

氧化铝和碳化硅填充硅橡胶的导热性能研究

金天鹏,展喜兵,张军营*,程 珏

(北京化工大学 胶接材料与原位固化技术研究室,北京 100029)

摘要:研究氧化铝和碳化硅填充硅橡胶的导热性能。结果表明:采用不同粒径碳化硅填充硅橡胶时,随着碳化硅用量的增大,硅橡胶的热导率逐渐增大;在相同填料用量下,粒径小的碳化硅填充硅橡胶热导率高于粒径大的碳化硅填充胶;氧化铝/碳化硅并用填充硅橡胶的导热性能优于单用氧化铝填充胶;当氧化铝/碳化硅质量比为8:2、填充量为600份时,硅橡胶的导热性能最佳。

关键词:硅橡胶;氧化铝;碳化硅;导热性能

中图分类号:TQ330.38⁺3;TQ333.93 **文献标志码:**A **文章编号:**1000-890X(2014)09-0532-04

随着电子产品的微型化及单位面积功率的增大,集成板上热量越来越集中。电子元器件的散热已成为微电子行业发展的瓶颈^[1],影响了电子产品的运行速度、可靠性及使用寿命等。传统的散热方法一般是采用散热性能良好的金属散热器。但是由于散热器与基板的微观表面凹凸不平,二者界面间的有效接触面积有限,因此金属散热器的散热性能大打折扣,已不能再满足高功率微电子产品的要求^[2]。

为了改善电子器件的散热性能,弹性体垫片作为一种热界面材料得到了广泛应用^[3]。柔软的导热垫片能够紧密贴合在散热器与基板的表面,有效降低了界面处的热阻。典型的弹性体通常是以聚合物为基体树脂(如硅橡胶),添加一些具有电绝缘及高导热性能的无机填料(如氮化铝、氮化硼、碳化硅、氧化铝等)制备而成^[4-6]。

W. Y. Zhou等^[7]以107硅油为基体树脂、氮化硅和碳化硅晶须为导热填料,研究了弹性体的导热性能。结果表明,当氮化硅/碳化硅质量比为9:1时,弹性体的导热性能改善,热稳定性能提高。此外,他们还研究了氮化硼用量及粒径对硅橡胶物理性能和导热性能的影响^[8]。结果表明,随着氮化硼用量的增大,粒径较大的氮化硼填充的硅橡胶具有更好的导热性能。采用不同粒径

的氮化硼混合填料时,能够增大填料的有效堆积密度,因此硅橡胶的导热性能显著提高。L. C. Sim等^[9]采用氧化铝和氧化锌填充硅橡胶制备了弹性体导热垫片,在相同填充量下,氧化锌填充胶比氧化铝填充胶表现出更好的导热性能,这主要归因于氧化锌本身具有较高的热导率。

本工作以微米级氧化铝和碳化硅为导热填料,研究这两种填料单用及并用对硅橡胶微观结构和导热性能的影响。

1 实验

1.1 主要原材料

乙烯基硅油,粘度为 $5\,000\text{ mm}^2\cdot\text{s}^{-1}$,上海建橙工贸有限公司产品;含氢硅油,粘度为 $50\text{ mm}^2\cdot\text{s}^{-1}$,江西东大化工有限公司产品;氯铂酸,天津市环威精细化工有限公司产品;氧化铝,平均粒径为 $24\text{ }\mu\text{m}$,纯度大于99.8%,日本联合集团产品;碳化硅,平均粒径为10和 $35\text{ }\mu\text{m}$,纯度大于99.5%,北京兴荣源科技有限公司产品。

1.2 主要设备和仪器

JJ-1型精密定时搅拌机,金坛市荣华仪器制造有限公司产品;D2-1A型真空烘箱,天津市泰斯特仪器有限公司产品;TC1导热系数仪,加拿大C-Therm公司产品;DV-III型粘度计,美国Brookfield公司产品;S-4700型扫描电子显微镜(SEM),日本日立公司产品。

作者简介:金天鹏(1987—),男,青海海东人,硕士,主要从事导热硅橡胶的研究,现在合肥京东方光电科技有限公司工作。

*通信联系人

1.3 试样制备

基本配方: 乙烯基硅油/含氢硅油摩尔比 1: 1.2, 氯铂酸 适量, 填料 变量。

先将乙烯基硅油和含氢硅油分别与一定量的氧化铝粉体充分混合均匀后, 再加入一定量的氯铂酸, 待混合均匀后, 转移到自制模具中, 放入真空烘箱中抽气、放气, 重复几次, 脱除气泡后压制成型, 固化条件为 $80\text{ }^{\circ}\text{C} \times 2\text{ h}$, 冷却至室温取样。

1.4 性能测试

各项性能均按相应的国家标准进行测试。

2 结果与讨论

2.1 填料和导热硅橡胶的微观结构

导热填料粒径的分布对聚合物的导热性能有很大影响。当填料颗粒按照特殊的堆积方式排列时, 能够形成更紧密的堆积形式, 有助于形成良好的导热通路^[10]。氧化铝和碳化硅的 SEM 照片分别如图 1 和 2 所示。

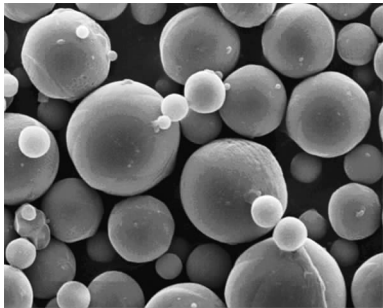


图 1 氧化铝的 SEM 照片

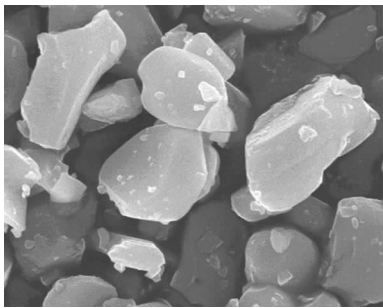
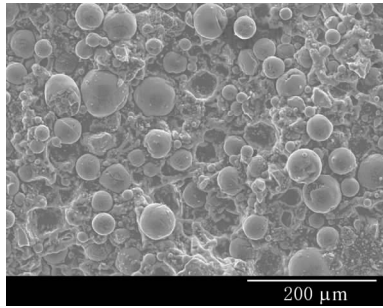


图 2 碳化硅的 SEM 照片

从图 1 和 2 可以看出: 氧化铝颗粒呈球状, 表面光滑且球形率较高; 而碳化硅呈无规颗粒状。

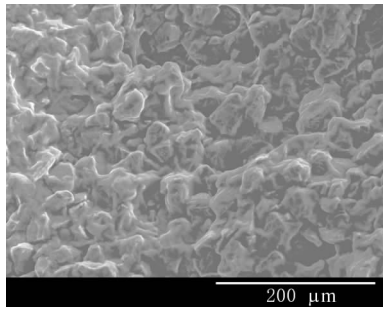
氧化铝和碳化硅填充硅橡胶撕裂断面处的 SEM 照片分别如图 3 和 4 所示。

从图 3 和 4 可以明显看出, 两种填料在基体



放大 200 倍。

图 3 氧化铝填充硅橡胶断面的 SEM 照片



放大 250 倍。

图 4 碳化硅填充硅橡胶断面的 SEM 照片

树脂中的分散较为均匀, 能够形成一定的导热通路。另外, 由于碳化硅颗粒的无规性, 表面积较大, 因此与硅橡胶界面间的接触更好。

2.2 碳化硅用量和粒径对硅橡胶导热性能的影响

复合材料的导热性能由聚合物基体和填料决定, 尤其与导热填料的形状、粒径、用量及其在基体中的分散状态有关^[11]。随着填料用量的增大, 复合材料的热导率逐渐提高。碳化硅用量对硅橡胶导热性能的影响如图 5 所示。

纯硅橡胶的热导率为 $0.2\text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, 而碳化硅的热导率能够达到 $80\text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ 以

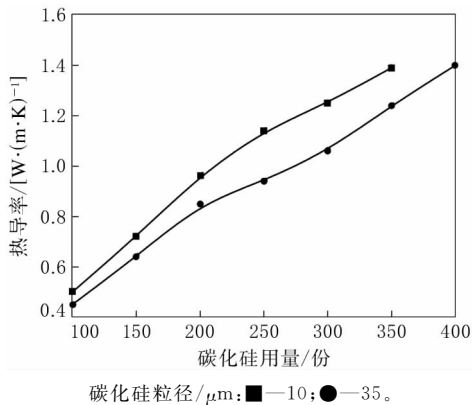
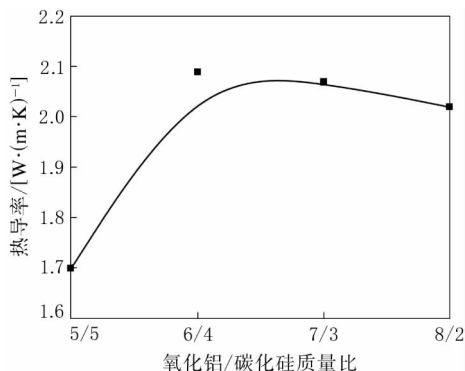


图 5 碳化硅用量对硅橡胶导热性能的影响

上,因其晶型结构不同而有所差异。从图5可以看出,采用10和35 μm 碳化硅填充硅橡胶时,随着碳化硅用量的增大,硅橡胶的导热性能逐渐提高,最大填充量分别达到350和400份,此时硅橡胶的热导率分别为 1.39 和 $1.40 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ 。在相同填料用量下,小粒径碳化硅填充的硅橡胶热导率高于大粒径碳化硅填充胶,这是由于粒径小的颗粒数量更多,颗粒之间堆积更紧密,从而有效降低了填料颗粒之间的聚合物热阻。

2.3 氧化铝/碳化硅并用对硅橡胶导热性能的影响

氧化铝/碳化硅并用对硅橡胶导热性能的影响如图6所示。



填料用量为600份;碳化硅粒径为35 μm 。

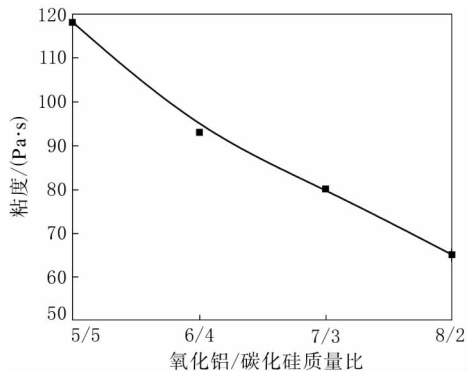
图6 氧化铝/碳化硅质量比对硅橡胶导热性能的影响

从图6可以看出:随着氧化铝/碳化硅质量比的增大,硅橡胶的热导率先增大后减小,这是由于碳化硅本身的导热性能较高,添加一定量时有助于硅橡胶导热性能的改善;当氧化铝/碳化硅质量比继续增大时,因碳化硅颗粒的无规分散状态,使得原来球形氧化铝颗粒之间的紧密堆积变得疏松,增大了导热颗粒之间的热阻,造成硅橡胶的导热性能降低。

2.4 氧化铝/碳化硅并用对混合体系粘度及硅橡胶导热性能的影响

在填充型体系中,粘度对填料用量及填料在树脂体系中的分散状态等都有很大影响。若混合体系粘度过大,混合物中夹杂着许多微小气泡难以排除,成型后样品内部会出现空缺,对硅橡胶的导热性能也有一定影响。氧化铝/碳化硅并用对混合体系粘度的影响如图7所示。

从图7可以看出,随着氧化铝/碳化硅质量比



注同图6。

图7 氧化铝/碳化硅质量比对混合体系粘度的影响
的增大,混合体系的粘度逐渐减小,有利于加工成型。这是因为氧化铝颗粒具有良好的球形率,大大减小了填料颗粒之间的滑动摩擦,从而降低了体系粘度。当氧化铝与碳化硅按一定比例混合添加时,有利于增大导热填料的填充量,大大提高硅橡胶的导热性能。

鉴于氧化铝与碳化硅并用对硅橡胶的导热性能具有协同作用,且对混合体系粘度有一定影响,故研究当氧化铝/碳化硅质量比为8:2时填料用量对硅橡胶导热性能的影响,结果如图8所示。

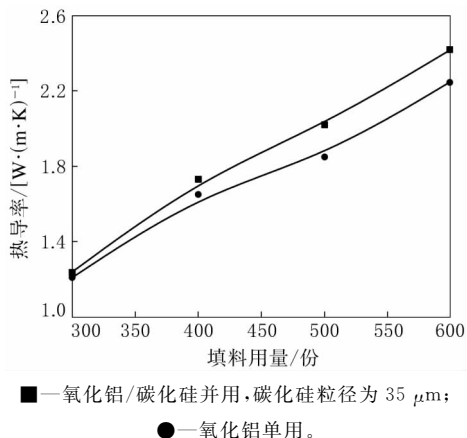


图8 填料用量对硅橡胶导热性能的影响

从图8可以看出,混合填料的最大填充量可以达到600份,硅橡胶的热导率可以达到 $2.4 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ 以上。与单用氧化铝填充硅橡胶相比,氧化铝/碳化硅并用填充硅橡胶的导热性能明显提高。分析认为:在氧化铝/碳化硅并用体系中,加入80%的球形氧化铝颗粒,一方面减小了无规碳化硅颗粒滑动时的摩擦阻力,使混合体系粘度降低,填料填充量增大;另一方面,减小了无

规粒子之间的间隙,增大了颗粒之间有效接触的几率,在橡胶基体中能够形成更多的导热通道,有效改善了硅橡胶的导热性能。

3 结论

(1)采用不同粒径碳化硅填充硅橡胶时,随着碳化硅用量的增大,硅橡胶的热导率逐渐增大。在相同填料用量下,粒径小的碳化硅填充胶热导率较高,最大填充量为350份,而粒径大的碳化硅能够填充至400份,硅橡胶的热导率为 $1.40 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$,比纯硅橡胶提高了约7倍。

(2)氧化铝/碳化硅并用填充硅橡胶的导热性能优于单用氧化铝填充胶。当氧化铝/碳化硅质量比为8:2、填充量为600份时,硅橡胶的热导率为 $2.4 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$,导热性能最佳。

参考文献:

- [1] Otiaba K C, Ekere N N, Bhatti R S, et al. Thermal Interface Materials for Automotive Electronic Control Unit: Trends, Technology and R & D Challenges[J]. Microelectronics Reliability, 2011, 51(12): 2031-2043.
- [2] Shahil K M F, Balandin A A. Graphene-Multilayer Graphene Nanocomposites as Highly Efficient Thermal Interface Materials[J]. Nano Letters, 2012, 12(2): 861-867.
- [3] Wu L Z. Bounds on the Effective Thermal Conductivity of Composites with Imperfect Interface[J]. International Journal of Engineering Science, 2010, 48(9): 783-794.
- [4] Sebnem Kemalolu, Guralp Ozkoc, Ayse Aytac. Properties of

- Thermally Conductive Micro and Nano Size Boron Nitride Reinforced Silicon Rubber Composites[J]. Thermochimica Acta, 2010, 499(1-2): 40-47.
- [5] Han Y W, Lv S M, Hao C X, et al. Thermal Conductivity Enhancement of BN/Silicone Composites Cured under Electric Field: Stacking of Shape, Thermal Conductivity, and Particle Packing Structure Anisotropies[J]. Thermochimica Acta, 2012, 529: 68-73.
 - [6] Jinho Hong, Jeongwoo Lee, Chang Kook Hong, et al. Effect of Dispersion State of Carbon Nanotube on the Thermal Conductivity of Poly(Dimethyl Siloxane) Composites[J]. Current Applied Physics, 2010, 10(1): 359-363.
 - [7] Zhou W Y, Wang C F, An Q L, et al. Thermal Properties of Heat Conductive Silicone Rubber Filled with Hybrid Fillers[J]. Journal of Composite Materials, 2008, 42(2): 173-187.
 - [8] Zhou W Y, Qi S H, Zhao H Z, et al. Thermal Conductive Silicone Rubber Reinforced with Boron Nitride Particles[J]. Polymer Composites, 2007, 28(1): 23-28.
 - [9] Sim L C, Ramanan S R, Ismail H, et al. Thermal Characterization of Al_2O_3 and ZnO Reinforced Silicone Rubber as Thermal Pads for Heat Dissipation Purposes[J]. Thermochimica Acta, 2005, 430(1-2): 155-165.
 - [10] Sajjad Azeem, Muhammad Zain-ul-Abdein. Investigation of Thermal Conductivity Enhancement in Bakelite-graphite Particulate Filled Polymeric Composite[J]. International Journal of Engineering Science, 2012, 52: 30-40.
 - [11] Hsiao Yen Ng, Lu X H, Soo Khim Lau. Thermal Conductivity of Boron Nitride-filled Thermoplastics: Effect of Filler Characteristics and Composite Processing Conditions[J]. Polymer Composites, 2005, 26(6): 778.

收稿日期: 2014-03-06

Thermal Conductivity of Silicone Rubber Filled with Alumina and Silicon Carbide

JIN Tian-peng, ZHAN Xi-bing, ZHANG Jun-ying, CHENG Jue

(Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)

Abstract: The thermal conductivity of silicone rubber filled with alumina and silicon carbide was investigated. The results showed that, by using silicon carbide with different particle sizes to fill silicone rubber, as the addition level of silicon carbide increased, the thermal conductivity of silicone rubber increased gradually. At the same content of silicon carbide, the thermal conductivity of silicone rubber filled with particles having smaller size was higher. The thermal conductivity of silicone rubber filled with alumina/silicon carbide blend was better than that filled with only alumina. It was found the optimized addition level of filler was 600 phr in which the mass ratio of alumina/silicon carbide was 8:2.

Key words: silicone rubber; alumina; silicon carbide; thermal conductivity