリコン A 液の構成比率が低く、30% 以下であったため、未硬化成分が十分に残っておらず、プレスすることによってもシートの全表面を被覆するに至らず、微粘着性は発現しなかった。また、比較例 1、2 に係る熱伝導シートサンプルは、柔軟性に欠けるとともに、炭素繊維が表面に露出しているため、接着対象への追従性、密着性が悪く、熱抵抗が上昇した。

【 0 0 8 8 】

また、比較例 3、4 に係る熱伝導シートサンプルでは、シリコン A 液の構成比率が高く、70% 以上であったため、シート本体に形状を維持できる程度の硬さがなく、P E T フィルムを剥離しようとするときシート形状が維持できず、取扱いが困難である。また、比較例 3、4 に係る熱伝導シートサンプルは、プレスにより、炭素繊維が面方向に傾倒し、熱抵抗が上昇した。また、シリコン硬化物の硬さが足りず、薄いシート状に切り出す工程も困難であった。

20

【 0 0 8 9 】

次いで、本発明の第 2 の実施例 (実施例 8 ~ 1 4) 及び第 2 の比較例 (比較例 5 ~ 8) について説明する。第 2 の実施例及び第 2 の比較例では、第 1 の実施例と同様に熱伝導性樹脂組成物のバインダ成分と硬化剤成分の成分比を変え、得られた成型体シートのプレスの有無による圧縮応力と残留応力を測定するとともに、熱伝導性樹脂組成物の未硬化分量を測定した。

30

【 0 0 9 0 】

[実施例 8]

実施例 8 では、2 液性の付加反応型液状シリコン樹脂に、シランカップリング剤でカップリング処理した平均粒径 4 μ m のアルミナ粒子 (熱伝導性粒子 : 電気化学工業株式会社製) 2 0 v o l % と、平均繊維長 1 5 0 μ m、平均繊維径 9 μ m のピッチ系炭素繊維 (熱伝導性繊維 : 日本グラファイトファイバー株式会社製) 2 2 v o l % と、シランカップリング剤でカップリング処理した平均粒径 1 μ m の窒化アルミ (熱伝導性粒子 : 株式会社トクヤマ製) 2 4 v o l % を分散させて、シリコン樹脂組成物 (熱伝導性樹脂組成物) を調製した。2 液性の付加反応型液状シリコン樹脂は、シリコン A 液 3 5 質量 %、シリコン B 液 6 5 質量 % の比率で混合したものである。得られたシリコン樹脂組成物を、内壁に剥離処理した P E T フィルムを貼った直方体状の金型 (5 0 m m x 5 0 m m) の中に押し出してシリコン成型体を成型した。得られたシリコン成型体をオープンにて 1 0 0 で 6 時間硬化してシリコン硬化物とした。得られたシリコン硬化物を、オープンにて 1 0 0、1 時間加熱した後、超音波カッターで切断した。さらに、2 5 m m x 2 5 m m に切断し、厚み 3 . 0 3 m m の成型体シートを得た。これをプレス前成型体シートとした。超音波カッターに付与する超音波振動は、発振周波数を 2 0 . 5 k H z とし、振幅を 6 0 μ m とした。超音波カッターのスライス速度は、毎秒 5 0 m m とした。

40

【 0 0 9 1 】

また、得られたプレス前成型体シートを剥離処理をした P E T フィルムで挟んだ後、スペーサを入れずにプレスすることにより、厚さ 2 . 9 5 m m のプレス後成型体シート (熱

50

伝導シート)を得た。プレス条件は100、10秒、0.1MPaとした。プレス後成型体シートの未硬化分量は、1.0%であった。

【0092】

[実施例9]

実施例9では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液40質量%と、シリコーンB液60質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件でプレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚みは3.01mm、プレス後成型体シートの厚みは2.96mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、1.1%であった。

【0093】

[実施例10]

実施例10では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液45質量%と、シリコーンB液55質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.05mm、プレス後成型体シートの厚さは2.98mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、1.3%であった。

【0094】

[実施例11]

実施例11では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液50質量%と、シリコーンB液50質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.02mm、プレス後成型体シートの厚さは2.96mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、1.5%であった。

【0095】

[実施例12]

実施例12では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液55質量%と、シリコーンB液45質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.01mm、プレス後成型体シートの厚さは2.97mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、3.4%であった。

【0096】

[実施例13]

実施例13では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液60質量%と、シリコーンB液40質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.03mm、プレス後成型体シートの厚さは2.90mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、4.5%であった。

【0097】

[実施例14]

実施例14では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液65質量%と、シリコーンB液35質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.00mm、プレス後成型体シートの厚さは2.88mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、5.0%であった。

【0098】

[比較例5]

比較例5では、2液性の付加反応型液状シリコーン樹脂として、シリコーンA液25質量%と、シリコーンB液75質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件でプレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.03mm、プレス後成型体シートの厚さは3.01mmであった。プレス後

10

20

30

40

50

成型体シートの未硬化分量は、0.5%であった。

【0099】

[比較例6]

比較例6では、2液性の付加反応型液状シリコン樹脂として、シリコンA液30質量%と、シリコンB液70質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.02mm、プレス後成型体シートの厚さは3.00mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、0.65%であった。

【0100】

[比較例7]

比較例7では、2液性の付加反応型液状シリコン樹脂として、シリコンA液70質量%と、シリコンB液30質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.08mm、プレス後成型体シートの厚さは2.92mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、5.5%であった。

【0101】

[比較例8]

比較例8では、2液性の付加反応型液状シリコン樹脂として、シリコンA液75質量%と、シリコンB液25質量%とを混合したものをを用いた他は、実施例8と同じ条件で、プレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートを作成した。プレス前成型体シートの厚さは3.02mm、プレス後成型体シートの厚さは2.87mmであった。プレス後成型体シートの未硬化分量は、6.0%であった。

【0102】

[圧縮応力の測定]

実施例8～14、及び比較例5～8に係るプレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートについて、引張圧縮試験機(株)エーアンドデー製、テンシロンRTG1225)を用いて、圧縮速度25.4mm/minで40%圧縮した際の最大圧縮応力を測定した。

【0103】

[残留応力の測定]

実施例8～14、及び比較例5～8に係るプレス前成型体シート並びにプレス後成型体シートについて、圧縮応力の測定に供した各シートを40%圧縮した状態で10分間保持し、10分後の圧縮強さを測定した。

【0104】

[未硬化分量の測定]

実施例8～14、及び比較例5～8に係るプレス後成型体を20mmに型抜きして、シートの上下にろ紙(アドバンテック東洋(株)社製No.1)をそれぞれ1枚配置し、9.42kgのおもりを載せた状態で125のオープンに24時間静置し、ろ紙に未硬化成分を吸着させた。室温に戻した後、ろ紙をはがし、成型体シートの質量を測定して質量変化率を算出することで、未硬化分量とした。

【0105】

[熱抵抗値の測定]

実施例8～14、及び比較例5～8に係る各熱伝導シートサンプルについて、ASTM-D5470に準拠した方法で荷重0.5kgf/cm²及び7.5kgf/cm²で熱抵抗値を測定した。

【0106】

10

20

30

40

【 表 2 】

	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14
シリコーンA [%]	35	40	45	50	55	60	65
シリコーンB [%]	65	60	55	50	45	40	35
プレス前成型体シートの最大圧縮応力 [N]	1350	1200	1150	990	940	790	690
プレス前成型体シートの残留応力 [N]	570	450	300	240	175	130	110
プレス前成型体シートの厚み [mm]	3.03	3.01	3.05	3.02	3.01	3.03	3.00
プレス後成型体シートの最大圧縮応力 [N]	1120	1080	900	770	710	570	540
プレス後成型体シートの残留応力 [N]	570	450	295	235	170	120	100
プレス後成型体シートの厚み [mm]	2.95	2.96	2.98	2.96	2.97	2.90	2.88
プレス前成型体シートの未硬化成分量 [%]	1.0	1.1	1.3	1.5	3.4	4.5	5.0

	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8
シリコーンA [%]	25	30	70	75
シリコーンB [%]	75	70	30	25
プレス前成型体シートの最大圧縮応力 [N]	1400	1375	600	570
プレス前成型体シートの残留応力 [N]	650	600	90	80
プレス前成型体シートの厚み [mm]	3.03	3.02	3.08	3.02
プレス後成型体シートの最大圧縮応力 [N]	1200	1190	480	460
プレス後成型体シートの残留応力 [N]	645	600	85	80
プレス後成型体シートの厚み [mm]	3.01	3.00	2.92	2.87
プレス前成型体シートの未硬化成分量 [%]	0.5	0.7	5.5	6.0

【 0 1 0 7 】

また、プレス後成型体シートはプレス前成型体シートと比較して密度が上がり、硬くなると予想されたが、プレス前成型体シートよりプレス後成型体シートの最大圧縮応力が小さくなることがわかった。最大圧縮応力、残留応力が大きすぎると実装時に基板にかかる負荷が大きくなるため、最大圧縮応力、残留応力が小さくなる実施例 8 ~ 14 は好ましい形態と言える。

【 0 1 0 8 】

10

20

30

40

50

さらに、実施例 8 ~ 14 に係る熱伝導シートサンプルでは、プレス後成型体シートの未硬化成分量は 1 % 以上、5 % 以下であった。未硬化成分量が多すぎると熱源や放熱側とシートの接触面から未硬化成分由来のオイルが滲む可能性があるが、1 % 以上、5 % 以下であれば熱伝導シートとしての使用時において支障はない。なお、未硬化成分量が少なすぎる場合は、熱源や放熱側との接触が悪く熱抵抗が大きくなるおそれがあるため、未硬化成分量は、実施例 8 ~ 14 の範囲が好適である。

【0109】

一方、比較例 5、6 に係る熱伝導シートサンプルでは、シリコン A 液の構成比率が低く、30 % 以下であったため、プレス後成型体シートの未硬化成分が十分に残っておらず、プレスすることによってもシートの全表面を被覆するに至らず、微粘着性は発現しなかった。また、比較例 5、6 に係る熱伝導シートサンプルは、柔軟性に欠けるとともに、炭素繊維が表面に露出しているため、接着対象への追従性、密着性が悪く、実施例 8 ~ 14 と比較して熱抵抗が上昇した。

10

【0110】

また、比較例 7、8 に係る熱伝導シートサンプルでは、シリコン A 液の構成比率が高く、70 % 以上であったため、シート本体に形状を維持できる程度の硬さがなく、PET フィルムを剥離しようとするときシート形状が維持できず、取扱いが困難である。また、シリコン硬化物の硬さが足りず、薄いシート状に切り出す工程も困難であった。

【0111】

さらに、比較例 7、8 に係る熱伝導シートサンプルでは、プレス後成型体シートの未硬化成分量は 5 % を超えていた。比較例 7、8 に係る熱伝導シートサンプルでは、実施例 8 ~ 14 と比較して未硬化成分量が多いため、熱源や放熱側とシートの接触面からオイルが滲んでしまう恐れがある。

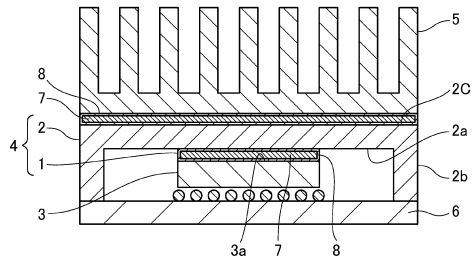
20

【符号の説明】

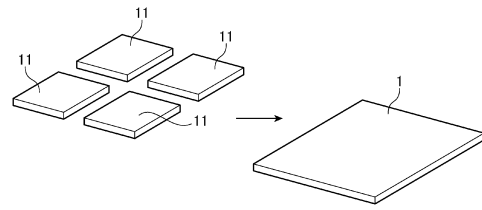
【0112】

1 熱伝導シート、2 ヒートスプレッド、2 a 主面、3 電子部品、3 a 上面、4 放熱部材、5 ヒートシンク、6 配線基板、10 スペーサ

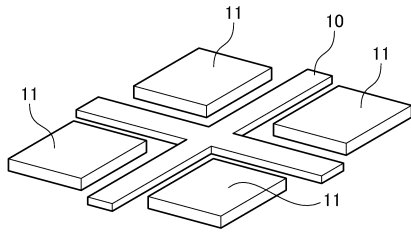
【図1】



【図3】



【図2】



フロントページの続き

- (72)発明者 石井 拓洋
東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 デクセリアルズ株式
会社内
- (72)発明者 内田 信一
東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 デクセリアルズ株式
会社内
- (72)発明者 伊東 雅彦
東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 デクセリアルズ株式
会社内

審査官 原田 貴志

- (56)参考文献 特開2009-215404(JP,A)
特開2012-001638(JP,A)
特開2012-023335(JP,A)
特開2010-114421(JP,A)
特開2008-211021(JP,A)
特開2007-084649(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|-------|
| H01L | 23/36 |
| H05K | 7/20 |