

令和 4 年 4 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14777

研究課題名（和文）絶縁・フレキシブル・高熱伝導なダイヤモンド複合伝熱シート

研究課題名（英文）Insulative, flexible, and high thermal conductivity heat transfer sheets with diamond particles

研究代表者

稲葉 優文（Inaba, Masafumi）

九州大学・システム情報科学研究院・助教

研究者番号：20732407

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：電子デバイスの発熱を効率よく放熱するために、デバイスと放熱部の間に挿入する、材料表面の凹凸に追従し、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。本研究では、絶縁対中最高の熱伝導率を持つダイヤモンドをフィラーとして柔軟な樹脂中に複合し、電界整列法により熱輸送路を形成して充填率を下げながら、フレキシブル、高熱伝導率、電気絶縁性をもつ伝熱シートを作製を目指し、ダイヤモンド微粒子の誘電泳動特性の評価、および整列条件を考慮した伝熱シートの作製を行った。結果として、ダイヤモンド微粒子が60wt%導入された伝熱シートにて1W/mKの熱伝導率を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

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り、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。特に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、配線などが熱膨張・収縮を繰り返すことにより疲労劣化し、最終的にデバイス破壊につながることも懸念される。

本研究では、このサーマルマネジメントに貢献する複合材料に、絶縁対中最高の熱伝導率をもつダイヤモンドを用いて、電圧印加という簡便な手法で高熱伝導率化を目指している。ダイヤモンドはヤスリ等に用いられる比較的安価なものをを用いることで、コスト的な課題をクリアできる。

研究成果の概要（英文）：To efficiently dissipate heat generated by electronic devices, a flexible heat-transfer sheet with high thermal conductivity that follows the roughness of the material surface and has high thermal conductivity is required to be inserted between the device and the heat-dissipating part. In this study, diamond, which has the highest thermal conductivity among the insulating materials, is composited as a filler in a flexible resin to form a heat transport path by electric field alignment method, aiming to fabricate a heat transfer sheet with flexibility, high thermal conductivity, and electrical insulation properties. The heat-transfer sheet was fabricated by considering the alignment conditions. As a result, a thermal conductivity of 1 W/mK was obtained with a heat-transfer sheet containing 60 wt% diamond particles.

研究分野：電気・電子材料工学

キーワード：ダイヤモンド 放熱シート 伝熱シート 電界整列 誘電泳動 複合材料

## 1. 研究開始当初の背景

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り、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。特に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、配線などが熱膨張・収縮を繰り返すことにより疲労劣化し、最終的にデバイス破壊につながることも懸念される。

デバイスと、ヒートシンク等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。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)。熱伝導グリースもこの熱伝導に貢献するが、熱サイクルによる膨張・収縮で剥離し、性能を発揮できない懸念がある。フレキシブル伝熱シートには、柔軟な樹脂に、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や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。

これまで、本グループでは比較的熱伝導率の高い、絶縁性の窒化アルミニウム (AlN) 微粒子フィラーを、樹脂中で誘電泳動現象(電界整列)により垂直方向に配列することで、熱伝導率を向上した伝熱シートの作製を行ってきた。樹脂中でのフィラーの整列には電界整列法の他に磁気整列法や成形時の剪断力による整列法があるが、電界整列は、絶縁体をそのまま配列でき、薄い伝熱シート構造の作製に適している。実用上、フレキシブル伝熱シートには 20 W/mK 程度の高い熱伝導率が求められるが、絶縁性を担保した伝熱シートでは~4 W/mK が限度である。ダイヤモンドは、室温中でも 2000 W/mK のフォノン伝導による非常に高い熱伝導率を持ち、電気絶縁性も高い。そこで、ダイヤモンド微粒子をフレキシブル伝熱シートへ応用することで、フレキシブル、高熱伝導率、電気絶縁の3つの機能を発現させ、高い熱伝導率を持つ絶縁性フレキシブル伝熱シートの作製が可能であると考えられる。

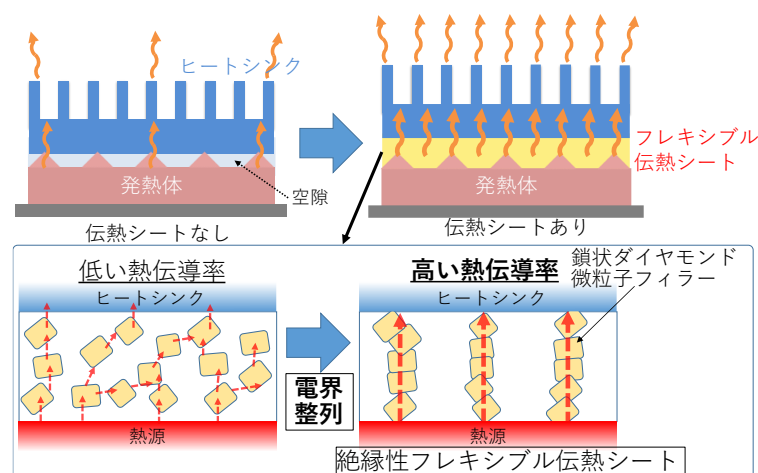


図1 フレキシブル伝熱シートの模式図。ヒートシンクと発熱体の空隙を埋め、かつ効率よく熱を伝える。電界整列により伝熱シートの縦方向熱伝導率を向上する。

## 2. 研究の目的

電界整列法による高熱伝導ダイヤモンド微粒子複合伝熱シートの開発を本研究の目的とする。

## 3. 研究の方法

### ① ダイヤモンドの誘電泳動の基礎特性の評価

直径数 100 nm~数  $\mu\text{m}$  程度の微粒子ダイヤモンドの誘電泳動特性を取得し、高い熱伝導率を活かしたフレキシブル伝熱シートへの応用可能性を検討する。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)が判定できる。誘電泳動特性から、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。

### ② 微粒子を電界整列した伝熱シートの、整列性、伝熱性能評価

面内方向に整列した伝熱シートの作製技術確立の後、面垂直方向に整列した伝熱シートの作製を行う。面内方向では、アクリル、シリコン樹脂溶媒中にダイヤモンド微粒子を分散し、楕円電極構造により電界整列させる。電界整列法では、粒子は鎖状に整列すると考えられ、この鎖の整列方向を評価する。さらに、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。縦方向の評価には定常比較法によりマクロな系の熱伝導率を測定する。

また、熱伝導率向上を企図して、電圧印加のための電極系の工夫、樹脂粘度を変化させた際の影響を評価した。

#### 4. 研究成果

##### 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は正）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できる。

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2)。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(図3)。フィッティングカーブ(図3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。

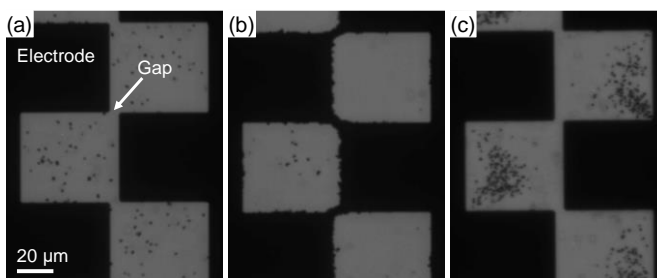


図2 キャスルウォール電極上のダイヤモンド微粒子に電界を印加した際の挙動 (a) 印加前、(b) 印加後（正の誘電泳動） (c) 印加後（負の誘電泳動）

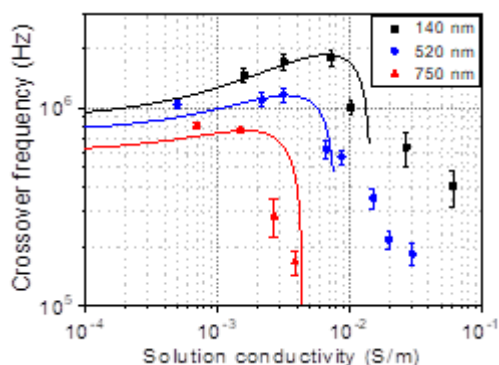


図3 NaCl水溶液中のダイヤモンド微粒子のクロスオーバー周波数

##### 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4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5)。

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6)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7に、作製した伝熱シートの熱伝導率を、

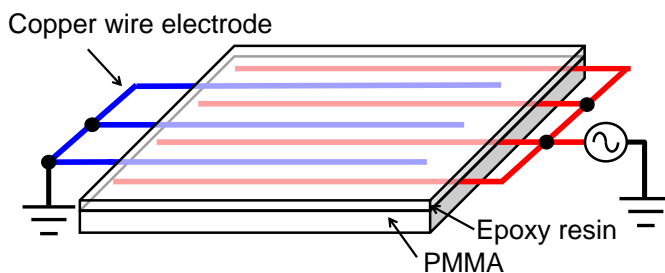


図4 高電圧印加可能な櫛歯電極構造（面内方向整列）

電圧印加を行った場合と行わなかった場合で比較した。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。得られた熱伝導率の妥当性を評価するため、伝熱シートの断面観察を行った(図8)。電圧印加無しの場合、ダイヤモンド微粒子が伝熱シート下方に集中し、上部に樹脂のみの層が存在していることがわかる。これは、伝熱シートの樹脂重合時に、ダイヤモンド微粒子が沈降したためだと考えられる。この樹脂のみの層が熱伝導率を抑制していると予想され

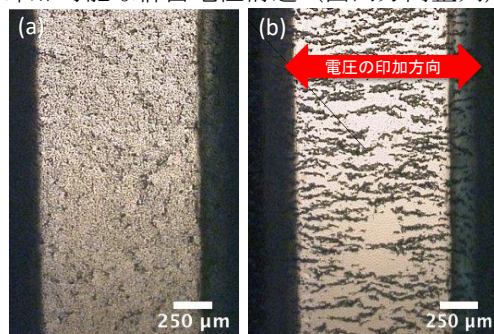


図5 アクリル樹脂溶媒中でのダイヤモンド微粒子の電界整列挙動(a)印加前(b)印加後

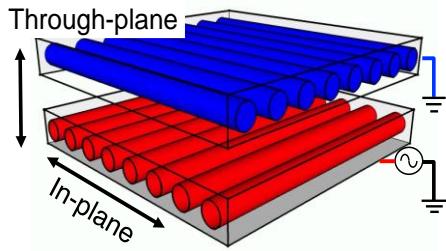
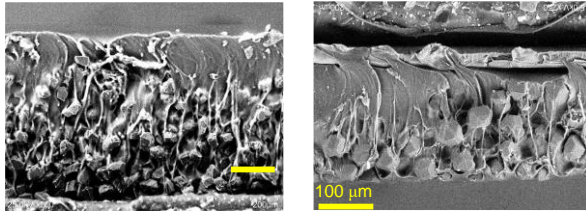


図 6 交差櫛歯電極構造 (面直方向整列)  
交差部に高電界が印加できる



電圧印加なし 電圧印加あり

図 8 作製した伝熱シートの断面 SEM 像

る。電圧印加有りの場合、一部はダイヤモンド微粒子が縦方向に整列していることを確認した。

さらに、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 9 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た。このとき、ダイヤモンド微粒子は 60 wt% になるように調整した。ダイヤモンド微粒子の沈降については、整列したダイヤモンドの数を減らすことで再現した。このときの熱伝導率のシミュレーション結果を図 10 に示す。ダイヤモンド微粒子が伝熱シートを橋絡した場合、熱伝導率は 12 W/mK と高いのに対し、橋絡していない場合は 1 桁程度熱伝導率が低下することがわかった。本研究で作製した電界整列伝熱シートの熱伝導率は ~1 W/mK であり、樹脂のみの領域が存在することにより、大きく熱伝導率が低下していることが示唆された。

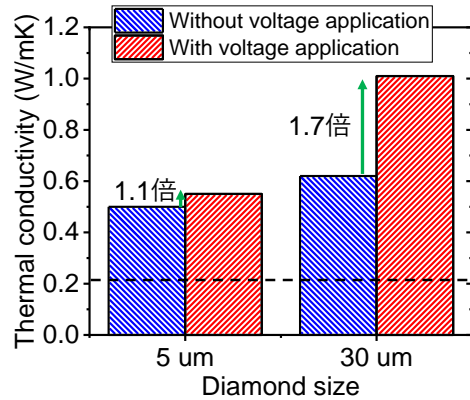


図 7 電界印加の有無による伝熱シートの熱伝導率の変化

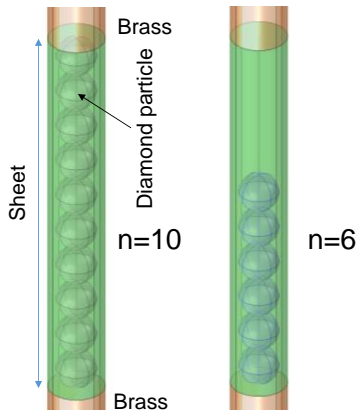


図 9 電界整列したダイヤモンド微粒子が樹脂中に存在する伝熱シートのシミュレーションモデル  
定常熱流法の測定様式を反映している

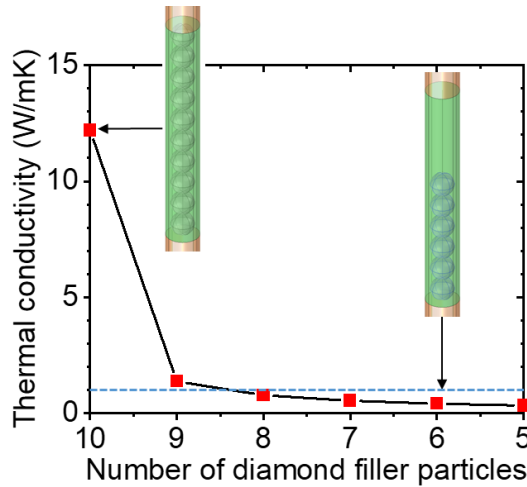


図 10 粒子の沈降を再現した際の熱伝導率のシミュレーション結果

ダイヤモンド微粒子の沈降によってシートの熱伝導率が大きく低下することが分かった。櫛歯アレ電極を従来の横置きから縦置きにすることで、重力によるパルチェーン形成への影響抑制を目指した(図 11)。横置き電極系では電界方向と重力方向が同じであるため、ダイヤモンド微粒子の沈降により電界整列が妨げられ、低熱伝導率のアクリル樹脂層が形成されてしまう。そこで、電極を縦置きにすることで電界方向と重力方向の不一致により、電界整列が重力によって阻害されることを防げると考えた。

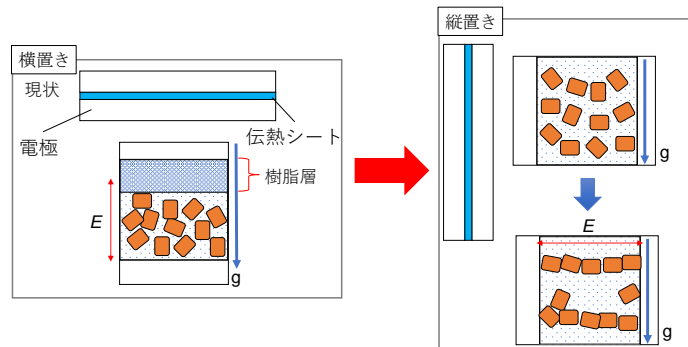


図 11 横置き電極系から縦置き電極系へ

電圧印加後のダイヤモンド微粒子の様子を図 12 に示す。図 12 (a)は電界と重力の向きが垂直、(b)は電界と重力の向きが平行になっている。どちらも粒子が電界方向に整列し、パールチェーンを形成した。

縦置き電極系を用いて伝熱シートを試作したところ、横置き電極系と比較するとダイヤモンド微粒子沈降によるアクリル樹脂層は確認されなかった。また、パールチェーンは確認されず、ダイヤモンド微粒子はシート全体に分散していた。

縦置き電極系では電圧印加による伝熱シートの熱伝導率向上は確認できなかった。また、横置き電極系と比較すると、電圧印加なしのものはほとんど熱伝導率が変わらず、電圧印加ありのものは熱伝導率が低くなった。

さらに、微粒子の電界整列時の挙動について考察した。懸濁液に電界を印加したとき、母材が流れることによってダイヤモンド微粒子の整列が崩壊している事に注目した。母材の粘度が小さい場合、この崩壊に要する時間は非常に早く、伝熱シートの作製においても UV による重合に 1 分以上必要なこと考慮すると、この懸濁液流れによるダイヤモンド微粒子の整列崩壊を抑制する必要がある。そこで、高粘度樹脂母材の調製、印加電圧、印加周波数の変更によって懸濁液流れ抑制の検討を行った。

フィラーの電界整列パターンを 3 パターンに分類した(図 13)。

- パターン 0: フィラーが分散あるいは複数の短鎖が存在
- パターン I: 電極間に渡る 1 本鎖のパールチェーンが形成
- パターン II: チェーンが集まり太い柱状の構造を形成

樹脂の粘度を、樹脂溶媒の混合率を制御して変化させた。高粘度の溶媒を用いた際、交流電圧の周波数と印加電圧を変化させ、整列挙動を観察したところ(図 14)、懸濁液流れを抑制しつつ、微粒子を整列できる条件を見いだすことができた。

今後、本研究を進展させ、高熱伝導率の絶縁・フレキシブルな伝熱シートを実現を目指す。

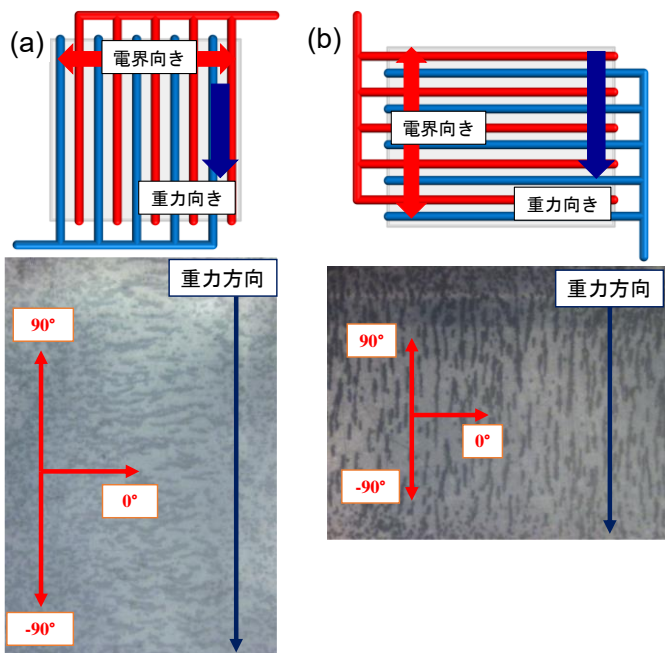


図 12 面内方向電圧印加時のダイヤモンド微粒子の様子(赤矢印は電界方向)

(a)電界と重力の向きが垂直、(b)電界と重力の向きが平行

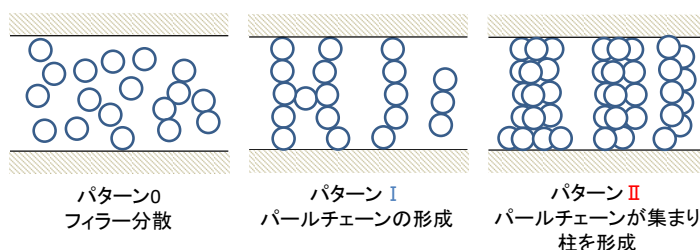


図 13 樹脂溶媒中のダイヤモンド微粒子の整列パターン

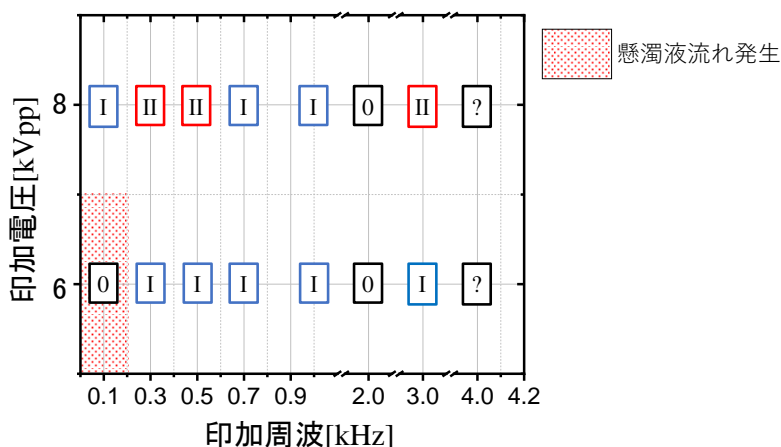


図 14 粘度 : 173 mPa · s のアクリル樹脂母材におけるダイヤモンド微粒子 10 wt%懸濁液の観察挙動  
ここで、0, I, IIはそれぞれ整列パターン 0, I, IIの構造形成を示す

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Inaba Masafumi, Kono Masaki, Oda Takenori, Phansiri Nisarut, Nakano Michihiko, Suehiro Junya	4. 巻 10
2. 論文標題 Response properties of nitrogen dioxide gas sensors with tin oxide decorated carbon nanotube channel fabricated by two-step dielectrophoretic assembly	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 055223 ~ 055223
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0008188	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Phansiri Nisarut, Maenosono Daichi, Inaba Masafumi, Nakano Michihiko, Suehiro Junya, Sato Hidefumi	4. 巻 1
2. 論文標題 A New Scheme for Residual CF4 Detection in Gas-Insulated Switchgear Using Plasma-induced CF4 Decomposition into CO2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 2020 8th International Conference on Condition Monitoring and Diagnosis (CMD)	6. 最初と最後の頁 54 ~ 57
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/CMD48350.2020.9287294	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Bi Te, Niu Junxiong, Oi Nobutaka, Inaba Masafumi, Sasaki Toshio, Kawarada Hiroshi	4. 巻 67
2. 論文標題 Application of 2DHG Diamond p-FET in Cascode With Normally-OFF Operation and a Breakdown Voltage of Over 1.7 kV	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Electron Devices	6. 最初と最後の頁 4006 ~ 4009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TED.2020.3019020	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nakano Michihiko, Inaba Masafumi, Suehiro Junya	4. 巻 -
2. 論文標題 Rapid and low-cost amplicon visualization for nucleic acid amplification tests using magnetic microbeads	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Analyst	6. 最初と最後の頁 ~
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0AN02349C	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakano Michihiko、Inaba Masafumi、Suehiro Junya	4. 巻 64
2. 論文標題 Applications of dielectrophoresis in life science	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Electrophoresis Letters	6. 最初と最後の頁 15～18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2198/electroph.64.15	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 神村 尊, 李 赫男, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第73回電気・情報関係学会九州支部連合大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 李 赫男, 神村 尊, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第73回電気・情報関係学会九州支部連合大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 稲葉 優文, 李 赫男, 神村 尊, 中野 道彦, 末廣 純也
2. 発表標題 ダイヤモンド微粒子を電界整列させた伝熱シートの熱伝導率評価
3. 学会等名 第34回ダイヤモンドシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神村 尊, 李 赫男, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也
2. 発表標題 電界整列法によるダイヤモンドフィラー伝熱シートに関する母材と熱伝導率向上の検討
3. 学会等名 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,
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神村 尊, 李 赫男, 稲葉 優文, 中野 道彦, 末廣 純也
2. 発表標題 電界整列法によるダイヤモンドフィラー伝熱シートに関する熱伝導率向上の検討
3. 学会等名 令和3年電気学会全国大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

個人のホームページ <a href="https://masafumi-inaba.jimdofree.com/">https://masafumi-inaba.jimdofree.com/</a> 九州大学の教員データベース <a href="https://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K007168/index.html">https://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K007168/index.html</a>
--

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件



8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------