

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2016-533282

(P2016-533282A)

(43) 公表日 平成28年10月27日(2016.10.27)

(51) Int.Cl.

B29C 45/00

(2006.01)

F 1

B 2 9 C 45/00

テーマコード(参考)

4 F 2 O 6

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 45 頁)

(21) 出願番号	特願2016-523233 (P2016-523233)
(86) (22) 出願日	平成26年10月13日(2014.10.13)
(85) 翻訳文提出日	平成28年5月12日(2016.5.12)
(86) 國際出願番号	PCT/EP2014/071836
(87) 國際公開番号	W02015/055552
(87) 國際公開日	平成27年4月23日(2015.4.23)
(31) 優先権主張番号	13188410.8
(32) 優先日	平成25年10月14日(2013.10.14)
(33) 優先権主張國	歐州特許庁(EP)

(71) 出願人	505005049 スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー アメリカ合衆国、ミネソタ州 55133-3427、セントポール、ポストオフィス ボックス 33427、スリーエム センター
(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敏
(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(74) 代理人	100146466 弁理士 高橋 正俊

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】ポリマー／窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成される構成部品、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物、そのような構成部品を生成するための方法及びそ

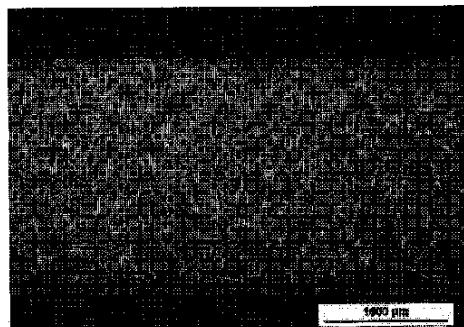
(57) 【要約】

本発明は、射出成型機において射出金型を用いポリマー／窒化ホウ素化合物を使用する射出成型工程を含む、構成部品の少なくとも一部分上に最大3mmの壁厚を有する構成部品の製造方法であって、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物が熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含み、前記射出成型工程中の射出速度が最大200mm/秒である、方法に関する。

本発明は更に、そのような方法を用いて生成される構成部品、及びそのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物にも関する。

本発明は更に、被冷却構成部品又はアセンブリを放熱させるためのそのような構成部品の使用に関する。

Figure 6a:



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

構成部品の少なくとも一部分上に最大3mmの壁厚を有する前記構成部品の製造方法であって、射出成型機において射出金型を用いポリマー／窒化ホウ素化合物を使用する射出成型工程を含み、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物が熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含み、前記射出成型工程中の射出速度が最大200mm／秒である、方法。

【請求項 2】

前記射出成型速度が175mm／秒以下、好ましくは150mm／秒以下である、請求項1に記載の製造方法。 10

【請求項 3】

前記射出速度が125mm／秒以下、好ましくは100mm／秒以下、より好ましくは80mm／秒以下、特に好ましくは70mm／秒以下である、請求項2に記載の製造方法。 20

【請求項 4】

前記ポリマー／窒化ホウ素化合物がガラス纖維を含まず、
前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも10高くかつ最大60高く、
前記射出成型金型の前記金型温度が、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも30低くかつ最大120低く、 20

前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が少なくとも1W/m·K(1W/m·)かつ2.5W/m·K(2.5W/m·)未満であり、前記熱伝導率が、厚さ2mmの円盤形状の射出成型試料においてDIN EN ISO 22007-4にしたがって測定される、

請求項1～3のいずれか一項に記載の製造方法。

【請求項 5】

前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、前記熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも20高くかつ最大50高く、好ましくは少なくとも30高くかつ最大40高く、及び／又は射出成型金型の金型温度が、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも60低くかつ最大100低く、好ましくは少なくとも90低くかつ最大100低い、請求項4に記載の製造方法。 30

【請求項 6】

前記ポリマー／窒化ホウ素化合物がガラス纖維を含まず、
前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、前記熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも10高くかつ最大60高く、

前記射出成型金型の前記金型温度が、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも5低くかつ最大70低く、 40

前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が少なくとも2.5W/m·K(2.5W/m·)であり、前記熱伝導率が、厚さ2mmの円盤形状の射出成型試料においてDIN EN ISO 22007-4にしたがって測定される、

請求項1～3のいずれか一項に記載の製造方法。

【請求項 7】

前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、前記熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも20高くかつ最大50高く、好ましくは少なくとも20高くかつ最大40高く、特に好ましくは少なくとも20高くかつ最大35高く、及び／又は前記射出成型金型の金型温度が、DIN EN ISO 75-1 50

/ - 2 にしたがって 0 . 4 5 M P a で測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも 1 0 度くかつ最大 5 0 度く、好ましくは少なくとも 1 0 度くかつ最大 4 0 度い、請求項 6 に記載の製造方法。

【請求項 8】

前記ポリマー / 窒化ホウ素化合物がガラス纖維を含み、
前記射出成型工程中の前記射出速度が少なくとも 5 0 m m / 秒、好ましくは少なくとも 7 0 m m / 秒であり、
前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、前記熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも 1 0 度くかつ最大 6 0 度く、
前記射出成型金型の前記金型温度が、D I N E N I S O 7 5 - 1 / - 2 にしたがって 0 . 4 5 M P a で測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも 5 度くかつ最大 4 0 度い。
10

請求項 1 又は 2 に記載の製造方法。

【請求項 9】

前記射出成型機内の前記化合物溶融物の溶融温度が、前記熱電導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも 2 0 度くかつ最大 5 5 度く、好ましくは少なくとも 3 0 度くかつ最大 5 5 度く、及び / 又は射出成型金型の金型温度が、D I N E N I S O 7 5 - 1 / - 2 にしたがって 0 . 4 5 M P a で測定したとき、前記熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも 1 0 度くかつ最大 3 0 度く、好ましくは少なくとも 1 0 度くかつ最大 2 5 度い、
20 請求項 8 に記載の製造方法。

【請求項 10】

請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の方法により得られる、構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 m m の壁厚を有する構成部品。

【請求項 11】

構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 m m の壁厚を有する構成部品であって、前記構成部品が、ポリマー / 窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成され、前記ポリマー / 窒化ホウ素化合物が、熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導充填剤を含み、前記充填剤が、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含む、構成部品。

【請求項 12】

互いに凝集することで鱗片状の窒化ホウ素凝集体を形成する前記小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含む、請求項 1 1 に記載の構成部品。

【請求項 13】

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数が、2 . 0 超、好ましくは 2 . 5 以上、より好ましくは 3 . 0 以上、特に好ましくは 3 . 5 以上であり、前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚さが、5 0 0 μ m 以下、好ましくは 2 0 0 μ m 以下、より好ましくは 1 0 0 μ m 以下、更により好ましくは 7 0 μ m 以下、なおより好ましくは 5 0 μ m 以下、特に好ましくは 3 5 μ m 以下であり、及び / 又は前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体のアスペクト比が、1 超、好ましくは 2 以上、より好ましくは 3 以上、特に好ましくは 5 以上である、
30

請求項 1 2 に記載の構成部品。

【請求項 14】

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、無機結合相を含む、請求項 1 2 又は 1 3 に記載の構成部品。

【請求項 15】

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、いずれの場合も前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総量に基づき、少なくとも 1 %、好ましくは少なくとも 5 %、より好ましくは少なくとも 1 0 %、更により好ましくは少なくとも 2 0 %、特に好ましくは少なくとも 3 0 % の結合相割合を有する、請求項 1 4 に記載の構成部品。

【請求項 16】

前記結合相が、窒化アルミニウム (A l N) 、酸窒化アルミニウム、窒化チタン (T i
50

N)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、及び/又は窒化ホウ素(BN)、好ましくは窒化アルミニウム、酸窒化アルミニウム、窒化チタン、及び/又は窒化ケイ素、より好ましくは窒化アルミニウム及び/又は酸窒化アルミニウム、特に好ましくは窒化アルミニウムを含む、請求項14又は15に記載の構成部品。

【請求項17】

前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が、少なくとも1W/m·K(1W/m·K)、好ましくは少なくとも1.2W/m·K(1.2W/m·K)、より好ましくは少なくとも1.5W/m·K(1.5W/m·K)、及び特に好ましくは少なくとも1.8W/m·K(1.8W/m·K)であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4にしたがって、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、請求項11~16のいずれか一項に記載の構成部品。 10

【請求項18】

前記構成部品の面内方向熱伝導率が、少なくとも1.5W/m·K(1.5W/m·K)、好ましくは少なくとも1.8W/m·K(1.8W/m·K)、より好ましくは少なくとも2.2W/m·K(2.2W/m·K)、及び特に好ましくは少なくとも2.7W/m·K(2.7W/m·K)であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4にしたがって、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、請求項11~17のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項19】

前記窒化ホウ素の割合が、前記窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも5体積%、好ましくは少なくとも10体積%、より好ましくは少なくとも20体積%、特に好ましくは少なくとも30体積%である、請求項11~18のいずれか一項に記載の構成部品。 20

【請求項20】

窒化ホウ素とは異なり、熱伝導率を上昇させる少なくとも一つの充填剤を含む、請求項11~19のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項21】

前記窒化ホウ素とは異なる充填剤が、好ましくはアルミニウム、ケイ素、チタン、銅、鉄、及びブロンズ粉末、並びにそれらの混合物からなる群から選択される金属粉末であるか、前記窒化ホウ素とは異なる充填剤が、黒鉛、膨張黒鉛、グラフェン若しくはカーボンブラックの形態の炭素であり、特に好ましくは膨張黒鉛であるか、又は、前記窒化ホウ素とは異なる充填剤が、酸化物、窒化物、若しくは炭化物であり、好ましくは、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、二酸化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素及びこれらの混合物を含む群から選択され、特に好ましくは、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム及び/若しくは窒化アルミニウムを含む群から選択されるか、又は、前記窒化ホウ素とは異なる充填剤が、鉱物充填剤であり、好ましくは、アルミノケイ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム(2MgO·SiO₂)、アルミニ酸マグネシウム(MgO·Al₂O₃)、ブルーサイト(水酸化マグネシウム、Mg(OH)₂)、石英、クリストバライト、及びそれらの混合物からなる群から選択される。 30

請求項20に記載の構成部品。

【請求項22】

前記窒化ホウ素と、前記窒化ホウ素とは異なる前記熱伝導性充填剤との総割合が、いずれの場合も前記ポリマー/窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも20体積%、好ましくは少なくとも30体積%である、請求項20又は21に記載の構成部品。

【請求項23】

ガラス纖維を含み、前記ガラス纖維の割合が好ましくは5~40体積%である、請求項11~22のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項24】

前記構成部品の少なくとも一部分上の、前記構成成分の壁厚が、最大2mmである、請求項11~23のいずれか一項に記載の構成部品。 50

【請求項 25】

請求項 10～24 のいずれか一項に記載の構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物であって、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物が、熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含む、ポリマー／窒化ホウ素化合物。

【請求項 26】

被冷却構成部品又はアセンブリを、好ましくは電子構成部品又はアセンブリを放熱させるための、請求項 10～24 のいずれか一項に記載の構成部品の使用。

【発明の詳細な説明】**【背景技術】**

10

【0001】

本発明は、高い平面貫通方向熱伝導率 (through-plane thermal conductivity) を有する小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を使用したポリマー化合物の熱可塑加工によって生成される構成部品、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物、そのような構成部品を生成するための方法及び放熱のためのそのような構成部品の使用に関する。

【0002】

熱可塑加工可能なプラスチックは、多種多様な用途に使用される。その目的のために、ベースポリマーの特性は、しばしば、追加成分との配合によって変更され、それにより各用途にカスタマイズされる。

20

【0003】

例えば、有機、鉱物、セラミック、ガラス、及び金属の充填剤を、ポリマーマトリックスと配合するための追加成分として使用することができる。充填剤は、例えば、塊状、球状、小板形状、纖維状の粒子、又は、不規則形態を有する粒子として存在してよい。追加成分は、例えば、力学的若しくは電気的性質、熱膨張係数又は密度を変更するか、或いは熱伝導率を上昇させるために使用することができる。

【0004】

配合中、ポリマー及び追加成分からなる混合された材料が形成され、これは典型的には、顆粒の形態で蓄積し、成形プロセスにおいて更に加工される。構成部品を形成するための成形工程は、好ましくは、射出成形によって実施される。

30

【0005】

熱伝導性ポリマーベースの混合材料を生成するために、熱伝導性充填剤は、多く場合は熱伝導性が不十分な熱可塑性マトリックス中にのみ導入されることが多い。六方晶窒化ホウ素は、小板形状の粒子形態を有する熱伝導性の高い充填剤であり、熱伝導性ポリマー／窒化ホウ素混合材料（ポリマー／窒化ホウ素化合物）を生成するために使用され得る。

【0006】

熱可塑加工可能なポリマーを充填剤と配合するとき、通常は押出成形機を使用する。例えば、スクリューが材料を移動させることに加えて更なる機能を担う、二軸押出機を用いる。それぞれの用途に応じて、様々な実施形態では、押出成形機の異なるゾーンにおいて、移送要素、混合要素、例えば、捏和ブロックなどの剪断要素、及び、逆流要素を使用してよい。混合要素及び剪断要素は、ポリマー溶融物及び充填剤の良好な混合及び均質化を確実にする。

40

【0007】

充填剤は、メインホッパーから、ただしサイドフィーダーからも、ポリマーと共に供給できる。充填剤が剪断の影響を受けやすい場合、サイドフィーダーから充填剤を追加することが特に重要である。ポリマー顆粒を、メインフィーダーから押出成形機のフィードゾーン内に投入し、続いて、高圧強剪断下で融解する。剪断の影響を受けやすい充填剤を、サイドフィーダーから予め融解したポリマーに加える。例えば、力学的補強用充填剤として使用され得るガラス纖維は、配合プロセスの後期段階において最低限の剪断下でサイドフィーダーに加える。

50

【0008】

剪断の影響をより受けにくい充填剤は、追加のサイドフィーダーからの供給中又はポリマーと共にメインフィーダーからの供給中の初期の段階で既に、追加のサイドフィーダーを介して加えることができる。剪断の影響をより受けにくい充填剤、又は、完全に均質化する必要がある充填剤、例えば顔料などは、それらが添加された時点から押出成形機中により長く留まり、押出成形機中で下流にある均質化及び剪断エリアを全て通過する。

【0009】

例えば、スクリュー速度及び温度などの選択した配合パラメータに応じて、剪断の影響を受けやすい充填剤は、分解又は部分分解を受ける場合がある。ガラス纖維の場合、分解とは、ガラス纖維の粉碎、及びそれと関連した、ガラス纖維化合物からなる射出成型部品の力学的性質の低下を表す。

10

【0010】

押出成形機の末端で、化合物は、ストランドの形態のポリマー溶融物としてノズルを通って押出成形機を離れる。ストランドが冷却及び固化した後、造粒機は、成形プロセスにおいて更に加工することを目的とした化合物顆粒を生成する。

【0011】

未充填ポリマー顆粒、及び更には、ポリマーと充填剤からなる化合物顆粒の成形プロセスの1つは、射出成形である。ポリマー顆粒又は化合物顆粒は、射出成形機において再溶融され、高圧下で金型に充填される。ここで、ポリマー溶融物又は化合物溶融物は固化し、射出成形された構成部品を取り出すことができる。

20

【0012】

射出成形では、成形に関してデザインの自由度が高く、多くの機能を担い得る複雑な構成部品を射出成形することができる。充填剤を使用して、ポリマーは、果たすべき各用途及び機能に適合される。

【0013】

化合物中にガラス纖維を用いると、力学的に高い応力に耐え得るプラスチック構成部品を生成できるようになる。射出成型された完成部品の引張強度は、ポリマー溶融物が形成されるときに金型に充填される方向において最も高い。ガラス纖維は、射出成型プロセス中に強く配向される。この配向のために、射出成形された構成部品における材料特性、例えば力学的性質は異方性である。

30

【0014】

熱伝導性ポリマー／窒化ホウ素化合物の生成及びそれらの構成部品への加工において、多くの影響因子が、熱伝導率結果に顕著に影響することが示されている。これら影響因子としては、配合工程、成形工程、試料の形状、試料の延伸、及び使用される測定方法が挙げられる。

【0015】

配合中、例えば、往復式混練機（Buss混練機）、一軸押出機、及び二軸押出機が使用され得る。機器の設計及び／又はプロセスパラメータによって、激しい配合か又は穏やかな配合に調整することができる。比較的激しい配合に調節するために、例えば捏和ブロックのような分散要素と剪断要素の両方を使用することも可能であり、より穏やかな配合に調整するためには、例えば捏和ブロックを一度に投与してもよい。スクリュー速度を大きくすると、化合物及び化合物中の充填剤を比較的強く剪断することにつながり、一方スクリュー速度を小さくすると、化合物及び化合物中の充填剤を比較的弱く剪断することにつながる。

40

【0016】

ポリマーを窒化ホウ素粉末、例えば、噴霧乾燥された窒化ホウ素粉末と配合して、ポリマー／窒化ホウ素化合物を形成する場合、30体積%の窒化ホウ素をポリアミド（PA6）に添加すると、強力な混合及び剪断並びに充填剤の良好な分散を伴う激しい配合が、化合物の比較的良好な力学的性質をもたらすが、一方で熱伝導率は比較的低いことが示されている。反対に、低い剪断及び不十分な分散を伴う穏やかな配合は、比較的良好な熱伝

50

導率及び不十分な力学的性質を有する化合物をもたらす。

【0017】

その後の成形もまた、熱伝導率結果に影響する。激しい配合を用いて生成されるポリマー／窒化ホウ素化合物試料が、高温圧縮によって生成される場合、平面貫通方向熱伝導率は、射出成形によって同じポリマー／窒化ホウ素化合物から生成される引張試験片よりも40%高い。高温圧縮された試料の平面貫通方向熱伝導率の値は、2mmの薄い射出成形プレート上で測定されるよりも最大100%高い。2mmの厚みを有する薄いプレートが、穏やかな配合によって生成されたポリマー／窒化ホウ素化合物を用いて射出成形によって生成される場合、平面貫通方向熱伝導率は、激しい配合によって生成された化合物から射出成形された2mmのプレートよりも最大15%高い。

10

【0018】

更に、試料形態も熱伝導率結果に影響する。4mmの厚みを有する射出成形された引張試験片上で測定される平面貫通方向熱伝導率は、射出成形された2mm厚のプレート上で測定された平面貫通方向熱伝導率よりも最大50%高い。

【0019】

射出成形では、試料の延伸タイプも熱伝導率の結果に影響する。例えば、激しい配合及び2mmの薄いプレートの射出成形において、熱伝導率は、ゲート付近、試料の中央部、及びゲートから離れた部分において大きく異なり得ることが示されている。例えば、充填剤を多く含む化合物の熱伝導率は、試料の延伸位置によって20%程度ずれる場合がある。激しい配合及び引張試験片の射出成形において、第1試料肩部の直後にゲート近くで採取された試料の熱伝導率は、第2試料肩部の前にゲートから離れた位置で採取された試料から10%程度ずれることがある。

20

【0020】

最後に、測定方法もまた、平面貫通方向熱伝導率結果に影響する。平面貫通方向熱伝導率が、4mm厚の射出成形プレート上でホットディスク法を使用して測定される場合、等方性充填剤における測定結果は、2mmの薄い射出成形プレート上でレーザーフラッシュ法を使用する測定値よりも約15～20%高く、更に、ホットディスク法を使用する小板形状の充填剤では、最大50%高い熱伝導率が測定される。

【0021】

これらの理由のため、熱伝導率測定の結果は、化合物の生成、化合物顆粒の成形、試料の延伸、及び熱伝導率測定が、同一の条件下で行われる場合のみ、直接比較することができる。

30

【0022】

一次粒子として存在し、一次粒子の凝集体としては存在しない六方晶窒化ホウ素粉末粒子は、異方性熱伝導率を有する。十分に結晶化した窒化ホウ素粉末は、小板形状の粒子形態を有する。窒化ホウ素小板は、典型的には、小板の厚みに対する小板直径の比率であるアスペクト比が10を超える。小板を通過する方向の熱伝導率は、小板の面内方向の熱伝導率と比較して低い。

【0023】

化合物が、熱可塑性ポリマー及び小板形状の一次窒化ホウ素粒子の形態の窒化ホウ素粉末から生成される場合、一次窒化ホウ素粒子は、主に微分散形態で存在する。そのような化合物が射出成形される場合、特に薄肉構成部品中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子の大部分自体は、射出成形金型の表面に対して平行な平面及び構成部品の表面に対して平行な平面に整列する。小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列は、射出成形された構成部品における、金型の壁に近い領域とそこから大きく離れた領域までの間の剪断速度により生じる。射出成形された構成部品における小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列は、特性、具体的には熱伝導率の異方性をもたらす。充填剤の充填量が30体積%において、壁厚さが3以下又は2mm以下の薄肉構成部品におけるポリマー化合物の流れ方向の熱伝導率（面内方向（in-plane））は、一般に4倍以上高く、構成部品の壁を通過する方向（平面貫通方向）の熱伝導率は、最大7倍以上高い。熱可塑性の射出成形された構成部品の熱伝導率

40

50

における異方性は、多くの用途において不利である。例えば、筐体壁を通る放熱は、低い平面貫通方向熱伝導率のとき、同じように低い。筐体壁内では急速な熱の分散が可能であるが、筐体壁を通過する放熱はないため、射出成形筐体を使用する用途において、この特性は不利である。特に熱が二次元面積の至る所で消散されるべきであるこれらの用途に対しては、平面貫通方向熱伝導率は可能な限り高いことが望ましい。

【0024】

前記化合物中の窒化ホウ素粉末の充填剤投与量が50体積%未満の場合、2mm以下の壁厚を有する射出成形された薄肉構成部品の平面貫通方向熱伝導率の値は、通常1W/m·K(1°W/m·°C)以下である。

【0025】

窒化ホウ素もまた、小板形状の一次粒子の凝集体の形態で、熱熱伝導性充填剤としてポリマー中で使用することができる。例えば、噴霧乾燥、均衡圧縮、又は圧縮及びその後の焼結によって、窒化ホウ素凝集体を生成するための異なる方法が、米国特許出願公開第2006/0127422A1号、国際公開特許第03/013845A1号、米国特許第6,048,511号、欧州特許第0939066A1号、米国特許出願公開第2002/0006373A1号、米国特許出願公開第2004/0208812A1号、国際公開特許第2005/021428A1号、米国特許第5,854,155号、及び米国特許第6,096,671号に記載されている。

【0026】

ドイツ特許出願公開第102010050900A1号は、窒化ホウ素小板が凝集体中で優先的配向を有している、表面の粗い窒化ホウ素凝集体を生成するための方法を記載している。

【0027】

熱可塑性ポリマー化合物は、例えば射出成型機における射出成型により生成される。この方法では、化合物顆粒は射出成型機に充填され、溶融されて、高圧下で射出成型金型に充填される。例えば充填剤を含まない低粘性ポリアミド6(例えば、Schulamid 6 NV12、A. Schulman(Kerpen, Germany)製)における典型的な射出成型パラメータは、化合物溶融物の溶融温度250~270、射出成型金型の金型温度60~90、及び射出速度250mm/sである。

【0028】

熱可塑性ポリマーの熱伝導率は、典型的に0.3W/m·K(0.3W/m·°C)未満と非常に低い。ガラス纖維など、熱伝導率の不十分な充填剤の添加に伴い、熱可塑性化合物の熱伝導率もほぼ同様に低いか又は僅かに高い。低熱伝導率のポリマー溶融物の固化は金型の充填中にゆっくりと開始して充填完了後も継続するため、サイクル時間を短縮しつつ経済的な生成を確実にするように射出成型時に低い金型温度を用いる。低い金型温度は、典型的に、構成要素中の欠陥を防いで長い流路を達成するように、高い射出速度と組み合わせて用いられる。射出成型中の低い金型温度により、金型の壁近くの領域では、金型の充填中に熱伝導率の低いガラス纖維を含有する化合物中において纖維が流れ方向に強く配向するほど、結果として引張強度が高くなる。

【0029】

低い熱伝導率を有する化合物の射出成型パラメータを最適化するために、典型的には、サイクル時間を長引かせないパラメータを選択することが好ましい。例えば、金型の充填中に問題があるか又は射出成形された部品の品質に問題がある場合、射出速度、射出圧及び化合物溶融物の溶融温度を高めて、射出成型金型の金型温度は低く保つことが好ましい。このように、高品質の射出成型部品を短いサイクル時間で生成することが可能である。

【0030】

窒化ホウ素凝集体を含有する中程度の熱伝導率及び高い熱伝導率のポリマー/窒化ホウ素化合物がこれら標準的な射出成型パラメータ(高い射出速度、高い溶融温度、低い金型温度)を用いて生成される場合、比較的低い熱伝導率、具体的には低い平面貫通方向熱伝導率を有する構成部品が得られる。ガラス纖維を含有する中程度の熱伝導率及び高い熱伝

10

20

30

40

50

導率のポリマー／窒化ホウ素化合物では、標準的な射出成型パラメータを用いて比較的低い強度が得られる。この場合、 $1 \sim 2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ ($2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$) 未満の平面貫通方向熱伝導率は中程度の熱伝導率であると考えられ、 $2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ ($2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$) 以上の平面貫通方向熱伝導率は高い熱伝導率と考えられる。

【0031】

窒化ホウ素凝集体を有するポリマー／窒化ホウ素化合物では、 200 mm/s を超える高い射出成型速度は窒化ホウ素凝集体の強い剪断を引き起こし、ひいては化合物マトリックス中において窒化ホウ素凝集体の凝集体断片への分解或いは一次窒化ホウ素粒子への分解を引き起こす。このことが射出成型される構成部品のあらゆる空間方向における熱伝導率を低下させる。高充填で中程度の熱伝導率及び高い熱伝導率の化合物では、ガラス纖維も同様に高い射出速度で強く剪断されて損傷する。更に、低い射出成型金型温度を使用することも特に不利であり、その上、剪断の影響を受けやすい充填剤の分解をも引き起こす。射出成型機は 150°C を超える金型温度に到達できない場合が多い。更に、実際に到達した金型温度は設定された目標温度よりもかなり低いことがある。そのため、金型温度を試験するために、金型に充填されるときにポリマー又はポリマー化合物と接触している金型表面で測定する必要がある。

10

【0032】

中程度の熱伝導率、特に高い熱伝導率の化合物の射出成型では、標準的な射出成型パラメータの使用により、明確に展開された流線が構成部品表面上に生じる。これは、具体的にはファウンテンフローによるものであって、ポリマー溶融物が成形部品のコア領域から表面に向かって繰り返し再溶融すること表す。典型的な金型温度を使用する中程度の熱伝導率、特に高い熱伝導率の化合物の射出成型では、ポリマー化合物は急激に固化し、したがって流線形成の発生頻度が高い。場合により、既に固化した表面断片が折り重なって構成部品の方へ突出していることに気付くこともあり得る。

20

【0033】

2つの既に固化した表面断片が接触した場合、高い射出圧力及び高い保持圧力であってもそれ以上結合しない可能性がある。これにより、力学的性質が不十分でかつ表面品質も不十分な射出成形された部品が生じる。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

30

【0034】

したがって、本発明によって対処される目的は、先行技術の不利益を克服しながら、薄肉構成部品において、高水準のプロセス信頼性で、高い平面貫通方向熱伝導率の値及び高い面内方向熱伝導率の値を得ることができる熱可塑加工可能なポリマー／窒化ホウ素化合物を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0035】

上述の目的は、請求項1に記載の方法、請求項10及び11に記載の構成部品、請求項25に記載のポリマー／窒化ホウ素化合物、及び請求項26に記載の構成部品の使用によって達成される。前記方法及び構成部品の好ましい又は特に機能的な実施形態は、従属請求項2～9及び12～24に明記されている。

40

【0036】

このため、本発明の主題は、射出成型機において射出金型を用いポリマー／窒化ホウ素化合物を使用する射出成型工程を含む、構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 mm の壁厚を有する構成部品を生成する方法であって、ポリマー／窒化ホウ素化合物が熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、充填剤が小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含み、射出成型中の射出速度が最大 200 mm/s である、方法である。

【0037】

本発明の更なる主題は、前記方法により生成可能な、構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 mm の壁厚を有する構成部品である。

50

【 0 0 3 8 】

本発明の更なる主題は、構成部品の少なくとも一部分上に最大3mmの壁厚を有する構成部品であって、前記構成部品が、ポリマー／窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成され、前記構成部品が、熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含む、構成部品である。

【 0 0 3 9 】

本発明の更なる主題は、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物であり、このポリマー／窒化ホウ素化合物は、熱可塑加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、この充填剤は、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含む、ポリマー／窒化ホウ素化合物である。

10

【 0 0 4 0 】

本発明の更なる主題は、被冷却構成部品又はアセンブリを、好ましくは電子構成部品又はアセンブリを放熱するためのそのような構成部品の使用である。

【 0 0 4 1 】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物は、ポリマー／窒化ホウ素化合物から作製される射出成形された薄壁構成部品の低い平面貫通方向熱伝導率の不利益を克服することができる。

【 0 0 4 2 】

平面貫通方向熱伝導率とは、平面貫通方向で、つまり、プレート平面に対して垂直に測定される熱伝導率である。面内方向熱伝導率とは、面内方向に、すなわち、プレート面に沿って測定される熱伝導率である。

20

【 0 0 4 3 】

驚くべきことに、射出成形された薄肉構成部品の平面貫通方向熱伝導率は、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物を用いて著しく上昇させることができ、同時に良好な面内方向熱伝導率も維持されていることが示されている。

【 0 0 4 4 】

熱伝導性充填剤の充填剤投与量が高すぎないポリマー／窒化ホウ素化合物が、本発明による構成部品の生成のために使用されてもよいことは更に驚くべきことである。そのため、充填剤を含むポリマー材料の特性を更に調整するためには、大部分の標準的な熱可塑性ポリマーにおいては50体積%以下、そしてTPEポリマー（熱可塑性エラストマー）においては70体積%以下の総充填剤投与量が見込まれるように、更なる添加剤及び充填剤、例えばガラス纖維を添加して力学的安定性を高めることも可能である。

30

【 0 0 4 5 】

本発明の方法を用いると、ポリマー／窒化ホウ素化合物からなる射出成形された薄肉構成部品において、標準的な射出成型パラメータを使用して生成された構成部品よりもかなり高い平面貫通方向熱伝導率を得ることができ、流線の展開が大幅に軽減されて、ほぼ欠陥のない表面が形成される。

【 0 0 4 6 】

更に驚くことに、ガラス纖維を含有する熱導電性化合物を使用するときに力学的性質の向上につながる射出成型パラメータが見つかった。本発明の方法は、ガラス纖維の剪断を軽減して、有利には流れ方向におけるガラス纖維の配向を可能にする。本発明による製造方法を使用すると、標準的な射出成型パラメータを使用して生成された試料に比べて、射出成形された試料の引張強度が最大15%以上向上した。

40

【 0 0 4 7 】

熱可塑的な射出成型では、金型に充填されたときに、射出成形された部品内に層が形成される。典型的に、金型を充填している間は既に固化したエッジ層が存在しているため、溶融物はフローフロント全体を超えて金型に充填されない。むしろ、溶融物は固化したエッジゾーンとフローフロントの間を流動する。更に、剪断速度は、壁に近接した領域から壁から離れた領域までの間に存在しており、剪断速度は壁に近接した未固化の領域において最も高い。ここでは、溶融物はコア領域よりもゆっくりと金型へ向かって流動する。壁

50

に最も近接した領域の剪断速度により、例えば纖維又は小板などの異方性充填剤は、金型に充填している間、壁表面と平行に配向される。壁に近接した剪断速度の範囲内では、ガラス纖維自体は流れ方向に平行に配向する。小板形状の窒化ホウ素粒子自体は、壁の表面に平行な面方向に配向する。壁に近接した領域の近傍にはコア領域が存在し、これは壁に近接した領域間の中央に位置する。コア領域では、纖維及び小板自体は、主な流れ方向を横断して配向する。

【0048】

各層の特徴的な展開及び各層の配向程度は、熱伝導性及び強度に関する構成部品の特性の異方性に影響を与える。例えば、同一の小板形状の窒化ホウ素粒子を含有するポリマー／窒化ホウ素化合物における極めて顕著なコア領域は、高い平面貫通方向熱伝導率及び比較的低い面内方向熱伝導率を生じさせる。それに加えて、ガラス纖維を含有するポリマー／窒化ホウ素化合物の強度は、それほど顕著ではないコア領域よりも幾分低い。これに対して、纖維の長手配向が主な流れ方向に平行であるか又は、小板形状の熱電導性粒子の場合、壁表面に平行な面方向である、極めて顕著なエッジ領域は、主な流れ方向において比較的高い引張強度と、比較的高い面内方向熱伝導率と、を生じさせる。両方の効果、すなわち高い面内方向熱伝導率及び高い引張強度は、小板形状の熱電導性粒子をガラス纖維と組み合わせて有する化合物内で同時に生じる場合がある。

10

【0049】

小板形状の窒化ホウ素粒子を有するポリマー／窒化ホウ素化合物からなる本発明の構成部品の場合、驚くことに、中間層の厚さが増加せず、むしろ射出速度の上昇につれて低下することが分かっている。これに対して、低い射出速度は、厚い中間層の発展をもたらす。そのため、低い射出速度を使用すると、本発明の構成部品内に厚い中間層が生成され、その結果、平面貫通方向熱伝導率が幾分増加する可能性がある。

20

【0050】

驚くことに、ポリマー／窒化ホウ素化合物からなる本発明の構成部品では、中間層の厚さは射出成型金型の金型温度を上げると増加しないことが分かったが、当業者は、むしろ中間層の厚さが低下すると期待していた。意外にも、中間層の厚さは金型温度を下げると増加する。こうして、比較的低い金型温度で平面貫通方向熱伝導率の大幅な増加が検出された。

30

【0051】

驚くことに、ガラス纖維を含有するポリマー／窒化ホウ素化合物において約120mm／秒の中程度の射出速度及び高い金型温度を使用すると、高強度が得られることも分かっている。高い金型温度では中間層が更に顕著となり、そのため引張強度が低下すると予想されていたことから、このことは予期せぬことである。

【図面の簡単な説明】

【0052】

【図1】寸法が $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ であり、ゲート、並びに面内方向及び平面貫通方向を有する薄い射出成形プレートを示し、これによって熱伝導率値（面内方向熱伝導率及び平面貫通方向熱伝導率）が計算される。

40

【図2a】平面貫通方向及び面内方向の熱伝導率を測定するために使用した試料を示す。図2aは、図1の射出成形プレートの中央部から調製され、平面貫通方向熱伝導率の測定に使用された、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料を示す。図2bは、面内方向熱伝導率測定用試料の作成を示す。初めに、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料からなるプレート積層体を、瞬間接着剤を用いて接着することによって作製し、このとき、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形プレートからなる当該試料が作成された。プレート積層体から、射出成形プレートの平面貫通方向に平行に、かつ、流れ方向に垂直に、試料を調製する。この試料において、面内方向熱伝導率を決定する。

【図2b】平面貫通方向及び面内方向の熱伝導率を測定するために使用した試料を示す。図2aは、図1の射出成形プレートの中央部から調製され、平面貫通方向熱伝導率の測定に使用された、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料を示す。図2bは、面内方向熱

50

伝導率測定用試料の作成を示す。初めに、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料からなるプレート積層体を、瞬間接着剤を用いて接着することによって作製し、このとき、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形プレートからなる当該試料が作成された。プレート積層体から、射出成形プレートの平面貫通方向に平行に、かつ、流れ方向に垂直に、試料を調製する。この試料において、面内方向熱伝導率を決定する。

【図3a】実施例及び参考例で得た本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物で使用された窒化ホウ素凝集体のSEM像を示す。図3aは、 $500 \mu\text{m}$ 未満のふるい分級物中の窒化ホウ素凝集体の概観画像を示す。図3bは、厚さ $30 \mu\text{m}$ の凝集体の破断面を示す。

【図3b】実施例及び参考例で得た本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物で使用された窒化ホウ素凝集体のSEM像を示す。図3aは、 $500 \mu\text{m}$ 未満のふるい分級物中の窒化ホウ素凝集体の概観画像を示す。図3bは、厚さ $30 \mu\text{m}$ の凝集体の破断面を示す。

【図4】例えばガラス纖維などの纖維状纖維を含有するポリマー／窒化ホウ素化合物からなる射出成型された薄いプレートの3層モデルを示す。壁に近接した2つの層(a)では、纖維が主な流れ方向に平行に整列している。壁に近接した前記層が極めて顕著な場合、流れ方向に高い引張強度が得られる可能性がある。中間層(b)では、纖維が主な流れ方向を横断して配向している。中間層は、主な流れ方向の試料の強度にほとんど寄与しない。

【図5】例えば表面の粗い鱗片状の窒化ホウ素凝集体などの小板形状の熱伝導性の高い充填剤を含有する化合物からなる射出成型された薄いプレートの3層モデルを示す。壁に近接した2つの層(a)では、小板が主な流れ方向に平行に、かつ構成部品表面に平行な平面方向に整列している。前記層が極めて顕著である場合、高い面内方向熱伝導率が得られる可能性がある。中間層(b)では、小板が主な流れ方向に垂直に配向している。中間層が極めて顕著な場合、高い平面貫通方向熱伝導率が得られる可能性がある。

【図6a】実施例8の 2 mm の薄い射出成型されたプレートの研磨断面の光学顕微鏡画像を示す。射出成型金型を充填している間のポリマー化合物の主な流れ方向は、左から右へ向かって進む。試料のコア領域における鱗片状の窒化ホウ素凝集体の大部分は、プレート表面と実質上垂直にかつ主な流れ方向と垂直に配向している。この配列の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を有するコア領域は非常に広範で、一部は構成部品の表面にまで及んでいる。コア領域は構成部品の体積の70%超を占める。試料全体では、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の70%超は構成部品の表面に向かって少なくとも 45° の角度で配向している。50体積%の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を含有するPA6試料の平面貫通方向熱伝導率は $4.1 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ ($4.1 \text{ W/m}\cdot\text{K}$)である。

【図6b】図6aの鱗片状の窒化ホウ素凝集体の配向の略図である。

【図7a】実施例11の 2 mm の薄い射出成型されたプレートの研磨断面の光学顕微鏡画像を示す。射出成型金型を充填している間のポリマー化合物の主な流れ方向は、左から右へ向かって進む。試料のコア領域における鱗片状の窒化ホウ素凝集体の大部分は、プレート表面と実質上垂直にかつ主な流れ方向と垂直に配向している。コア領域は構成部品の体積の約50%を占める。試料全体では、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の50%超は構成部品の表面に向かって少なくとも 45° の角度で配向している。50体積%鱗片状の窒化ホウ素凝集体を含有するPA6試料の平面貫通方向熱伝導率は $3.3 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ ($3.3 \text{ W/m}\cdot\text{K}$)である。

【図7b】図7aの鱗片状の窒化ホウ素凝集体の配向の略図である。

【図8a】実施例12の 2 mm の薄い射出成型されたプレートの研磨断面の光学顕微鏡画像を示す。射出成型金型を充填している間のポリマー化合物の主な流れ方向は、左から右へ向かって進む。試料のコア領域における鱗片状の窒化ホウ素凝集体の一部は、プレート表面と垂直にかつ主な流れ方向と垂直に配向している。コア領域は比較的狭く、構成部品の体積の約10～最大25%に相当する。試料全体では、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の70%超は構成部品の表面に向かって最大 45° の角度で配向している。50体積%の鱗片

10

20

30

40

50

状の窒化ホウ素凝集体を含有するP A 6 試料の平面貫通方向熱伝導率は3 . 0 W / m · K (3 . 0 W / m · °)である。

【図8 b】図8 aの鱗片状の窒化ホウ素凝集体の配向の略図を示す。

【0053】

既に上で説明したように、平面貫通方向熱伝導率は、平面貫通方向に、すなわち、プレート面に対して垂直に測定された熱伝導率である。面内方向熱伝導率は、面内方向に、すなわち、プレート面に沿って測定された熱伝導率である。

【発明を実施するための形態】

【0054】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率は、好みしくは少なくとも1 W / m · K (1 W / m · °)、より好みしくは少なくとも1 . 2 W / m · K (1 . 2 ° W / m · °)、更により好みしくは少なくとも1 . 5 W / m · K (1 . 5 W / m · °)、及び特に好みしくは少なくとも1 . 8 W / m · K (1 . 8 ° W / m · °)である。熱伝導率は、2 mmの厚さを有する円盤形状に射出成形された試料において、D I N E N I S O 2 2 0 0 7 - 4 にしたがって測定する。

【0055】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の面内方向熱伝導率は、好みしくは少なくとも1 . 5 W / m · K (1 . 5 ° W / m · °)、より好みしくは少なくとも1 . 8 W / m · K (1 . 8 ° W / m · °)、更により好みしくは少なくとも2 . 2 W / m · K (2 . 2 ° W / m · °)、及び特に好みしくは少なくとも2 . 7 W / m · K (2 . 7 ° W / m · °)である。

【0056】

面内方向熱伝導率を測定するために、2 mmの厚みを有する円盤形状に射出成形された試料は、一方を他方の上に積み重ねて、互いに接着されている。このように調製したプレート積層体から、射出成形プレートの平面貫通方向に平行にかつ流れ方向に垂直に、 $2 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の寸法を有する2 mmの薄い試料を調製する。面内方向熱伝導率は、このように調製した2 mm厚の試料において、D I N E N I S O 2 2 0 0 7 - 4 にしたがって測定する。

【0057】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率は、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱伝導率よりも、好みしくは少なくとも0 . 8 W / m · K (0 . 8 ° W / m · °)だけ、より好みしくは少なくとも1 W / m · K (1 ° W / m · °)だけ、更により好みしくは少なくとも1 . 3 W / m · K (1 . 3 ° W / m · °)だけ、及び特に好みしくは少なくとも1 . 6 W / m · K (1 . 6 ° W / m · °)だけ高い。

【0058】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の面内方向熱伝導率は、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱伝導率よりも、好みしくは少なくとも1 . 3 W / m · K (1 . 3 ° W / m · °)だけ、より好みしくは少なくとも1 . 6 W / m · K (1 . 6 ° W / m · °)だけ、更により好みしくは少なくとも2 . 0 W / m · K (2 . 0 ° W / m · °)だけ、及び特に好みしくは少なくとも2 . 5 W / m · K (2 . 5 ° W / m · °)だけ高い。

【0059】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子又は窒化ホウ素凝集体の形態の窒化ホウ素の割合は、ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好みしくは少なくとも5体積%、より好みしくは少なくとも10体積%、更により好みしくは少なくとも20体積%、及び特に好みしくは少なくとも30体積%である。

【0060】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の小板形状の六方晶窒化ホウ

10

20

30

40

50

素粒子又は窒化ホウ素凝集体の形態の窒化ホウ素の割合は、ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは最大70体積%、より好ましくは最大60体積%、及び特に好ましくは最大50体積%である。

【0061】

熱可塑加工可能なポリマーが、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のためのポリマーとして使用される。これらは、具体的には、熱可塑性材料であるポリアミド(PA)、ポリフェニレンサルファイド(PPS)、ポリカーボネート(PC)、ポリプロピレン(PP)、熱可塑性エラストマー(TPE)、熱可塑性ポリウレタンエラストマー(TPU)、及びポリエーテルエーテルケトン(PEEK)、液晶ポリマー(LCP)、並びにポリオキシメチレン(POM)である。熱可塑的に加工することができるデュロプラスチック成型材料も、ポリマーとして使用され得る。更に、熱可塑的に加工することができるゴム、例えば合成ゴムも使用され得る。

10

【0062】

本発明の構成成分及びポリマー／窒化ホウ素化合物は、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子を含有しており、凝集していない一次粒子として存在していても、窒化ホウ素凝集体の形態であってもよい。十分に結晶化された六方晶窒化ホウ素粉末が、凝集していない小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子として使用される。十分に結晶化された六方晶窒化ホウ素粉末の平均粒径 d_{50} は、好ましくは3～50μmであるが、更に大きな小板を使用してもよい。更には、粒径の異なる様々な六方晶窒化ホウ素粉末の混合物を用いることもできる。窒化ホウ素粉末の平均粒径(d_{50})の測定は典型的に、レーザー回折(湿式測定法、Mastersizer 2000、Malvern)を用いて行う。凝集していない窒化ホウ素粒子を使用する場合、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子のアスペクト比、すなわち小板の直径と小板の厚さとの比は、好ましくは10以上である。 B_2O_3 を有さない窒化ホウ素粉末及び最大0.5重量%の低 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよいが、最大10重量%以上の高 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよい。粉末化又は造粒窒化ホウ素の混合物も使用可能である。

20

【0063】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の好ましい実施形態では、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子が、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の形態で使用される。これらの窒化ホウ素凝集体は、互いに凝集されて鱗様の窒化ホウ素凝集体を形成する、小板形状の六方晶一次窒化ホウ素粒子を含む凝集体である。これらの窒化ホウ素凝集体は、鱗片状の窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素薄片とも称される。これらの窒化ホウ素薄片は、凝集していない小板形状の一次窒化ホウ素粒子とは区別されるべきであり、しばしば、英字文献においては「薄片状窒化ホウ素粒子(faky boron nitride particles)」と称される。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の構造は、多くの個々の窒化ホウ素小板から構成される。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに向かって無作為に配向されていない。鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を含み、その小板平面は、互いに対して平行に整列している。小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、その一次窒化ホウ素粒子の小板平面が互いに実質的に平行に整列するように一緒に凝集されるのが好ましい。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに対して無作為に配向されていないことから、鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、異方性特性を有する。

30

【0064】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中での小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列の度合いは、組織指数で特徴付けることができる。完全な等方性整列の小板形状の一次窒化ホウ素粒子を有する、つまり、任意の特定の方向を優先することのない、六方晶窒化ホウ素(hBN)の組織指数は、1である。組織指数は、試料における配向の度合いと共に上昇する、つまり、より多くの小板形状の一次窒化ホウ素粒子が、互いに重ねられる、若しくは互いにそれらの基底面に平行に整列するか、又は一次窒化ホウ素粒子のより多くの小板平面が、互いに平行に整列する。本発明による構成部品に使用される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数は、好ましくは、2.0超、より好ましくは2.5以上、更によ

40

50

り好ましくは 3 . 0 以上、及び特に好ましくは 3 . 5 以上の値である。鱗片状の凝集体の組織指数は、5 . 0 以上、及び 1 0 . 0 以上の値を有してもよい。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数は、好ましくは 2 0 0 以下、より好ましくは 5 0 以下の値にある。組織指数は X 線回折法によって測定される。そのため、X 線回折図を測定することによって、(0 0 2) 回折反射強度と(1 0 0) 回折反射強度の比を決定し、それを、表面粗さのない理想的な h B N 試料の相当する比で除す。理想的な比は、J C P D S データから求めることができ、それは 7 . 2 9 である。

【 0 0 6 5 】

こうして、窒化ホウ素凝集体の組織指数(T I)は、次の式により算出することができる。
10

【 0 0 6 6 】

【 数 1 】

$$T I = \frac{I_{(002), \text{試料}} / I_{(100), \text{試料}}}{I_{(002), \text{理論上}} / I_{(100), \text{理論上}}} = \frac{I_{(002), \text{試料}} / I_{(100), \text{試料}}}{7.29}$$

つまり、窒化ホウ素凝集体の X 線回折図の(0 0 2)回折反射強度と(1 0 0)回折反射強度の比 $I_{(002)} / I_{(100)}$ を、7 . 2 9 の数で除する。窒化ホウ素凝集体の組織指数は、バルクの窒化ホウ素凝集体で測定される。測定は、2 0 で行われる。
20

【 0 0 6 7 】

組織指数が、約 3 . 5 cm² (鱗片状の凝集体の上面又は底面の面積に基づいて) の大きさを有する大きい鱗片状の個々の凝集体で決定される場合、1 0 0 以上及び最大約 5 0 0 の非常に高い組織指数の値が、得られ得る。大きい鱗片状の凝集体で測定されるこれらの値は、鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の一次粒子の非常に強い配置構造の証拠である。本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物に使用されることが好ましい鱗片状の窒化ホウ素凝集体上で組織指数を測定する場合、それは、既に上述された通り凝集体バルク上で行われ、X 線回折測定において、部分的に静的な配置構造が試料担体中に生じる。したがって、1 mm 以下の大きさを有するより小さい鱗片状の凝集体上で得られる組織指数値は、個々の鱗片状の凝集体中の対応する配向の一次粒子よりも常に低い。
30

【 0 0 6 8 】

本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物及び構成部品では、好ましく使用される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、平均凝集体直径(d₅₀)が 1 0 0 0 μm 、より好ましくは 5 0 0 μm 、更により好ましくは 3 0 0 μm 、及び特に好ましくは 2 0 0 μm である。本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物及び構成部品で使用される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の平均凝集体直径(d₅₀)は、好ましくは 2 0 μm 、より好ましくは 3 0 μm 、更により好ましくは 5 0 μm 、及び特に好ましくは 1 0 0 μm である。平均凝集体直径(d₅₀)は、レーザー回折(湿式測定法、M a s t e r s i z e r 2 0 0 0 、M a l v e r n)によって測定できる。平均凝集体直径は、凝集体生成に使用された一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも、少なくとも 2 倍大きく、好ましくは少なくとも 3 倍大きい。平均凝集体直径は、凝集体生成に使用された一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも、1 0 倍、又は 5 0 倍以上大きくてよい。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の一次粒子の平均粒径(d₅₀)は、5 0 μm 、好ましくは 3 0 μm 、より好ましくは 1 5 μm 、更により好ましくは 1 0 μm 、及び特に好ましくは 6 μm である。
40

【 0 0 6 9 】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚さは、5 0 0 μm 、好ましくは 2 0 0 μm 、より好ましくは 1 0 0 μm 、更により好ましくは 7 0 μm 、なにより好ましくは
50

50 μm、及び特に好ましくは35 μmである。厚さは、少なくとも1 μm、より好ましくは2 μm、更により好ましくは3 μm、及び特に好ましくは5 μmである。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚さは、デジタル精密計器又は走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて測定できる。

【0070】

アスペクト比、すなわち、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の凝集体厚さに対する凝集体直径の比は、走査型電子顕微鏡(SEM)像で凝集体の直径及び厚さを測定することによって判定できる。鱗片状の凝集体のアスペクト比は、1超の値、好ましくは2以上の値、より好ましくは3以上の値、及び特に好ましくは5以上の値を有する。

【0071】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、高密度の窒化ホウ素凝集体である。

【0072】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の個々の小板形状の一次窒化ホウ素粒子間には直接接触点が存在しており、その結果、一次窒化ホウ素粒子から構成される、窒化ホウ素凝集体中の連続した熱伝導経路を引き起こす。

【0073】

本発明による構成部品及びポリマー/窒化ホウ素化合物に使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体はそれらの上面及び底面に、粉碎によってではなく成形プロセスによって直接生成された表面を有する。これらの表面は、以後「成形表面」と称される。成形表面は、破断工程又は粉碎工程によって作製された、凝集体の粗い側面(破断面)とは対照的に比較的滑らかである。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の表面は、実質的に平坦(平面)であり、それらの上面及び底面は、互いに実質的に平行である。

【0074】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総表面積中の成形表面の割合は、平均で、丸い基部を有する小板又は鱗片形状と仮定すれば、少なくとも33%(凝集体の直径が、その高さと等しい場合)であり、四角い基部を有する小板形状又は鱗片形状と仮定すれば、同様に少なくとも33%(凝集体が立方体形状の場合)である。高アスペクト比を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の場合、総表面積中の成形表面の割合はかなり高く、アスペクト比が3.0超の凝集体の場合、典型的に60~95%であり、非常に大きな凝集体の場合、前記割合は更に高い場合がある。凝集体を丸めることにより又はふるい分け若しくはスクリーニングプロセスの結果として、総表面積中の成形表面の割合を下げるこどもできるが、その割合は一般に、常に少なくとも10%、好ましくは少なくとも20%である。

【0075】

総表面積中の成形表面の割合(ratio)は、SEM画像を分析することによって決定することができる。そのようにすることで、凝集体の直径及び厚みに対して計算される値を使用して、アスペクト比を決定することができる。これらの値から、総表面積中の成形表面の割合は、以下のように計算される。

$$\text{成形表面の割合} [\%] = ((2 \times \text{端面}) / \text{総表面積}) \times 100$$

式中、

$$\text{端面} = \text{凝集体直径} \times \text{凝集体直径}$$

$$\text{総表面積} = 2 \times \text{端面} + 4 \times \text{側面}$$

$$\text{側面} = \text{凝集体の厚み} \times \text{凝集体の直径}$$

【0076】

本発明による構成部品及びポリマー/窒化ホウ素化合物に使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、高い凝集安定性を呈する。ポリマーが窒化ホウ素充填剤と一緒に配合されるときに生じるもの、特に高充填剤投与量を有するポリマー等の、高度の凝集安定性を有する窒化ホウ素凝集体は、高剪断力の影響下であっても、部分的にしか一次粒子又は凝集体断片まで分解されない。本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物の有利な特性、特に異方性の割合は、部分的な分解であるにもかかわらず、維持される。

【0077】

10

20

30

40

50

レーザー粒度計によって凝集体の大きさを測定すると同時に、例えば、超音波実験で凝集体の安定性を試験することができるが、超音波の影響により凝集体は経時的に崩壊する。経時的な凝集体の大きさの変化によって凝集体の崩壊が記録され、凝集体の安定性に応じて様々な曲面が形成される。軟質の凝集体は、力学的により安定な凝集体よりも速く崩壊する。

【0078】

凝集安定性を測定するために、 $200\text{ }\mu\text{m}$ より小さい窒化ホウ素凝集体を分割し、 $<100\text{ }\mu\text{m}$ の微粉はふるい分けによって除去する。このように得られた $100\sim200\text{ }\mu\text{m}$ のふるい分級物について、レーザー粒度計（分散装置 Hydro 2000S を備えた Mastersizer 2000 (Malvern) (Herrenberg, Germany)）によって凝集安定性を求める。このため、湿潤剤を含む水溶液（ 10 L 蒸留水中にリンス液（G 530 Spulfix、BUZIL-Werk Wagner GmbH & Co. KG (Memmingen) 製） 2 mL と Imbentin（ポリエチレングリコールアルキルエーテル） 0.375 mL との混合液）を分散媒体として用いる。スナップ式キャップを有するバイアル（ 8 mL ）中で、振盪することによって、 $10\sim20\text{ mg}$ の凝集体を 6 mL の分散媒体に分散する。試料から懸濁液をピペットで抜き取り、レーザー吸光度が 5% （特定範囲： $5\sim30\%$ ）に達するまでレーザー粒度計の湿式セルに滴下する。測定は超音波を用いずに開始し、 15 秒毎 に超音波を用いて更に測定を行うが、分散装置の超音波出力（デバイスソフトウェアによって値を $0\sim100\%$ に設定することができる）は、いずれの場合も最大出力の 5% に設定する。測定は合計 10 回行う。測定時、分散装置の攪拌器は 1750 RPM で動かす。 10 回測定後の d_{90} 値と最初の測定の d_{90} 値との商を、凝集安定性の測度として用いる（ 100 を掛けて%で示す）。本明細書に記載される測定方法は、以後、「超音波法」とも称される。

【0079】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品に好ましく使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体の凝集安定性は、好ましくは少なくとも 40% 、より好ましくは少なくとも 50% 、及び特に好ましくは少なくとも 60% である。この場合、凝集安定性は、上記超音波法を用いて求められる。

【0080】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品に好ましく使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体の比表面積（BET）は、好ましくは、 $20\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは、 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。

【0081】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品に好ましく使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、凝集していない窒化ホウ素粉末とは対照的に、注ぐことができ、投入が容易である。

【0082】

同じ割合の窒化ホウ素を使用するとき、鱗片状の窒化ホウ素凝集体を有する本発明による構成部品は、凝集していない窒化ホウ素粉末を用いた場合よりも高い熱伝導率の値を達成することが可能である。鱗片状の窒化ホウ素凝集体を用いると、ポリマー／窒化ホウ素化合物及びそれらから生成された構成部品では、凝集していない窒化ホウ素粉末を用いた場合よりも、高い充填剤投与量を得ることが可能である。

【0083】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の生成に関して、任意に結合相原材料と混合される一次窒化ホウ素粒子又は非晶質窒化ホウ素の形態の窒化ホウ素供給原料粉末は、成形工程において鱗片状の凝集体に加工され、その後、加熱処理工程である高温焼きなましに供され、得られた鱗片状の凝集体は、その後必要に応じて、粉碎及び／又は細分化される。

【0084】

乾燥した又は湿った粉末混合物を、一軸加圧成形又はローラー圧縮によって圧縮することによって、鱗片状の窒化ホウ素凝集体を成形する。

10

20

30

40

50

【0085】

成形には、窒化ホウ素供給原料粉末又は窒化ホウ素供給原料粉末と結合相原材料からなる粉末混合物を、好ましくは、2つの逆回転ローラー間で圧縮する。ローラー間の間隙において、接触力を、ロール間隙長さ1cm当たり、0.5kN以上、好ましくは1kN以上、より好ましくは2kN以上、更により好ましくは3kN以上、なおより好ましくは5kN以上、最も好ましくは7kN以上、及び特に好ましくは10kN以上に設定する。ローラーの接触力は、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の密度に影響を及ぼす。高接触力によって、窒化ホウ素原材料の一部が非晶質になり、続く高温焼きなまし中に再結晶する。微細構造化ローラーを使用すると、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の生成も起こり得る。

10

【0086】

生成された凝集体の残留水分は、約100℃で乾燥することによって、更なる温度処理又は窒化の前に除去することができる。

【0087】

鱗片状の凝集体に圧縮される材料を、熱処理工程である高温焼きなましに供する。鱗片状の凝集体が結合相原材料を加えずに、窒化ホウ素供給原料粉末、すなわち、一次窒化ホウ素粒子又は非晶質窒化ホウ素のみを用いて生成される場合、鱗片状の凝集体の高温焼きなましは、少なくとも1600℃、好ましくは少なくとも1800℃の温度で実施される。

20

【0088】

必要に応じて、得られた鱗片状の凝集体は、その後、更に粉碎及び/又は細分化されてもよい。

【0089】

圧縮中の接触力の増加及び加熱処理中の温度の上昇に伴い、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を使用して本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物から生成された2mmの厚みを有する薄いプレート上で測定される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性も、熱伝導率と同様に上昇する。

30

【0090】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を生成する際、更なる添加剤を伴わずに窒化ホウ素粉末を使用して、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体に加工することができる。好ましくは、六方晶窒化ホウ素粉末及びその他の粉末からなる混合物を使用し、このようにして、窒化ホウ素と二次相からなる異方性の鱗片状の混合凝集体（「窒化ホウ素ハイブリッド薄片」）を生成する。異方性の鱗片状の混合凝集体を生成するために六方晶窒化ホウ素粉末に更に添加された粉末は、無機結合相を生成するための結合相原材料であり得る。異方性の鱗片状の混合凝集体において、六方晶の一次窒化ホウ素粒子は、二次相である無機結合相によって互いに結合されている。

【0091】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体の無機結合相は、炭化物、ホウ化物、窒化物、酸化物、水酸化物、金属又は炭素のうち、少なくとも1つを含む。

40

【0092】

結合相を含まない異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体においてそうであるように、小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、これらの鱗片状の混合凝集体中で無作為に配向されていない。鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を含み、その小板平面は、互いに対して平行に整列している。小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、その一次窒化ホウ素粒子の小板平面が互いに実質的に平行に整列するように同時に凝集されるのが好ましい。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに対して無作為に配向されていないことから、鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、異方性特性を有する。

【0093】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体（窒化ホウ素ハイブリッド薄片）中の結合相は、一次窒化ホウ素粒子間に位置するが、少なくとも部分的に、窒化ホウ素ハイブリッド薄

50

片の表面上に位置するか、又は表面積の大部分を覆ってもよい。結合相は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中の一次窒化ホウ素粒子を結合し、結合剤を有さない凝集体に比べて力学的により安定した凝集体を得ることができるようとする。

【0094】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、いずれの場合も鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、好ましくは少なくとも1%、より好ましくは少なくとも5%、更により好ましくは少なくとも10%、更により好ましくは少なくとも20%、及び特に好ましくは少なくとも30%の結合相割合を有する。

【0095】

無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の高温焼きなましは、少なくとも100℃の温度で行われる。

【0096】

更に好ましい実施形態では、異方性の鱗片状の混合凝集体の無機結合相は、少なくとも1つの窒化物及び/又は酸窒化物を含む。窒化物又は酸窒化物は、好ましくはアルミニウム元素、ケイ素元素、チタン元素及びホウ素元素の化合物である。

【0097】

これらの窒化ホウ素混合凝集体も、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体、又は窒化物結合相を有する異方性の窒化ホウ素凝集体と称することもある。

【0098】

結合相に含有される窒化物及び酸窒化物は、好ましくは、窒化アルミニウム(AlN)、酸窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)及び窒化ホウ素(BN)、より好ましくは、窒化アルミニウム、酸窒化アルミニウム、窒化チタン及び/又は窒化ケイ素、更により好ましくは、窒化アルミニウム及び/又は酸窒化アルミニウムである。結合相は、特に好ましくは窒化アルミニウムを含有する。

【0099】

結合相の窒化物及び酸窒化物は、非晶質であってもよく、部分的に結晶質であっても又は完全に結晶質であってもよい。結合相は、それが、本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品において、より高い熱伝導率の値を達成することを可能にするため、好ましくは完全に結晶質である。

【0100】

窒化物及び/又は酸窒化物を含有する結合相は、更に、例えば、酸化ホウ素(B₂O₃)、酸化アルミニウム(Al₂O₃)、二酸化ケイ素(SiO₂)、二酸化チタン(TiO₂)、酸化イットリウム(Y₂O₃)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、及び希土類金属酸化物等の酸化物相を含有してもよい。

【0101】

その上、結合相はまた、ホウ酸塩、例えばホウ酸アルミニウム又はホウ酸カルシウムを更に含んでいてもよい。加えて、結合相はまた、不純物、例えば、炭素、金属不純物、ホウ素元素、ホウ化物、炭化ホウ素、又は例えば炭化ケイ素等の他の炭化物を含有してもよい。

【0102】

結合相中の窒化物及び酸窒化物の割合は、結合相の総量に基づいて、好ましくは少なくとも50重量%、特に好ましくは少なくとも80重量%である。

【0103】

結合相は、好ましくは、結合相の総量に基づいて、50重量%以上の割合で、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、若しくは窒化チタン、又はそれらの混合物を含有する。結合相は、結合相の総量に基づいて、好ましくは90重量%以上の割合で、特に好ましくは、窒化アルミニウムを含有する。

【0104】

金属粉末は、好ましくは、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体の窒化物結合相を生成するための結合相原材料として使用され、金属粉末は、直接窒化によって、対応する金属

10

20

30

40

50

窒化物若しくは酸窒化物又は金属窒化物と酸窒化物との混合物に転換される。使用される金属粉末は、好ましくは、アルミニウム、ケイ素、若しくはチタン粉末、又はこれらの混合物である。アルミニウム粉末の使用が特に好ましい。窒化工程では、金属を対応する金属窒化物へ転換する。窒化中に酸窒化物又は金属窒化物と酸窒化物との混合物が生成する可能性もある。

【0105】

金属化合物は、還元剤と共に、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体の窒化物結合相を生成するための結合相原材料としても使用でき、この窒化物結合相は、還元窒化によって生成される。使用される金属化合物は、好ましくは、アルミニウム元素、ケイ素元素及びチタン元素の化合物、好ましくは、酸化物及び／又は水酸化物の化合物、例えば、酸化アルミニウム(Al_2O_3)、水酸化アルミニウム($\text{Al}(\text{OH})_3$)、ベーマイト(AlOOH)、二酸化ケイ素(SiO_2)、及び二酸化チタン(TiO_2)などである。使用される金属化合物は、ホウ酸塩、例えばホウ酸アルミニウムであってもよい。還元剤としては、炭素及び水素だけでなく、例えばポリビニルブチラール(PVB)、メラミン及びメタンなどの有機化合物も使用してよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、これらの物質は窒化雰囲気に添加される。還元に必要な還元剤が金属化合物中に既に存在していることもあり、そのため、例えば、アルミニウムイソプロポキシド、テトラエチルオルトケイ酸塩、又はチタンイソプロポキシドを結合剤原材料として用いる場合は、追加の還元剤を用いる必要がない。窒化工程では、金属化合物を対応する金属窒化物に転換する。窒化中に酸窒化物又は金属窒化物と酸窒化物との混合物が生成する可能性もある。同様に、結合相はまだ未反応酸化物残渣を含有していることもある。

10

20

30

40

【0106】

また、窒化ホウ素を生成するための反応物も、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体の窒化物結合相を生成するための結合相原材料として使用できる。窒化ホウ素を生成するための反応物は、酸化ホウ素供給源、例えばホウ酸(H_3BO_3)及び酸化ホウ素(B_2O_3)と、還元剤、例えば炭素若しくは水素、又はポリビニルアルコール(PVA)、ポリビニルブチラール(PVB)、メラミン及びメタン等の有機化合物と、を組み合わせて含有してもよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、これらの物質は窒化雰囲気に添加される。また、例えば、ホウ素元素、炭化ホウ素、及びホウ酸トリメチル等の実質的に酸素を含まないホウ素供給源が、窒化ホウ素を生成するための反応物として使用されてもよい。窒化工程では、これら原材料を六方晶窒化ホウ素に転換する。

【0107】

異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体の窒化物結合相を生成するために使用される結合相原材料はまた、窒化雰囲気下での加熱処理中に固化する窒化材料であってもよい。窒化材料は、アルミニウム若しくはケイ素の窒化物及び／又は酸窒化物であり得るが、窒化チタン及び希土類窒化物、更にはサイアロンからなる群から派生する化合物を用いてもよい。液体相、例えば酸化イットリウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化ケイ素及び希土類酸化物などを焼結助剤として用いてもよい。

【0108】

列挙された異なる結合相原材料の混合物を使用することも可能である。

【0109】

六方晶窒化ホウ素、非晶質窒化ホウ素、部分結晶質窒化ホウ素、及びそれらの混合物を、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を生成するための窒化ホウ素供給原料粉末として使用してもよい。

【0110】

使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 d_{50} は、 $0.5 \sim 50 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.5 \sim 15 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$ であってよい。例えば、平均粒径 $1 \mu\text{m}$ 、 $3 \mu\text{m}$ 、 $6 \mu\text{m}$ 、 $9 \mu\text{m}$ 及び $15 \mu\text{m}$ の六方晶窒化ホウ素粉末を用いてよいが、最大 50μ

50

mのより大きな平均粒径も使用可能である。粒径の異なる様々な六方晶窒化ホウ素粉末の混合物を、同様に用いることもできる。

【0111】

使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 (d_{50}) の測定は典型的に、レーザー回折（湿式測定法、Master sizer 2000、Malvern）を用いて行う。

【0112】

B_2O_3 を含まない窒化ホウ素粉末、及び最大 0.5 重量 % の低 B_2O_3 含量の窒化ホウ素粉末を用いてもよいが、最大 10 重量 % の更に高 B_2O_3 含量の窒化ホウ素粉末を用いてもよい。粉末化窒化ホウ素又は造粒窒化ホウ素の混合物も使用可能である。結合相原材料は、固体又は液体又はペーストの形で含まれていてよい。

10

【0113】

窒化ホウ素供給原料粉末と結合相原材料との混合は、例えば、混合ドラム、V型ミキサー、ドラムフープミキサー、振動ミル又はアイリッヒ型ミキサーで行ってよい。その後のミリング工程（例えば、クロスハンマーミル、転動ミル、攪拌式ボールミル）で均質性を更に向上させてもよい。粉末混合物は乾燥していても湿っていてもよい。更には、圧搾助剤、及び必要に応じて潤滑助剤を添加することも可能である。例えば、後続の顆粒の作製を噴霧乾燥又は粒子成長造粒法で行う場合、混合は湿式で行われてもよい。

20

【0114】

鱗片状の凝集体に圧縮された材料は、その後、窒化雰囲気下、少なくとも 1600、好ましくは少なくとも 1800 の温度において高温焼きなましに供される。窒化雰囲気は、好ましくは、窒素及び / 又はアンモニアを含む。窒化雰囲気は、好ましくは、更にアルゴンを含有する。最高温度に達した後、最大数時間又は数日の保持時間を行うことも可能である。温度処理は、連続的に、又はバッチ法で行ってよい。

20

【0115】

窒化雰囲気下での温度処理によって、窒化物結合相は、一次窒化ホウ素粒子を互いに結合する二次相として形成される。窒化工程によって、一次粒子の結晶化度を増大させることができ、それは一次粒子の成長を伴う。

30

【0116】

異方性の窒化物結合窒化ホウ素混合凝集体中の結合相において窒化中に未反応の原材料の残留物は、好ましくは 10 % 以下、より好ましくは 5 % 以下、更により好ましくは 3 % 以下、及び特に好ましくは 2 % 以下である。酸素の混入は、好ましくは 10 % 以下、より好ましくは 5 % 以下、更により好ましくは 2 % 以下、及び特に好ましくは 1 % 以下である。

30

【0117】

高温処理の前に、鱗片状の凝集体へと圧縮された材料は、好ましくは、窒化雰囲気下で少なくとも 700 の温度における更なる温度処理に供され、この第 1 の温度処理の温度は、高温処理の温度を下回る。この前窒化処理の窒化雰囲気は、好ましくは、窒素及び / 又はアンモニアを含む。窒化雰囲気は、好ましくは、更にアルゴンを含有する。

40

【0118】

温度処理の温度の上昇及び時間経過に伴って、鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体に含有される一次窒化ホウ素粒子の結晶化度は増加し、存在する一次窒化ホウ素粒子の酸素含有量及び比表面積は減少する。

40

【0119】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の標的となる凝集体の大きさを達成するために、ふるい分け、粉碎ふるい分け、及びスクリーニング等の慣習的工程が行われてもよい。微粉が含まれている場合は、それを最初に取り除いてよい。ふるい分けに代わる方法として、先に定義された凝集体の粉碎は、ふるい網、分類ミル、構造化ローラークラッシャー又は切削ホイールを用いて行ってよい。例えばボールミル内で粉碎することも可能である。数ミリメートル ~ 数センチメートルの大きさの凝集体は、更なる加工工程において規定された凝集体の大きさに加工される。このため、例えば、振動ふるいでは異なるメッシュ幅を有する

50

標準的な市販のふるい及びふるい分け助剤を用いてよい。多段階のふるい分け／粉碎ふるい分けプロセスが有利であることが証明されている。

【0120】

それらの生成に続いて、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、更なる処理を受けてもよい。この場合、例えば、以下の可能な処理のうちの1つ以上が行われてもよい。

- 水蒸気処理

- 室温又は温度の影響下でかつキャリア又は反応ガスを用いた、シラン、チタン酸塩又は他の有機金属化合物による表面改質この表面改質はまた、窒化物結合鱗片状凝集体の場合において、窒化物結合相の耐加水分解性を上昇させる。

- ポリマー、例えばポリエチレングリコール（PEG）、ポリビニルアルコール（PVA）、ポリビニルブチラール（PVB）、ポリビニルピロリドン（PVP）、コポリマー、アクリレート、油又はカルボン酸による表面改質。

- ゾルゲル系、例えば、ベーマイトゾル又はSiO₂ゾルによる溶浸、或いは水溶性ガラス若しくはナノ粒子、又は表面改質ナノ粒子、或いはこれらの混合物による溶浸。

- 水溶性又はエタノール可溶性ポリマーによる溶浸。窒化ホウ素凝集体は、例えば、シリコーン、エポキシ、若しくはポリウレタン樹脂等の樹脂で溶浸されてもよく、その樹脂は、配合前若しくは配合中に、硬化剤で硬化されてもよいし、又は熱硬化されてもよい。

- 窒化物結合鱗片状凝集体の場合、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体の表面酸化を引き起こす酸素下での温度処理。例えば、表面TiO₂を有する凝集体は、窒化チタン（TiN）を含有する結合相を用い、500超における大気中で酸化によって生成することができ、表面SiO₂は、窒化ケイ素（Si₃N₄）を含有する結合相を用いて生成することができ、そして表面酸化アルミニウム（Al₂O₃）は窒化アルミニウム（AlN）を含有する結合相を用いて生成することができる。結合相としてAlNを含有する異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体に関して、大気中での温度処理は、好ましくは500

以上の温度、より好ましくは700～1200の温度、及び特に好ましくは700～1000の温度で行うことができる。

【0121】

列挙された表面処理はまた、異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体と、例えば、一次窒化ホウ素粒子等の他の窒化ホウ素充填剤との混合物に対して行われてもよい。

【0122】

前記処理のうちいくつかを任意の順序で組み合わせることも可能である。例えば、前記処理を流動床法で行ってもよい。

【0123】

列挙された前記処理を用いて、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物におけるポリマーマトリックスと鱗片状の窒化ホウ素凝集体との結合改善を達成することが可能である。

【0124】

異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体は、優れた力学的安定性を呈する。充填、輸送、投与、配合、つまり、窒化ホウ素凝集体をポリマー／窒化ホウ素化合物にする更なる加工、及び射出成形によるその後の成型に（できれば、最小の崩壊のみを伴って）耐えなければならないため、窒化ホウ素凝集体の力学的安定性は重要である。窒化ホウ素凝集体が配合中に崩壊した場合は、ポリマー／窒化ホウ素化合物のレオロジー特性が悪化し、化合物から生成される構成部品、特に、射出成形された薄いプレートにおける熱伝導率が、平面貫通方向で減少するという危険性が存在する。平面貫通方向の熱伝導率が、一次窒化ホウ素粒子を使用して生成されるポリマー化合物に匹敵する水準まで低下するくらいまで、窒化ホウ素凝集体が分解される危険性が存在する。

【0125】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体を用いた場合、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物の熱伝導率は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を使用して生成されるポリマー／窒化ホウ素化合物において見られるほどは指向的

10

20

30

40

50

に依存性ではない。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体は、大量でかつ大きいサイズのポリマー溶融物を用いた配合プロセスに耐えるのに十分な強度を有する。

【0126】

驚くことに、ポリマー / 窒素ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率は、本発明の製造方法を使用して異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体による充填剤投与量が 30 体積 % の場合、標準的な射出成型パラメータを使用して凝集していない小板形状の窒化ホウ素を用いた場合に比べて約 2 倍増加し、そして充填剤投与量が 50 体積 % の場合には約 4 倍増加する可能性がある。

【0127】

驚くことに、2 mm の薄い射出成型プレートの平面貫通方向熱伝導率は、本発明の製造方法を使用して異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体による充填剤投与量が 30 体積 % の場合、標準的な射出成型パラメータを使用した場合、特に穏やかな配合パラメータを使用した場合に比べて約 40 % 増加し、そして充填剤投与量が 50 体積 % の場合には約 100 % 増加する可能性がある。

【0128】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体、及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、配合工程及び約 2 mm の壁厚を有する薄いプレートの射出成形工程において使用するのに十分に安定している。更に高い凝集体の安定性が必要とされる、薄いプレートの壁厚が更に低減される場合、いずれの場合も、無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の結合相の割合を増加させることによって、安定性必要要件への調整を行うことができる。

【0129】

無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性を調整又は高めることによって、研磨二次充填剤を含む混合物も利用可能であることもまた利点である。研磨二次充填剤を含む窒化ホウ素凝集体の混合物中では、慣習的な窒化ホウ素凝集体は、分解される。本発明にしたがって使用される窒化ホウ素凝集体では、有利な熱伝導率特性が維持される程度まで、分解が低減される。

【0130】

更に有利には、無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性は、特に充填剤含量が高い場合に、結合相の割合を高めることによって調節でき、このとき熱可塑加工中の溶融粘度は高く、それによって、充填剤による高剪断力が起こり、その結果、充填剤含量の高いもの又は充填剤混合物含量の高いものの加工が起こり得る。

【0131】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体、及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性の調整能力のおかげで、各用途における熱伝導性充填剤の研磨性と適当な安定性との間の良好な妥協を得ることができる。

【0132】

更なる好ましい実施形態では、本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物はまた、小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子又は窒化ホウ素凝集体の形態の窒化ホウ素に加えて、窒化ホウ素とは異なりかつ熱伝導率を高める熱伝導性充填剤として少なくとも 1 つの充填剤を更に含有してもよい。これらの追加の充填剤は、以後、二次充填剤とも称される。

【0133】

そのような二次充填剤の熱伝導率は、典型的には、 $5 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($5 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$) 以上、好ましくは $8 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($8 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$) 以上である。

【0134】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体又は小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子の形態の窒化ホウ素と二次充填剤との総割合は、いずれの場合もポリマー / 窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは少なくとも 20 体積 %

10

20

30

40

50

、より好ましくは少なくとも30体積%である。本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体又は小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子の形態の窒化ホウ素と二次充填剤との総割合は、いずれの場合もポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは最大70体積%、より好ましくは最大60体積%である。本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体又は小板形状の六方晶窒化ホウ素粒子の形態の窒化ホウ素と二次充填剤との総割合は、いずれの場合もポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、特に好ましくは最大50体積%である。

【0135】

好ましくはアルミニウム、ケイ素、チタン、銅、鉄、及びブロンズ粉末、並びにそれらの混合物を含む群から選択される金属粉末及び合金が、二次充填剤として使用され得る。

10

【0136】

使用される二次充填剤は、更に、黒鉛、膨張黒鉛、グラフェン、若しくはカーボンブラックの形態の炭素であってもよく、膨張黒鉛が特に好ましい。

【0137】

更に、使用される二次充填剤は、酸化物、窒化物、若しくは炭化物などのセラミック充填剤であってもよく、好ましくは、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、二酸化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素及びこれらの混合物から、特に好ましくは、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム及び／若しくは窒化アルミニウムからなる群から選択され得る。

20

【0138】

使用される二次充填剤は鉱物充填剤であってもよく、好ましくはアルミノケイ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム($2\text{MgO}\cdot\text{SiO}_2$)、アルミン酸マグネシウム($\text{MgO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$)、ブルーサイト(水酸化マグネシウム、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$)、石英、クリストバライト、及びそれらの混合物からなる群から選択され得る。使用されるアルミノケイ酸塩又はケイ酸アルミニウムは、例えば、カイアナイト(Al_2SiO_5)及び／又はムライト($3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot2\text{SiO}_2$)であってよい。

【0139】

二次充填剤の組み合わせも可能である。異方性の窒化物結合窒化ホウ素凝集体と、熱伝導性充填剤としてのアルミノケイ酸塩及び膨張黒鉛との組み合わせが、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物において特に有利であることが証明されている。

30

【0140】

二次充填剤は粒子状形態で存在することが好ましい。二次充填剤粒子の形状は、不規則であっても、塊状、又は球状、又は小板形状であってもよい。本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の小板形状の二次充填剤の割合は、好ましくは10体積%以下、より好ましくは5体積%以下である。

【0141】

二次充填剤は、好ましくは、 $0.5\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $1\mu\text{m}$ 以上、更により好ましくは $2\mu\text{m}$ 以上、及び特に好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上の粒子直径又は小平板直径を有する。

40

【0142】

二次充填剤は、粉末、好ましくは凝集した粉末として存在する。二次充填剤の凝集は、例えばアイリッヒ型ミキサー内のローラー圧縮又は粒子成長造粒法によって実施できる。PVA溶液を造粒剤として使用してよい。配合中、二次充填剤顆粒を、好ましくは、投入に先立ち、押出成形機内で窒化ホウ素充填剤と混合する。二次充填剤顆粒は、二次充填剤顆粒を窒化ホウ素充填剤と混合する前に乾燥される。二次充填剤の造粒により、配合中の均一な投入が促進される。

【0143】

窒化ホウ素凝集体又は一次窒化ホウ素粒子と二次充填剤からなる充填剤の組み合わせを使用する場合、異方性の鱗片状窒化ホウ素凝集体は、好ましくは、二次充填剤と組み合わせて使用される。

50

【 0 1 4 4 】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体と二次充填剤からなる充填剤の組み合わせを用いた本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の熱伝導率は、二次充填剤を単独で使用して生成されたポリマー化合物よりも高く、いずれの場合も、総体積において同じ割合の充填剤を使用する。

【 0 1 4 5 】

驚くべきことに、窒化ホウ素凝集体と二次充填剤との組み合わせは、その充填剤の組み合わせを用いて生成される本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物の達成される熱伝導率の値が、対応する割合の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤である充填剤を個別に含むポリマー材料の熱伝導率の値（いずれの場合も、充填されていないベースポリマーの熱伝導率を差し引く）を加えた場合に予期された値よりも高いことが分かった。これは、面内方向熱伝導率及び平面貫通方向熱伝導率の両方に当てはまる。10

【 0 1 4 6 】

好ましく使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、一次窒化ホウ素粒子も含有し得る。同様に、一次窒化ホウ素粒子は、窒化ホウ素凝集体と二次充填剤からなる充填剤の組み合わせを使用して生成されたポリマー／窒化ホウ素化合物中で、追加的に使用されてよい。使用される一次窒化ホウ素粒子は窒化ホウ素粉末であってよいが、例えば、噴霧乾燥した窒化ホウ素凝集体などの安定性が低い窒化ホウ素凝集体であってもよく、これは大部分又は完全に、配合中に一次粒子まで分解する。本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物中の追加の一次窒化ホウ素粒子の割合は、好ましくは20体積%以下、特に好ましくは10体積%以下である。20

【 0 1 4 7 】

5 W / m · K (5 °W / m ·) 以上の熱伝導率を有する窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、窒化ホウ素とは異なる、例えば、タルク等の 5 W / m · K (5 °W / m ·) 未満のより低い熱伝導率を有する追加の充填剤を含有してもよい。

【 0 1 4 8 】

熱伝導性充填剤に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、例えば、力学的若しくは電気的性質又は熱膨張係数の調整等の他の機能を担う更なる添加剤及び充填剤を含有してもよい。この点で、充填剤は、例えば、塊状、球状、小板形状、纖維状粒子、又は、不規則形態を有する粒子として存在してよい。30

【 0 1 4 9 】

特にガラス纖維は、力学的性質、特に強度を向上させるために本発明の構成成分及びポリマー／窒化ホウ素化合物中に追加の充填剤として使用してもよい。その際、熱可塑性ポリマーを強化するために標準的な市販ガラス纖維を使用してもよい。ガラス纖維は更に表面改質剤を含有してもよい。例えば、ガラス纖維の直径は 14 μm であってよく、ガラス纖維の長さは 4 . 5 mm であってよい。その他の直径及び長さも使用可能である。表面改質処理としてシラン処理を行ってもよいが、他の表面改質処理も使用可能である。

【 0 1 5 0 】

ポリマー／窒化ホウ素化合物中のガラス纖維の含量は好ましくは 5 ~ 40 体積 % である。40

【 0 1 5 1 】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の作製のため、様々な分級の異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の混合物を使用してもよい。

【 0 1 5 2 】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物は、一般的な配合用凝集体のうちのいずれかを使用して、配合によって生成することができる。これには、特に、一軸押出機、二軸押出機、接線方向に若しくは緊密に噛み合う共回転又は逆回転遊星ローラー押出機、溝付きバレル押出機、ピン型押出機、カレンダ成形 (calendering) 、往復式混練機 (Buss co-k50

neaders)、剪断ローラー押出機、並びに射出成形機を含む。二軸押出機での配合が、好みしい。

【0153】

配合に使用されるポリマーは、粉末形態で、又は顆粒の形態で存在してよい。ポリマーは、混合物を配合用凝集体に供給する前に、窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素凝集体及び追加の充填剤と、乾燥状態で予混合してよい。別 の方法としては、窒化ホウ素凝集体及び任意に追加の充填剤のポリマー溶融物への添加は、充填剤をポリマーと最初に予混合することなく、サイドフィーダーを介して行われてもよい。更に、マスターバッチ、すなわち高充填剤含量のポリマー化合物も生成可能であり、マスターバッチの顆粒混合物は射出成型機で射出成型されてよい。

10

【0154】

本発明のポリマー／窒化ホウ素化合物の配合は好みしくはできるだけ穏やかな条件下で行われる。押出成形機の送出速度は好みしくは、最大送出速度の最大50%に設定すべきである。スクリュー速度は好みしくは最大300RPMとすべきである。窒化ホウ素凝集体をサイドフィーダーを介して添加した後、好みしくは搬送要素及び混合要素のみを二軸押出機のスクリューに取り付け、捏和ブロック、剪断要素又は逆流要素は取り付けない。

20

【0155】

配合用凝集体の均質化後、充填剤を含むポリマー溶融物を造粒する。ポリマー／窒化ホウ素化合物の造粒は、例えばストランド造粒法、水中造粒法、高温造粒法又は低温造粒法によって行われてよい。化合物を加工する方法の組み合わせも可能である。得られた顆粒形態のポリマー／窒化ホウ素化合物は、例えば、構成部品を形成するための射出成形等の成形方法を介して、更に加工することもできる。

30

【0156】

本発明による構成部品は、ポリマー／窒化ホウ素化合物を熱可塑的に加工することによって生成される。ポリマー／窒化ホウ素化合物は、例えば、射出成形、押出加工、カレンダ成形、又は射出圧縮成型によって、好みしくは射出成形又は押出加工によって、任意の所望の形状に成形することができる。射出成形による加工が特に好みしい。このために、例えば、マスターバッチからの化合物顆粒又は化合物顆粒混合物は、油圧駆動式又は電気機械駆動式の可塑化装置中で溶融され得、必要な場合は、ノズルを離れるまで追加の充填剤又はポリマーと均質化されてもよい。その後の射出段階中、溶融物は、射出成形機の密閉金型に射出され得る。そのようにすることで、典型的な射出成形金型及びホットランナーシステムを有する金型の両方を使用することができる。空洞が完全に充填された後、保持圧力は、構成部品が完全に固化されるまで、一定に保持され得る。冷却時間の経過後、金型を開けて、構成部品を取り出すことができる。取り出しは、順々に、射出成形機の取り出し装置によって、又はロボットアーム等の他の除去方法で行うことができる。

30

【0157】

以上の通り、本発明の構成部品は、射出成型機内の射出成型金型を用い、本発明のポリマー／窒化ホウ素化合物を使用する射出成型工程を含む方法で生成され、射出速度は200mm/s以下である。射出速度は好みしくは175mm/s以下、特に好みしくは150mm/s以下である。

40

【0158】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物であって、平面貫通方向熱伝導率が中程度の熱伝導率範囲、すなわち $1 \sim 2.5 \text{ }^{\circ}\text{W/m}\cdot\text{K}$ ($2.5 \text{ }^{\circ}\text{W/m}\cdot\text{K}$)未満の場合、射出速度は200mm/s以下、好みしくは175mm/s以下、より好みしくは150mm/s以下、更により好みしくは125mm/s以下、なお更に好みしくは100mm/s以下、最も好みしくは80mm/s以下、特に好みしくは70mm/s以下である。

【0159】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物であって、平面貫通方向熱伝導率が $1 \sim 2.5 \text{ }^{\circ}\text{W/m}\cdot\text{K}$ ($2.5 \text{ }^{\circ}\text{W/m}\cdot\text{K}$)未満に存在する場合、温度は、射出成

50

型機内の化合物溶融物の溶融温度として選択され、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも10高く、より好ましくは少なくとも20高く、特に好ましくは少なくとも30高い。射出成形機内の化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも最大60高く、より好ましくは最大50高く、特に好ましくは最大40高い。

【0160】

好ましくは、ガラス纖維を含有しない化合物であって、熱伝導率が1W/m·K~2.5W/m·K未満(1W/m·K~2.5W/m·K未満)の範囲である場合の射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも30低く、より好ましくは少なくとも60低く、特に好ましくは少なくとも90低くなるように設定される。射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも好ましくは最大120、特に好ましくは最大100低い。

10

【0161】

例えば、ガラス纖維を含有せず、低粘性ポリアミド6を有しかつ熱伝導率が1W/m·K~2.5W/m·K未満(1W/m·K~2.5W/m·K未満)の化合物では、射出成型機内の化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは少なくとも229、より好ましくは少なくとも239、なお更に好ましくは少なくとも249である。更に、ポリアミド6を含む化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは最大279、より好ましくは最大269、なお更に好ましくは259、である。射出成型金型の金型温度は、好ましくは最大160、より好ましくは最大130、なお更に好ましくは最大110であり、好ましくは少なくとも70、より好ましくは少なくとも90である。ポリアミド6の融点は219であり、ポリアミド6の熱変形温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、190である。

20

【0162】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物であって、平面貫通方向熱伝導率が2.5°W/m·K(2.5°W/m·K)以上の範囲である場合、射出成型中の射出速度は200mm/秒以下、好ましくは175mm/秒以下、より好ましくは150mm/秒以下、更により好ましくは125mm/秒以下、なお更に好ましくは100mm/秒以下、最も好ましくは80mm/秒以下、特に好ましくは70mm/秒以下である。

30

【0163】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物であって、平面貫通方向熱伝導率が2.5°W/m·K(2.5°W/m·K)以上の範囲である場合、温度は、射出成型機内の化合物溶融物の溶融温度として選択され、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも好ましくは少なくとも10高く、より好ましくは少なくとも20高い。射出成形機内の化合物溶融物の溶融温度は、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも好ましくは最大60高く、より好ましくは最大50高く、なお更に好ましくは最大40高く、特に好ましくは最大35高い。

40

【0164】

好ましくは、ガラス纖維を含有せず、熱伝導率が2.5W/m·K(2.5W/m·K)以上の化合物における射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも5低く、より好ましくは少なくとも10低くなるように設定される。射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも好ましくは最大70低く、より好ましくは最大50低く、特に好ましくは最大40低い。

【0165】

例えば、ガラス纖維を含有せず、低粘性ポリアミド6を有しかつ熱伝導率が2.5W/

50

$m \cdot K (2.5 W / m \cdot \text{K})$ 以上の化合物では、射出成型機内の化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは少なくとも 229、より好ましくは少なくとも 239 である。更に、ポリアミド 6 を含む化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは最大 279、より好ましくは最大 269、なお更に好ましくは 254 である。射出成型金型の金型温度は、好ましくは最大 185、より好ましくは最大 180 である。前記溶融温度は、好ましくは少なくとも 120、より好ましくは少なくとも 140、特に好ましくは少なくとも 150 である。

【0166】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物では、平面貫通方向熱伝導率範囲を測定するために最初に予備試料を生成することができる。

10

【0167】

ガラス纖維を含有しないポリマー／窒化ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率範囲を測定するための予備試料の生成は、好ましくは、次の工程で行われる。

【0168】

1) マスターバッチの生成、

a) 窒化ホウ素凝集体を充填剤として含有するポリマー化合物をマスターバッチとして生成する。マスターバッチ中の充填剤濃度は最大 50 体積 % であり、粘性が特に低いポリマーではこれより高くてよい。配合は、各ポリマーの製造者が奨励する温度プロファイルを使用して行われる。配合は、充填剤用サイドフィーダーを有する二軸押出機で行われる。二軸押出機のスクリュー構造では、充填剤が、二軸押出機から放出されるまでできるだけ穏やかな剪断を受けるように、充填剤を添加する位置より下流で搬送要素及び混合要素のみを使用する。配合中、押出成形機の送出速度は、好ましくは、最大送出速度の最大 50 % に設定される。スクリュー回転数は、300 RPM に設定する。造粒は、高温造粒法により、水中で又は細断機中の水浴に続いて行われてよい。

20

b) 力学的性質を向上させるためにガラス纖維が使用される場合、窒化ホウ素凝集物充填剤のための a) に記載の手順にしたがってガラス纖維充填剤用のマスターバッチを生成する。

c) 窒化ホウ素凝集体及び任意に存在するガラス纖維に加えて他の充填剤をも使用する場合、a) に記載の手順にしたがってこれら充填剤用の追加のマスターバッチを生成する。

30

【0169】

2) 顆粒混合物の生成

工程 1) で生成されたマスターバッチを所望の組成比で合わせて、転動式混合機で 2 分間混合することにより均質化する。生成される混合物の量は最大 5 kg である。

【0170】

3) 射出成形

顆粒混合物を射出生成することで、射出成型機において高い熱伝導性化合物に関する上記パラメータを使用して 2 mm の薄いプレートを形成する。

【0171】

4) 热伝導率の測定

射出成型されたプレートの中央から、 $2 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ 試料を作成する。この試料について、DIN EN ISO 22007-4 にしたがってフラッシュ法を使用して平面貫通方向熱伝導率の測定が行われる。

40

【0172】

力学的性質を向上させるためにガラス纖維を追加として含有するポリマー／窒化ホウ素化合物の場合、射出成型中の射出速度は 200 mm / 秒以下、好ましくは 175 mm / 秒以下、特に好ましくは 150 mm / 秒以下である。ガラス纖維を含有するポリマー／窒化ホウ素化合物の場合、射出速度は好ましくは少なくとも 50 mm / 秒、より好ましくは少なくとも 70 mm / 秒である。

【0173】

50

力学的性質を向上させるためにガラス纖維を追加として含有するポリマー／窒化ホウ素化合物において、温度は、射出成型機中の化合物溶融物の溶融温度として選択され、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも少なくとも10高く、より好ましくは少なくとも20高く、特に好ましくは少なくとも30高い。射出成型機内の化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の溶融温度よりも最大60高く、より好ましくは最大55高い。

【0174】

好ましくは、ガラス纖維を含有する化合物における射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも少なくとも5低く、より好ましくは少なくとも10低くなるように設定される。射出成型金型の金型温度は、DIN EN ISO 75-1/-2にしたがって0.45MPaで測定したとき、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱変形温度よりも好ましくは最大40低く、より好ましくは最大30低く、特に好ましくは最大25低い。

10

【0175】

例えば、ガラス纖維を含有せず、低粘性ポリアミド6を有する化合物では、射出成型機内の化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは少なくとも229、より好ましくは少なくとも239、なお更に好ましくは少なくとも249である。更に、ポリアミド6を含む化合物溶融物の溶融温度は、好ましくは最大279、より好ましくは最大274である。射出成型金型の金型温度は、好ましくは最大185、より好ましくは最大180であり、好ましくは少なくとも150、より好ましくは少なくとも160、特に好ましくは少なくとも165である。

20

【0176】

本発明の製造方法によれば、最大5W/m·K(5W/m·)以上の平面貫通方向熱伝導率の値が得られることもできる。

【0177】

驚くことに、射出成型パラメータは、平面貫通方向熱伝導率がそれぞれ1~2.5W/m·K(2.5W/m·)未満及び2.5W/m·K(2.5W/m·)以上の中程度及び高い熱伝導率の化合物で見いだされたものであり、本発明で好ましく使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体の分解は低速で、しかも、特に指向性の高い配向が平面貫通方向で生じる。そのため、平面貫通方向熱伝導率は、典型的な標準パラメータを用いて射出成型することにより生成される射出成型部品に比べると、最大100%超まで大幅に増加する。

30

【0178】

本発明による構成部品は、被冷却構成部品又はアセンブリを、好ましくは電子構成部品又はアセンブリを放熱するために使用される。

【0179】

本発明による構成部品は、被冷却構成部品又はアセンブリの熱をここから放散することができる、薄肉部分を含む。構成部品の薄肉部分は、3mm以下、好ましくは2mm以下の厚みを有する。本発明による構成部品は、例えば、射出成形又は成形方法である押出によって生成され得る、例えば、3mm以下、好ましくは2mm以下の厚みを有する薄いプレートとして存在してよい。本発明による構成部品はまた、導電性であっても絶縁性であってもよい。成形工程又はその後の加工工程の間に、薄いプレートの形態の導電性及び非導電性の層からなる積層体を生成することも可能であり、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物を使用して、少なくとも、薄いプレートの電気絶縁層が生成された。

40

【0180】

例えば射出成形による成形後、本発明による構成部品は、コーティングが提供されてもよく、例えば、金属化されてもよい。導体経路を適用することも可能である。

【0181】

本発明による構成部品は、均一又は不均一な壁厚を有する、平坦又は湾曲したプレート

50

として存在してよい。本発明による構成部品の表面は、滑らかであっても粗くてもよい。

【0182】

本発明による構成部品は、電子構成部品のための担体プレートとして機能することができ、又は一方の構成部品から他方へ熱を移動させることができる。本発明による構成部品はまた、薄膜又は薄肉管として存在してもよい。本発明による構成部品はまた、実質的に薄肉の筐体、取付具若しくは接続要素又は管の薄肉の主要部分として存在してもよい。本発明による構成部品は、更に、冷却要素の一部分である冷却フィン、筐体、取付具、接続要素若しくは管として存在してもよく、取付具は、例えば、ランプソケットであり得る。より複雑な構成部品では、本発明による構成部品は、プレートとして、プレートの積層体の一部あってよく、プレート積層体内のプレートは、冷却フィンとして機能し得る。

10

【0183】

実施例及び参照例

ポリマーと窒化ホウ素凝集体又は充填剤混合物との配合には、ZSE 18 MAXX 二軸押出機 (Leistritz (Nuremberg, Germany)) を使用する。一方が、2つの混合要素及び6つの混練ブロックを有する比較的粗い「標準の」スクリュー構成（スクリュー構成1）であり、他方が、3つの混合要素を有し、混練ブロックを有さない、より穏やかな「温かな」スクリュー構成（スクリュー構成2）である、2つの異なるスクリュー構成を使用する。スクリュー速度を、300 RPM 及び 900 RPM に設定する。ボリアミド PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12) をポリマーとして使用する。配合中、ポリマー溶融物を 265 まで加熱する。スループットを、全ての試験において毎時 6 kg に設定する。メインフィーダを介してポリマーを供給する。充填剤（窒化ホウ素凝集体）又は充填剤混合物（窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤）は、サイドフィーダーを介して供給される。

20

【0184】

充填剤を含有するポリマー溶融物は、2つの3 mm ノズルを通して放出され、ストランドの形態で冷却され、顆粒を形成するように細断機内で加工される。射出成形によって、 $80 \times 80 \text{ mm}^2$ の基部を有する 2 mm の薄いプレートを顆粒から生成する。

【0185】

2 mm の薄いプレートを射出成型するとき、ゲートは試料の幅全体に広がっている。ゲートは厚さ 1 ~ 1.8 mm、好ましくは 1.3 ~ 1.7 mm であるべきである。後続の実施例では、ゲートの厚さは 1.3 mm である。

30

【実施例】

【0186】

(実施例1)

(実施例1a) :

4000 g のアルミニウムペースト STAPA ALUPOR SK I - NE / 70 (Eckart (Hartenstein, Germany) 製) 及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 BORONID (登録商標) S1 - SF (ESK Ceramics GmbH & Co. KG (Germany)) であって、レーザー拡散法 (Mastersizer 2000 (Malvern)、湿式測定法) により測定したときに平均粒径 d_50 が $3 \mu\text{m}$ であるものを、ローラーブロック上の PE ドラム内において粉碎ボールで 20 時間均質化する。粉末混合物を、乾式圧縮造粒機 RC 250 × 250 (Potec (Remscheid, Germany)) 中に、毎時 8 kg の重力式投入によって投入する。空で運転したときに平滑なステンレス鋼ローラー同士が接触するように、乾式圧縮造粒機を変更する。3 kN / cm のローラー間隙長に対応する 75 kN の接触力をローラーに加えて、ローラー速度を 20 RPM に設定する。これによって、厚さ $30 \mu\text{m}$ 、直径最大数センチメートルの窒化ホウ素ハイブリッド薄片が得られる。ローラーに付着している未加工の（すなわち、圧縮されているがまだ温度処理されていない）窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、スクラバーで除去する。圧縮後、 $200 \mu\text{m}$ 未満の微粉はふるい分けによって除き、4000 g のアルミニウムペースト及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 S1 によ

40

50

る次の原材料の均質化中に、P E ドラムに投入する。合計 5 5 k g の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が生成されるまで、このプロセスを繰り返す。窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、排気して 8 0 % 窒素及び 2 0 % アルゴン雰囲気中で 3 0 0 °C においてばらばらに剥離し、そして窒化ホウ素ハイブリッド薄片中のアルミニウム割合の大部分を、8 0 % 窒素及び 2 0 % アルゴン雰囲気中、8 0 0 °C において 5 時間の保持時間中に A 1 N へと転化させる。その後、8 0 % 窒素及び 2 0 % アルゴン雰囲気中、2 0 5 0 °C において 2 時間、高温焼きなまし処理を行う。

【 0 1 8 7 】

焼きなまし処理後、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中の総アルミニウム割合は、アルカリ溶融物及び I C P - O E S (Arcos, Spectro (Kleve, Germany)) により測定すると、2 4 . 6 重量 % である。窒化アルミニウムの割合 3 7 重量 % は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中のアルミニウム割合から算出する。

10

【 0 1 8 8 】

アルミニウムを含まない部分は 0 . 3 5 重量 % である。アルミニウムを含まない部分は、2 モル H C l を用いて、1 6 時間室温で抽出することによって測定される。抽出物の透明な上清から得た溶液のアルミニウム含量を、I C P - O E S (Arcos, Spectro (Kleve, Germany)) によって測定する。炭素含量は、0 . 0 5 % である。炭素含量は、誘導炉内の酸素燃焼及びその後の CO₂ の I R 測定 (CS 2 0 0, L E C O (Monchengladbach, Germany)) によって間接的に測定する。

20

【 0 1 8 9 】

比表面積は、C ou l t e r S A 3 1 0 0 機 (Coulter (U S A)) を用いる窒素吸着及び 5 点 B E T 法によって、I S O 1 8 7 5 7 にしたがって測定した。測定に先立ち、試料を、真空中、3 0 0 °C において 3 6 0 分間ベーキングする。比表面積は、6 . 8 m² / g である。

【 0 1 9 0 】

試料からの酸素が炭素と反応し、発生 CO₂ の含有量を I R 分光法 (T C H 6 0 0 (L E C O (Monchengladbach, Germany))) によって決定するキャリアガス高温抽出法によって、間接的に酸素含量を決定した。酸素含量は 0 . 1 5 % である。

30

【 0 1 9 1 】

X 線回折法によって、窒化ホウ素及び窒化アルミニウムの相のみの検出が可能であった。

【 0 1 9 2 】

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、ゴムボールを用いた振動スクリーン中のふるい分けにより粉碎する。5 mm、2 mm、1 mm 及び 5 0 0 μm のふるいを連続して用いた。

【 0 1 9 3 】

こうして得られた 5 0 0 μm 未満のふるい分級物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、レーザー回折 (Mastersizer 2 0 0 0 (Malvern)) 、湿式測定法) によって測定したとき、1 9 2 μm の平均粒径 (d₅₀) を有する。窒化ホウ素ハイブリッド薄片の厚さは 3 0 μm である。厚さは、デジタル精密計器を用いて測定する。

40

【 0 1 9 4 】

バルクの窒化ホウ素ハイブリッド薄片において測定される組織指数は、2 0 . 6 である。

【 0 1 9 5 】

生成される窒化ホウ素ハイブリッド薄片から 2 0 0 μm 未満の分級物を分割し、1 0 0 μm 未満の微粉をふるい分けによって分離する。凝集体の安定性を、このようにして超音波法を使用して得られた窒化ホウ素ハイブリッド薄片の 1 0 0 ~ 2 0 0 μm のふるい分級物上で決定する。窒化ホウ素ハイブリッド薄片上で決定される凝集体の安定性は、7 5 % である。

50

【0196】

500 μm未満のふるい分級物で得られる窒化ホウ素ハイブリッド薄片のSEM全体画像(図3a)は、凝集体の平坦な表面を鮮明に示している。これらの表面は、その後の粉碎によってではなく、成形法(2つの回転する逆移動ローラー間での圧縮)によって直接生成された成形表面である。図3bは、そのような凝集体の平坦な成形表面及び追加の凝集体の平坦な成形表面からなる、30 μmの厚さを有する凝集体の破断面を示す。

【0197】

(実施例1b) :

二軸押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX(Nuremberg, Germany))に、ポリアミドPA 6(Schulamid(登録商標)6NV 12(A. Schulman(Kerpen, Germany))を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例1a)からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダーを介して添加する。温和なスクリュー構成2が使用される。スクリュー速度を300 RPMに設定し、毎時6 kgのスループットを実行し、毎時3.05 kgのPA 6をメインフィーダから、及び500 μm未満のふるい分級物からの毎時2.95 kgの窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイドフィーダーから投与する。得られた化合物は、2つの3 mmノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、30体積%である。

10

【0198】

(実施例1c) :

実施例1b)からの化合物顆粒を、射出成形機(Krauss Maffei KM 80-220 C2)において射出成型して80×80×2 mm³の寸法の2 mmの薄いプレートを形成する。可塑化処理中のスクリュー回転数は、80 RPMである。射出成型中の射出速度は20 mm/秒であり、射出圧は780 bar(78 MPa)であり、保持圧力は260 bar(26 MPa)であり、射出成型金型の金型温度は90°であり、そして化合物の溶融温度は250°である。

20

【0199】

2 mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で熱伝導率を測定し、2 mmの厚みを有する射出成形プレート(寸法2×80×80 mm³)の中心から、寸法2×10×10 mm³の平面貫通方向熱伝導率を測定するための試料を作成する。平面貫通方向熱伝導率を測定するための試料の厚みは、射出成形から得られたプレートの厚みと一致する。面内方向熱伝導率測定のために、射出成形された2 mmの薄いプレートからなるプレート積層体を互いに瞬間接着剤を使用して接着させ、こうして作成されたプレート積層体から、2×10×10 mm³の寸法を有する2 mmの薄いプレートを、射出成形試料の平面貫通方向に平行かつ流れ方向に垂直であるように作成する。この試料を使用して面内方向熱伝導率を決定する。

30

【0200】

熱伝導率の測定に関しては、レーザーフラッシュ法を使用して、DIN EN ISO 22007-4に従いNanoflash LFA 447(Netzsch(Seelb, Germany))で行う。測定は22で行う。

40

【0201】

熱伝導率(TC)は、熱拡散率a、比熱容量c_p、及び密度Dに関する値を測定することによって求められ、これらの値から次の式によって算出される。

$$TC = a \times c_p \times D$$

a及びc_pは、Nanoflash LFA 447(Netzsch(Seelb, Germany))を用いて、上述のように生成された10×10×2 mm³の寸法を有する試料上で測定する。密度は、正確に成形された試料を秤量し、その幾何学的寸法を求めることによって算出する。標準のPyroceram 9606を測定に使用する。

50

【0202】

表1には、熱電導率測定結果及び射出成型パラメータを示す。

【0203】

充填剤を添加していないPA6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12) の熱伝導率は、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法の射出成型された薄いプレートで測定したとき、 $0.26 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ ($0.26 \text{ W/m}\cdot\text{K}$) である。

【0204】

(実施例2) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例1にしたがって行う。射出成型は、実施例1に記載のようにして、射出速度 70 mm/s で行う。射出圧は 700 bar (70 MPa) であり、保持圧力は 230 bar (23 MPa) である。

10

【0205】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0206】

(実施例3) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例1にしたがって行う。射出成型は、実施例1に記載のようにして、射出速度 120 mm/s で行う。射出圧は 765 bar (76.5 MPa) であり、保持圧力は 255 bar (25.5 MPa) である。

【0207】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

20

【0208】

(実施例4) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例1にしたがって行う。射出成型は、実施例1に記載のようにして、金型温度を 150°C で行う。射出圧は 820 bar (82 MPa) であり、保持圧力は 260 bar (26 MPa) である。

【0209】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

30

【0210】

(実施例5) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例1にしたがって行う。射出成型は、実施例1に記載のようにして、射出速度 120 mm/s 及び金型温度 150°C で行う。射出圧は 640 bar (64 MPa) であり、保持圧力は 255 bar (25.5 MPa) である。

【0211】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

40

【0212】

(実施例6) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作成は、実施例1にしたがって行う。配合は実施例1にしたがって行い、毎時 1.84 kg のPA6はメインフィーダから、 $500 \mu\text{m}$ 未満のふるい分級物からの毎時 4.16 kg の窒化ホウ素ハイブリッド薄片はサイドフィーダーから投与する。射出成型は、実施例1に記載のようにして、射出速度 70 mm/s 及び金型温度 150°C で行う。射出圧は 1270 bar (127 MPa) であり、保持圧力は 42.5 bar (42.5 MPa) である。

【0213】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

50

【0214】

(実施例7) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、射出速度120mm／秒で行う。

【0215】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0216】

(実施例8) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、金型温度175で行う。

10

【0217】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0218】

(実施例9) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、射出速度120mm／秒及び金型温度175で行う。

【0219】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

20

【0220】

(実施例10) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、射出速度20mm／秒、金型温度175及び溶融温度265で行う。射出圧は1300bar(130MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。

【0221】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

30

【0222】

(実施例11) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、射出速度175及び金型温度265で行う。射出圧は1300bar(130MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。

【0223】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

40

【0224】

(実施例12) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例6にしたがって行う。射出成型は、実施例6に記載のようにして、射出速度120mm／秒、金型温度175及び溶融温度265で行う。射出圧は1290bar(12.9MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。

【0225】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0226】

(実施例13) :

二軸押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX(Nuremberg, G

50

ermany))に、ポリアミド PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12 (A. Schulman (Kerpen, Germany))を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例 1 a) からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダーを介して添加する。温和なスクリュー構成 2 が使用される。スクリュー速度を 300 RPM に設定し、毎時 6 kg のスループットを実行し、毎時 1.84 kg の PA 6 をメインフィーダから、及び 500 μm 未満のふるい分級物からの毎時 4.16 kg の窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイドフィーダーから投与する。PA 6 化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、50 体積%である。アルミニケイ酸塩 50 体積%有する第 2 の PA 6 化合物を生成する。この目的を達成するために、二軸押出機において、毎時 1.44 kg の PA 6 をメインフィーダから、毎時 4.56 kg の平均粒径 d_{50} 6.3 μm のアルミニケイ酸塩 Trefil 1360-400 (Quarzwerke (Frechen, Germany)) をサイドフィーダーから投入する。アルミニケイ酸塩は、3.6 g / cm の密度を有し、熱伝導率は、14 W / m · K (14 W / m · K) である。X 線回折法によると、アルミニケイ酸塩の主相はカイアナイト (Al_2SiO_5) である。

10

【0227】

得られた化合物はそれぞれ、2つの 3 mm ノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、化合物顆粒を形成するように個別に細断される。

【0228】

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む得られた化合物顆粒とアルミニケイ酸塩を、化合物顆粒混合物中に 10 体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片と 40 体積%のアルミニケイ酸塩が存在するように混合する。混合比は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む化合物顆粒 16 重量%と、アルミニケイ酸塩を含む化合物顆粒 84 重量%と、に相当する。化合物顆粒混合物を、その後、射出成形機 (Krauss Maffei KM 80-220 C2) において射出成型して $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法の 2 mm の薄いプレートを形成する。射出速度は 120 mm / 秒、金型温度は 80 °C、及び溶融温度は 250 °C である。射出圧は 1800 bar (180 MPa) であり、保持圧力は 1000 bar (100 MPa) である。

20

【0229】

熱電導率測定は、実施例 1 に記載の通りに行う。表 1 には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

30

【0230】

(実施例 14) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製、配合及び射出成型は、実施例 13 にしたがって行い、各個々の化合物から得た化合物顆粒混合物を、PA 6 化合物中において窒化ホウ素ハイブリッド薄片 20 体積%及びアルミニケイ酸塩 30 体積%の割合が得られるように混合する。熱電導率測定は、実施例 1 に記載の通りに行う。表 1 には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0231】

(実施例 15) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製、配合及び射出成型は、実施例 13 にしたがって行い、各個々の化合物から得た化合物顆粒混合物を、窒化ホウ素ハイブリッド薄片 30 体積%及びアルミニケイ酸塩 20 体積%の割合が得られるように混合する。射出成型は、実施例 13 に記載のようにして、射出速度 70 mm / 秒及び金型温度 175 °C で行う。射出圧は 1300 bar (130 MPa) であり、保持圧力は 425 bar (42.5 MPa) である。熱電導率測定は、実施例 1 に記載の通りに行う。表 1 には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

40

【0232】

(実施例 16) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製及び配合は、実施例 13 にしたがって行い、各個々

50

の化合物から得た化合物顆粒混合物を、それが窒化ホウ素ハイブリッド薄片40体積%を含有しかつアルミニノケイ酸塩10体積%が得られるように混合する。射出成型は、実施例13に記載のようにして、射出速度70mm/秒及び金型温度175で行う。射出圧は1300bar(130MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0233】

(実施例17) :

二軸押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX(Nuremberg, Germany))に、ポリアミドPA 6(Schulamid(登録商標)6 NV 12(A.Schulman(Kerpen, Germany))を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例1a)からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダーを介して添加する。温和なスクリュー構成2が使用される。スクリュー速度を300RPMに設定し、毎時6kgのスループットを実行し、毎時1.84kgのPA 6をメインフィーダから、及び500μm未満のふるい分級物からの毎時4.16kgの窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイドフィーダーから投与する。PA 6化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、50体積%である。ガラス繊維50体積%有する第2のPA 6化合物を生成する。この目的のために、二軸押出機には、毎時2.05kgのPA 6をメインフィーダから、そして毎時3.95kgのガラス繊維をサイドフィーダーから投入する。使用されるガラス繊維は、熱可塑性ポリマー強化用の、直径14μm及び繊維長4.5mmを有する標準的な市販のガラス繊維である。残留水分は0.1%未満である。ガラス繊維はシランされ、シラン含量は0.65重量%である。

【0234】

得られた化合物はそれぞれ、2つの3mmノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、化合物顆粒を形成するように個別に細断される。

【0235】

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む得られた化合物顆粒とガラス繊維を、化合物顆粒混合物中に20体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片と30体積%のガラス繊維が存在するように混合する。混合比は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む化合物顆粒43重量%と、ガラス繊維を含む化合物顆粒57重量%と、に相当する。化合物顆粒混合物を、その後、射出成形機(Krauss Maffei KM 80-220 C2)において射出成型して $80 \times 80 \times 2\text{ mm}^3$ の寸法の2mmの薄いプレートを形成する。射出速度は120mm/秒、金型温度は175、及び溶融温度は265である。可塑化処理中のスクリュー速度は80RPMであり、射出圧は1300bar(130MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。熱電導率測定には2mmの薄いプレートを使用する。

【0236】

引張強度測定には、引張試験片(試料の全幅20mm、試験幅10mm、試料全長170mm、試験長80mm、試料厚4mm)を射出成形する。射出速度は120mm/秒、金型温度は175、及び溶融温度は265である。可塑化装置のスクリュー速度は80RPMであり、射出圧は1300bar(130MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5MPa)である。引張強度はDIN EN ISO 527にしたがって求める。

【0237】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

【0238】

(実施例18) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製、配合及び射出成型は、実施例17にしたがって行

10

20

30

40

50

い、各個々の化合物から得た化合物顆粒混合物を、窒化ホウ素ハイブリッド薄片30体積%及びガラス纖維20体積%が得られるように混合する。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

【0239】

(実施例19) :

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製、配合及び射出成型は、実施例17にしたがって行い、各個々の化合物から得た化合物顆粒混合物を、窒化ホウ素ハイブリッド薄片40体積%及びガラス纖維10体積%が得られるように混合する。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

10

【0240】

(実施例20) :

二軸押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX(Nuremberg, Germany))に、ポリアミドPA 6(Schulamid(登録商標)6 NV 12(A. Schulman(Kerpen, Germany))を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例1a)からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダーを介して添加する。温かなスクリュー構成2が使用される。スクリュー速度を300 RPMに設定し、毎時6kgのスループットを実行し、毎時1.84kgのPA 6をメインフィーダから、及び500μm未満のふるい分級物からの毎時4.16kgの窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイドフィーダーから投与する。PA 6化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、50体積%である。ガラス纖維50体積%有する第2のPA 6化合物を生成する。この目的のために、二軸押出機には、毎時2.05kgのPA 6をメインフィーダから、そして毎時3.95kgのガラス纖維をサイドフィーダーから投入する。実施例17で使用したような標準的な市販のガラス纖維を使用する。アルミニノケイ酸塩50体積%有する第3のPA 6化合物を生成する。この目的のために、二軸押出機には、毎時1.44kgのPA 6をメインフィーダから、そして毎時4.56kgのアルミニノケイ酸塩(実施例17と対比して)をサイドフィーダーから投入する。

20

【0241】

得られた化合物は、2つの3mmノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、化合物顆粒を形成するように個別に細断される。

30

【0242】

得られた化合物顆粒を、化合物顆粒混合物中に20体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、15体積%のガラス纖維及び15体積%のアルミニノケイ酸塩が含まれるように混合する。混合比は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む化合物顆粒38重量%と、アルミニノケイ酸塩を含む化合物顆粒36重量%と、ガラス纖維を含む化合物顆粒26重量%と、に相当する。化合物顆粒混合物を、その後、射出成形機(Krauss Maffei KM 80-220 C2)において射出成型して $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法の2mmの薄いプレートを形成する。射出速度は120mm/秒、金型温度は175、及び溶融温度は265である。可塑化処理中のスクリュー速度は80 RPMであり、射出圧は1100bar(110 MPa)であり、保持圧力は425bar(42.5 MPa)である。熱電導率測定には2mmの薄いプレートを使用する。

40

【0243】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0244】

参照例1 :

二軸押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX(Nuremberg, Germany))に、ポリアミドPA 6(Schulamid(登録商標)6 NV

50

12 (A. Schulman (Kerpen, Germany))を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例1a)からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダーを介して添加する。標準的なスクリュー構成1が使用される。スクリュー速度を300RPMに設定し、毎時6kgのスループットを実行し、毎時3.05kgのPA-6をメインフィーダから、及び500μm未満のふるい分級物からの毎時2.95kgの窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイドフィーダーから投与する。得られた化合物は、2つの3mmノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、30体積%である。

【0245】

10

得られた化合物顆粒を、射出成形機(Engel e-motion)において射出成型して80×80×2mm³の寸法の2mmの薄いプレートを形成する。射出速度は250mm/秒であり、金型温度は90であり、及び溶融温度は275である。

【0246】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0247】

参考例2：

配合は参考例1にしたがって行い、毎時1.84kgのPA-6はメインフィーダから、毎時4.16kgの窒化ホウ素ハイブリッド薄片はサイドフィーダーから投与する。実施例1の窒化ホウ素ハイブリッド薄片を使用する。射出成型は参考例1にしたがって行う。

【0248】

熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果を示す。

【0249】

参考例3：

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例17にしたがって行う。射出成型は実施例17にしたがって行う。ただし、射出速度は40mm/秒であり、金型温度は80であり、及び溶融温度は250である。射出圧は820bar(82MPa)であり、保持圧力は500bar(50MPa)である。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

【0250】

参考例4：

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例18にしたがって行う。射出成型は、実施例18にしたがって行うが、射出速度は40mm/秒であり、金型温度は80であり、溶融温度は250である。射出圧は900bar(90MPa)であり、保持圧力は480bar(48MPa)である。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

【0251】

参考例5：

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の作製と配合は、実施例19にしたがって行う。射出成型は、実施例19にしたがって行うが、射出速度は40mm/秒であり、金型温度は80であり、溶融温度は250である。射出圧は1000bar(100MPa)であり、保持圧力は410bar(41MPa)である。熱電導率測定は、実施例1に記載の通りに行う。表1には、射出成型パラメータ及び熱電導率測定結果に加えて、引張強度も示す。

【0252】

【表1】

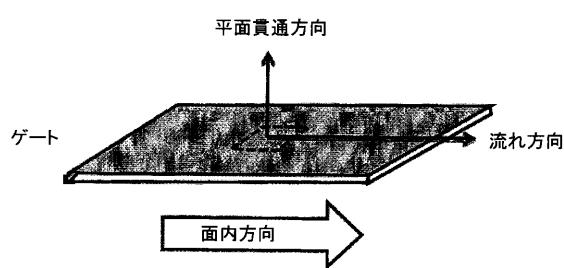
実施例 No.	[体積%]	[体積%]	アルミノケイ 酸塩	ガラス纖維	射出速度 [mm/秒]	溶融温度 [°C]	金型温度 [°C]	平面貫通 方向熱伝導率 [W/m·K] (W/m·°C)]		面内方向 熱伝導率 [W/m·K] (W/m·°C)]	引張強度 [MPa]
								[W/m·K]	[W/m·°C]		
1	30	0	0	0	20	250	90	1.7	(1.7)	3.6	(3.6)
2	30	0	0	0	70	250	90	1.5	(1.5)	3.7	(3.7)
3	30	0	0	0	120	250	90	1.4	(1.4)	3.7	(3.7)
4	30	0	0	0	20	250	150	1.5	(1.5)	3.7	(3.7)
5	30	0	0	0	120	250	150	1.3	(1.3)	3.3	(3.3)
6	50	0	0	0	70	250	150	4.0	(4.0)	5.2	(5.2)
7	50	0	0	0	120	250	150	3.8	(3.8)	4.0	(4.0)
8	50	0	0	0	70	250	175	4.1	(4.1)	5.0	(5.0)
9	50	0	0	0	120	250	175	3.9	(3.9)	6.9	(6.9)
10	50	0	0	0	20	265	175	3.7	(3.7)	6.0	(6.0)
11	50	0	0	0	70	265	175	3.3	(3.3)	8.1	(8.1)
12	50	0	0	0	120	265	175	3.0	(3.0)	7.8	(7.8)
13	10	40	0	0	120	250	80	1.9	(1.9)	2.9	(2.9)
14	20	30	0	0	120	250	80	2.3	(2.3)	3.9	(3.9)
15	30	20	0	0	70	250	175	2.6	(2.6)	5.1	(5.1)
16	40	10	0	0	70	250	175	2.8	(2.8)	5.8	(5.8)
17	20	0	30	120	265	175	1.3	(1.3)	1.8	(1.8)	12.3
18	30	0	20	120	265	175	1.8	(1.8)	3.1	(3.1)	8.9
19	40	0	10	120	265	175	2.4	(2.4)	5.5	(5.5)	6.3
20	20	15	15	120	265	175	1.8	(1.8)	3.5	(3.5)	n. d.

参考例 No.	[体積%]	[体積%]	アルミノケイ 酸塩	ガラス纖維	射出速度 [mm/秒]	溶融温度 [°C]	金型温度 [°C]	平面貫通 方向熱伝導率 [W/m·K] (W/m·°C)]		面内方向 熱伝導率 [W/m·K] (W/m·°C)]	引張強度 [MPa]
								[W/m·K]	[W/m·°C]		
1	30	0	0	0	250	275	90	1.2	(1.2)	2.9	(2.9)
2	50	0	0	0	250	275	90	2.6	(2.6)	4.9	(4.9)
3	20	0	30	40	250	80	n. d.	n. d.	n. d.	11.3	
4	30	0	20	40	250	80	n. d.	n. d.	n. d.	7.9	
5	40	0	10	40	250	80	n. d.	n. d.	n. d.	5.5	

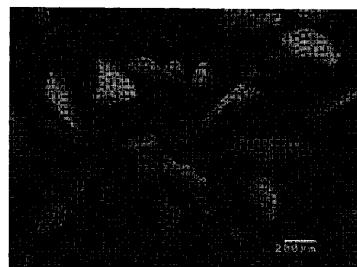
*) n. d. =測定せず

表1:

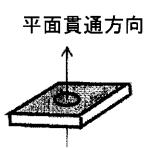
【図1】

Figure 1:

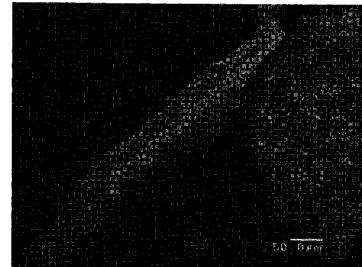
【図3 a】

Figure 3a:

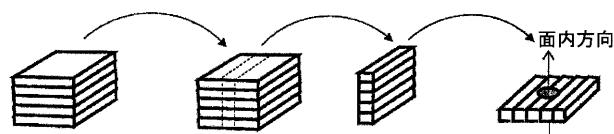
【図2 a】

Figure 2a:

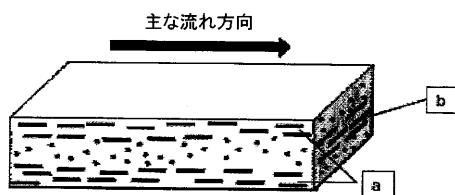
【図3 b】

Figure 3b:

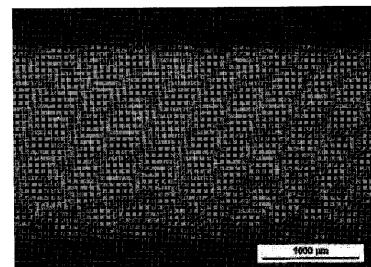
【図2 b】

Figure 2b:

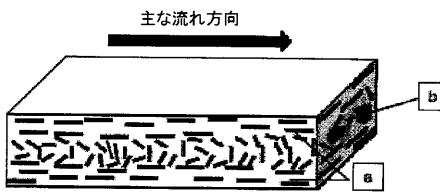
【図4】

Figure 4:

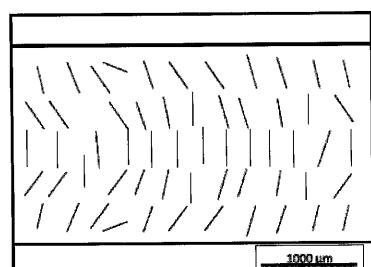
【図6 a】

Figure 6a:

【図5】

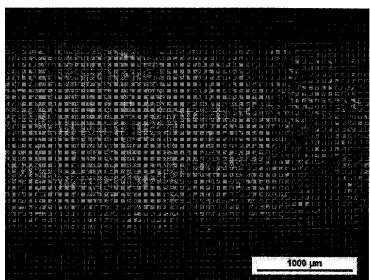
Figure 5:

【図6 b】

Figure 6b:

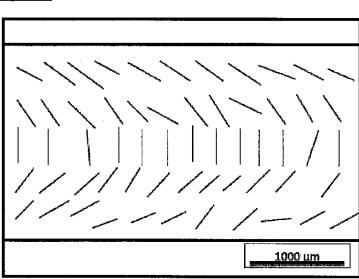
【図 7 a】

Figure 7a:



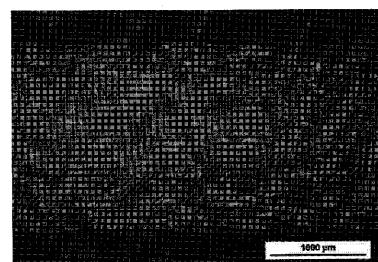
【図 7 b】

Figure 7b:



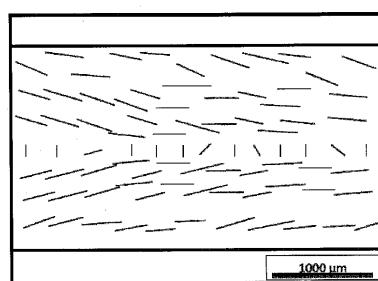
【図 8 a】

Figure 8a:



【図 8 b】

Figure 8b:



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2014/071836

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B29C45/00
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B29C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Ralf Damasch: "417 5.4 Bornitrid als multifunktioneller Füllstoff in Polymersystemen", 7 May 2007 (2007-05-07), XP055109849, Retrieved from the Internet: URL: http://www.keramverband.de/keramik/pdf/07/sem07-13.pdf [retrieved on 2014-03-25] pages 453-455 -----	1-16, 19-24,26
X	DE 10 2010 050900 A1 (ESK CERAMICS GMBH & CO KG [DE]) 10 May 2012 (2012-05-10) paragraphs [0056], [0057], [0059] ----- -/-	25

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

3 February 2015

09/02/2015

Name and mailing address of the ISA/
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Tonelli, Enrico

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2014/071836

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>Jae-Do Nam ET AL: "Development of smart heat sink composites using hybrid fillers", , 16 July 2012 (2012-07-16), XP055115174, DOI: 10.1002/spepro.004317 Retrieved from the Internet: URL:http://www.4spepro.org/pdf/004317/004317.pdf [retrieved on 2014-04-24]</p> <p>-----</p> <p>A "Bornitrid - Boron nitride Fuelstoffe fuer polymere", , 27 April 2012 (2012-04-27), XP055115327, Retrieved from the Internet: URL:http://web.archive.org/web/20120427094521/http://www.henze-bnp.de/datasheets/2012_03_19_HeBoFill_Polymer_deu.pdf [retrieved on 2014-04-25] the whole document</p> <p>-----</p> <p>A Carl Hanser Verlag ET AL: "Wärme besser leiten", , 31 December 2009 (2009-12-31), pages 55-60, XP055111083, DOI: EP131884108 Retrieved from the Internet: URL:https://www.kunststoffe.de/storage/assets/538981/storage/master/file/5806046/download/Wärme_besser_leiten.pdf [retrieved on 2014-03-31]</p> <p>table 2</p> <p>-----</p>	1-26
		1-26
		1-26

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2014/071836

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 102010050900 A1	10-05-2012	CN 103249695 A DE 102010050900 A1 EP 2637985 A1 JP 2013543834 A KR 20130105682 A US 2012114905 A1 WO 2012062627 A1	14-08-2013 10-05-2012 18-09-2013 09-12-2013 25-09-2013 10-05-2012 18-05-2012

フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,R0,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,D0,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,JP,KE,KG,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US

(74) 代理人 100128495

弁理士 出野 知

(72) 発明者 クリシュナ ウィベル

ドイツ連邦共和国，87448 パルテンホーフェン，ツェットラーシュトラーセ 11

(72) 発明者 ローベルト シェーデル

ドイツ連邦共和国，87435 ケンプテン，フロデンベルク 9

F ターム(参考) 4F206 AA09 AA11 AA23 AA28 AA29 AA31 AA32 AA34 AB01 AB27

AH33 AP051 AP054 AP07 AR061 AR064 AR08 JA07 JM04 JN11

JQ81

(54) 【発明の名称】ポリマー／窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成される構成部品、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物、そのような構成部品を生成するための方法及びその使用