(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0168304
(43) 공개일자 2024년11월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08J 5/18 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
C08K 5/5415 (2006.01) *C08K 5/5419* (2006.01)
C08L 83/04 (2006.01) *H01L 23/373* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08J 5/18 (2021.05)
C08K 3/013 (2018.01)
(21) 출원번호 10-2024-7027819
(22) 출원일자(국제) 2023년03월28일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년08월20일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2023/012649
(87) 국제공개번호 WO 2023/190585
국제공개일자 2023년10월05일
(30) 우선권주장
JP-P-2022-054381 2022년03월29일 일본(JP)

(71) 출원인
세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸메 10반 1고
(72) 발명자
구로오 겐타
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤 내
이와자키 히로미치
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤 내
구도 히로키
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤 내
(74) 대리인
(유)한양특허법인

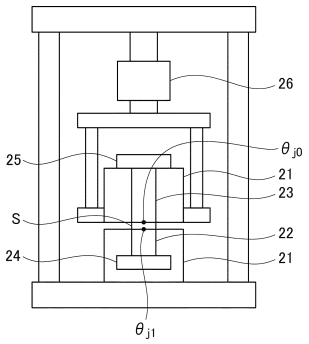
전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 **열전도성 시트, 그 장착 방법 및 제조 방법**

(57) 요 약

실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃ 및 승온 속도 2℃/분의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만인, 열전도성 시트.

대 표 도



(52) CPC특허분류
C08K 5/5415 (2013.01)
C08K 5/5419 (2013.01)
C08L 83/04 (2013.01)
H01L 23/3733 (2013.01)
C08K 2201/001 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과,

상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고,

상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며,

압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃, 및 승온 속도 2℃/분의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만인,

열전도성 시트.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점이, 23℃보다 높고 80℃ 이하인, 열전도성 시트.

청구항 3

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 알킬 실리콘 화합물 (B)가 탄소수 8~26의 알킬기를 구비하는 실리콘 화합물인, 열전도성 시트.

청구항 4

청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 있어서,

상기 열전도성 충전재 (C)가, 이방성 충전재를 포함하고, 상기 이방성 충전재가 두께 방향으로 배향되는, 열전도성 시트.

청구항 5

청구항 1 내지 청구항 4 중 어느 한 항에 있어서,

상기 열전도성 충전재 (C)의 체적 충전율이 30~85체적%인, 열전도성 시트.

청구항 6

청구항 1 내지 청구항 5 중 어느 한 항에 있어서,

추가로 상용성 물질 (D)를, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 0.1~18질량부를 포함하는, 열전도성 시트.

청구항 7

청구항 1 내지 청구항 6 중 어느 한 항에 기재된 열전도성 시트와, 방열체를 구비하고, 상기 열전도성 시트가 상기 방열체의 표면에 장착되는, 방열 부재.

청구항 8

실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃, 및 승온 속도 2℃/분의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만인 열전도성 시트를, 제

1 부재의 표면에 배치하는 공정과,

상기 열전도성 시트를 가열하는 공정과,

상기 열전도성 시트의 상기 제1 부재 측의 면과는 반대측의 면에 제2 부재를 배치하고, 또한 상기 열전도성 시트를 가압하여, 상기 제1 및 제2 부재 사이에 상기 열전도성 시트를 부착하는 공정

을 구비하는, 열전도성 시트의 장착 방법.

청구항 9

청구항 8에 있어서,

상기 알킬 실리콘 화합물 (B)가 23℃보다 높은 융점을 갖고, 상기 열전도성 시트를, 상기 융점 이상으로 가열하는, 열전도성 시트의 장착 방법.

청구항 10

경화성 실리콘 조성물 (A1)과, 알킬 실리콘 화합물 (B)와, 열전도성 충전재 (C)와, 상용성 물질 (D)를 적어도 혼합시켜, 혼합 조성물을 얻는 공정과,

상기 혼합 조성물을 가열에 의해 경화하는 공정

을 구비하는, 열전도성 시트의 제조 방법.

청구항 11

청구항 10에 있어서,

상기 상용성 물질 (D)가 알콕시실란 화합물인, 열전도성 시트의 제조 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은, 열전도성 시트에 관한 것이고, 예를 들어, 발열체와 방열체 사이에 배치하여 사용되는 열전도성 시트에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 컴퓨터, 자동차 부품, 휴대 전화 등의 전자 기기에서는, 반도체 소자나 기계 부품 등의 발열체로부터 발생하는 열을 방열하기 위해서 히트 싱크 등의 방열체가 일반적으로 이용된다. 방열체로의 열의 전열 효율을 높이는 목적으로, 발열체와 방열체 사이에는, 열전도성 시트가 배치되는 것이 알려져 있다.

[0003] 열전도성 시트는, 전도 효율을 보다 한층 높이기 위해서 발열체, 방열체에 대한 추종성이 요구된다. 따라서, 가열에 의해 연화 내지 용융되는, 이른바 페이즈 체인지 시트로 불리는 상 변화형의 열전도성 시트가 검토되고 있다. 예를 들어, 특허문헌 1에서는, 알킬기 도입 실리콘 오일과, α-올레핀과, 열전도성 필러를 적어도 포함하고, 상온에서는 퍼티(putty)형이며, 가열에 의해 연화되어 유동화하는 방열 시트가 개시되어 있다.

[0004] 또, 열전도성 시트로는 고분자 겔을 이용한 열전도성 시트도 알려져 있다. 예를 들어, 특허문헌 2에는, 고분자 겔과, 상온에서는 고형 내지 페이스트형으로 가열하면 액체가 되는 화합물과, 열전도성 필러를 포함하는 조성물로 이루어지는 방열 시트이며, 가열에 의해서 연화되는 것을 특징으로 하는 열연화 방열 시트가 개시되어 있다.

[0005] 또, 특허문헌 3에는, 열전도성 수지층을 포함하는 열전도성 시트이며, 열전도성 수지층이, 왁스를 포함하는 바인더 수지와, 상기 바인더 수지 중에 분산되는 열전도성 충전재를 포함하는 열전도성 시트에 있어서, 바인더 수지에 실리콘 겔이 사용되는 것이 개시되어 있다.

[0006] 이상의 각 특허문헌 1~3에 개시되는 페이즈 체인지 시트나, 실리콘 겔 등의 고분자 겔을 이용한 열전도성 시트는, 유연성이 높기 때문에, 방열체, 발열체에 대한 추종성이 양호하고, 그에 따라, 열전도 성능을 높이는 것이 가능해진다.

선행기술문헌

특허문헌

[0007] (특허문헌 0001) 일본국 특허공개 2004-331835호 공보

(특허문헌 0002) 일본국 특허공개 2002-234952호 공보

(특허문헌 0003) 일본국 특허공개 2001-291807호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 종래의 열전도성 시트는, 가교 구조를 갖는 유기 고분자를 매트릭스로 하는 경우가 많으며, 그 경우, 유기 고분자의 특성에 따라, 온도 변화에 의해 고온이 되면 시트가 팽창하는 것이 알려져 있다. 또, 일반적으로 전자 기기 내의 각 부재(기판, 발열체, 및 방열체 등)도 고온시에는 일정한 팽창을 한다. 그로 인해, 열전도성 시트를 예를 들어, 발열체 및 방열체 사이에 장착하여 사용한 경우에는, 고온시에 있어서의 각 부재의 팽창에 의해, 발열체 및 방열체에 대한 부하가 높아져, 여러 가지 문제의 원인이 될 수 있다. 또, 최근, 전자 기기의 소형화가 진행됨에 따라 전자 기기 내의 각 부재의 강성도 낮게 설정되게 되어 있어, 작은 부하도 염려되게 되었다.

[0009] 그래서, 본 발명은, 열전도성이 우수하고, 또한 고온시에 있어서의 팽창을 억제하며, 발열체 및 방열체 등에 대한 부하를 저감 가능한 열전도성 시트를 제공하는 것을 과제로 한다.

과제의 해결 수단

[0010] 본 발명자는, 열심히 검토한 결과, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량을 특정 범위로 하며, 또한 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 일정 범위인 열전도성 시트에 의해 상기 과제를 해결할 수 있는 것을 찾아내어, 이하의 본 발명을 완성시켰다. 즉, 본 발명은, 이하의 [1]~[11]을 제공한다.

[0011] [1] 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 승온 속도 2℃/분, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만인, 열전도성 시트.

[0012] [2] 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점이, 23℃보다 높고 80℃ 이하인 상기 [1]에 기재된 열전도성 시트.

[0013] [3] 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)가 탄소수 8~26의 알킬기를 구비하는 실리콘 화합물인 상기 [1] 또는 [2]에 기재된 열전도성 시트.

[0014] [4] 상기 열전도성 충전재 (C)가, 이방성 충전재를 포함하고, 상기 이방성 충전재가 두께 방향으로 배향되는 상기 [1]~[3] 중 어느 하나에 기재된 열전도성 시트.

[0015] [5] 상기 열전도성 충전재 (C)의 체적 충전율이, 30~85체적%인 상기 [1]~[4] 중 어느 하나에 기재된 열전도성 시트.

[0016] [6] 추가로 상용성 물질 (D)를, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 0.1~18질량부를 포함하는, [1]~[5] 중 어느 하나에 기재된 열전도성 시트.

[0017] [7] 상기 [1]~[6] 중 어느 하나에 기재된 열전도성 시트와, 방열체를 구비하고, 상기 열전도성 시트가 상기 방열체의 표면에 장착되는 방열 부재.

[0018] [8] 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 승온 속도 2℃/분, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만인 열전도성 시트를,

제1 부재의 표면에 배치하는 공정과, 상기 열전도성 시트를 가열하는 공정과, 상기 열전도성 시트의 상기 제1 부재 측의 면과는 반대측의 면에 제2 부재를 배치하고, 또한 상기 열전도성 시트를 가압하여, 상기 제1 및 제2 부재 사이에 상기 열전도성 시트를 부착하는 공정을 구비하는 열전도성 시트의 장착 방법.

[0019] [9] 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)가 23℃보다 높은 융점을 갖고, 상기 열전도성 시트를, 상기 융점 이상으로 가열하는 상기 [8]에 기재된 열전도성 시트의 장착 방법.

[0020] [10] 경화성 실리콘 조성물 (A1)과, 알킬 실리콘 화합물 (B)와, 열전도성 충전재 (C)와, 상용성 물질 (D)를 적어도 혼합시켜, 혼합 조성물을 얻는 공정과, 상기 혼합 조성물을 가열에 의해 경화하는 공정을 구비하는 열전도성 시트의 제조 방법.

[0021] [11] 상기 상용성 물질 (D)가 알콕시실란 화합물인 상기 [10]에 기재된 열전도성 시트의 제조 방법.

발명의 효과

[0022] 본 발명에 의하면, 열전도성이 우수하고, 또한 고온시에 있어서의 팽창을 억제하여, 발열체 및 방열체 등에 대한 부하를 저감 가능한 열전도성 시트를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0023] 도 1은 열저항을 측정하는 측정기를 설명하는 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0024] [열전도성 시트]

[0025] 이하, 본 발명의 실시 형태에 따르는 열전도성 시트에 대해 상세하게 설명한다.

[0026] 본 발명의 열전도성 시트는, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 승온 속도 2℃/분, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만이다.

[0027] 본 발명의 열전도성 시트는, 이상의 구성을 가짐으로써, 열전도성이 우수하고, 또한 고온에서 사용할 때의 팽창을 억제할 수 있다.

[0028] <팽창률 X>

[0029] 본 발명의 열전도성 시트는, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃, 및 승온 속도 2℃/분의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만이다. 팽창률 X가 0%를 초과하면, 고온의 팽창을 억제하지 못하여, 발열체 및 방열체 등으로의 부하가 커진다. 팽창률 X가 -2.0% 미만이면, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 배합량이 많아지는 것 등에 의해, 열전도성 시트 표면에 알킬 실리콘 화합물이 브리드 아웃하거나, 혹은 실리콘 매트릭스와 알킬 실리콘 화합물이 균일하게 분산되기 어려워져, 양자가 분리되어 펌프 아웃이 발생하기 쉬워진다. 또, 알킬 실리콘 화합물의 융점 이하의 온도에 있어서 열전도성 시트가 취약해지는 경향이 있다. 또한, 열전도성 시트의 열저항값이 불균일해지기 쉬워진다.

[0030] 또한, 본 발명에 있어서, 팽창률이 크다라는 것은, 양의 수치 측으로의 크기를 의미한다. 예를 들어 0%와 -2.0%는, -2.0%인 쪽이 “팽창률이 작다” 혹은 “팽창을 억제할 수 있다”는 것을 의미한다.

[0031] 열전도성 시트의 고온에서의 팽창을 억제하고, 또한 열전도성을 높이는 관점에서, 팽창률 X는 바람직하게는 -1.5% 이상 -0.01% 이하이며, 보다 바람직하게는 -1.2% 이상 -0.3% 이하이고, 더 바람직하게는 -1.0% 이상 -0.5% 이하이다.

[0032] 팽창률 X는, 열전도성 시트에 포함되는 후술하는 알킬 실리콘 화합물 (B)의 종류 및 양 등을 조절함으로써, 원하는 값으로 조정할 수 있다. 또, 알킬 실리콘 화합물 (B) 이외에도, 실리콘 매트릭스의 경도, 열전도성 충전재의 형상이나 충전량, 상용성 물질 (D)의 충전량이나 휘발량에 의해서 조정할 수 있다.

[0033] 보다 구체적으로는, 팽창률 X를 작게 조정하기 위해서는, 예를 들어, 융점이 낮은 알킬 실리콘 화합물을 이용하거나, 알킬 실리콘 화합물의 배합량을 많게 하거나, 실리콘 매트릭스의 경도를 낮추거나, 열전도성 충전재의 충

전량을 많게 하는 것, 상용성 물질 (D)를 배합하여 열전도성 시트에 상용성 물질을 잔존시키는 방법 등을 채용할 수 있다. 또, 열전도성 충전재로서 이방성 충전재를 이용하여 소정 방향으로 배향시킴으로써, 소정 방향의 팽창률이 커지지 않게 조정할 수 있다.

[0034] 또한, 열전도성 시트의 유연성과 열전도성을 높이는 관점에서는, 열전도성 충전재의 충전량을 후술의 범위 내로 하면서, 실리콘 매트릭스의 경도를 너무 높이지 않고, 알킬 실리콘 화합물의 배합량을 조정함으로써, 팽창률 X를 상기 범위로 조정하는 것이 바람직하다.

[0035] 본 발명에 있어서의 팽창률 X는, 열전도성 시트의 두께 방향의 팽창률을 의미하고, 열기계 분석 장치(TMA)에 의해, 이하와 같이 측정된다.

[0036] 우선, 열전도성 시트를 실온하(23℃)에서, 압축 하중 0.01N에 의해 압축시킨 상태로 한다. 이 때의 열전도성 시트의 두께를 초기 두께(㎜)로 한다.

[0037] 이어서, 상기 압축 하중을 부가시킨 채, 30℃에서 80℃까지 승온 속도 2℃/분으로 승온시켜, 30℃에 있어서의 팽창률(%)과 80℃에 있어서의 팽창률(%)을 각각 구하고, 이하의 식에 의해 본 발명에 있어서의 팽창률 X를 구한다.

[0038] 팽창률 X(%)=80℃에 있어서의 팽창률(%)-30℃에 있어서의 팽창률(%)

[0039] 또한, 30℃에 있어서의 팽창률은, 열전도성 시트의 30℃에 있어서의 두께(㎜)와, 초기 두께(㎜)로부터 이하와 같이 구한다. 마찬가지로, 80℃에 있어서의 팽창률은, 열전도성 시트의 80℃에 있어서의 두께(㎜)와, 초기 두께(㎜)로부터 이하와 같이 구한다.

[0040] 30℃에 있어서의 팽창률(%)=100×[(30℃에 있어서의 두께-초기 두께)/초기 두께]

[0041] 80℃에 있어서의 팽창률(%)=100×[(80℃에 있어서의 두께-초기 두께)/초기 두께]

[0042] <실리콘 매트릭스 (A)>

[0043] 실리콘 매트릭스 (A)는, 실온(23℃) 및 고온하(80℃) 중 어느 것에 있어서도 유동성을 갖지 않는 실리콘이여도 된다. 실리콘 매트릭스 (A)는, 유동성을 갖지 않으므로, 상온 및 고온하에 있어서 열전도성 시트의 보형성을 확보할 수 있다.

[0044] 또, 본 발명의 실리콘 매트릭스 (A)로는 예를 들어 실리콘 고무를 사용하면 된다. 실리콘 고무를 사용함으로써 압축 변형이 용이해져, 발열체와 방열체 사이에 부착하기 쉬워진다. 또, 열전도성 시트에 일정한 압축 특성을 부여할 수 있으므로, 신뢰성을 높일 수 있다.

[0045] 실리콘 매트릭스 (A)에 사용하는 실리콘으로는, 축합 반응형, 부가 반응형 중 어느 하나여도 되는데, 열전도성 충전재를 고충전하기 쉽고, 또 촉매 등에 의해 경화 온도를 용이하게 조정할 수 있는 점에서, 부가 반응형이 바람직하다. 실리콘 매트릭스 (A)는, 예를 들어, 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화함으로써 얻을 수 있다. 경화성 실리콘 조성물 (A1)은, 예를 들어 주제와 경화제로 이루어지면 된다.

[0046] 경화성 실리콘 조성물 (A1)은, 부가 반응형의 경우, 열전도성 충전재를 고충전하기 쉽다고 하는 관점에서, 주제로서의 알케닐기 함유 오르가노폴리실록산과 경화제로서의 하이드로젠오르가노폴리실록산을 함유하는 것이 바람직하다.

[0047] 또한, 경화성 실리콘 조성물 (A1)은, 경화 전은 액상인 것이 바람직하다. 경화성 실리콘 조성물 (A1)은, 경화 전에 액상임으로써, 열전도성 필러를 고충전하기 쉽고, 또, 알킬 실리콘 화합물 (B)를 경화성 실리콘 조성물 (A1) 중에 분산시키기 쉬워진다. 또한, 본 명세서에 있어서 액상이란, 상온(23℃), 1기압하에서 액체인 것을 말한다.

[0048] 또, 실리콘 매트릭스 (A)는, 열전도성 시트의 보형성을 확보할 수 있게 하기 위해서, 3차원 가교하고 있는 실리콘 매트릭스를 사용하는 것이 바람직하다. 그러기 위해서는, 예를 들어 부가 반응형의 경우, 1분자 중에 알케닐기를 적어도 3 이상 갖는 알케닐기 함유 오르가노폴리실록산, 또는 규소 원자에 부가하는 수소를 적어도 3 이상 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산을 함유하는 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화시키면 된다.

[0049] 실리콘 매트릭스 (A)의 함유량은, 열전도성 시트 전량에 대해서, 예를 들어 15~70체적% 정도이면 되고, 바람직하게는 17~50질량%, 보다 바람직하게는 20~39질량%이다.

[0050] <알킬 실리콘 화합물 (B)>

[0051] 본 발명의 열전도성 시트는, 알킬 실리콘 화합물 (B)를, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부 함유한다.

[0052] 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이 2.0질량부 미만이면, 열전도성 시트가 고온시에 팽창하기 쉬워지고, 발열체 및 방열체 등으로의 부하가 커져, 문제가 발생하기 쉬워진다. 또, 실온에 있어서 열전도성 시트의 강성이 낮아지는 경향이 있으며, 발열체 및 방열체에 붙일 때에 신장되기 쉬워져, 취급성이 악화된다.

[0053] 한편, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이 20질량부를 초과하면, 열전도성 시트 표면에 알킬 실리콘 화합물이 브리드 아웃하거나, 혹은 실리콘 매트릭스와 알킬 실리콘 화합물 (B)가 균일하게 분산되기 어려워져, 양자가 분리되어 펌프 아웃이 발생하기 쉬워진다. 또한, 열전도성 시트의 열저항값이 불균일해지기 쉬워진다. 또, 실온에 있어서 열전도성 시트가 단단해지는 경향이 있으며, 발열체 및 방열체에 붙일 때에 균열이나 깨짐이 발생하기 쉬워져, 취급성이 악화된다.

[0054] 이들 관점에서, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.5질량부 이상이 바람직하고, 4질량부 이상이 보다 바람직하며, 8질량부 이상이 더 바람직하고, 또, 18질량부 이하가 바람직하고, 15질량부 이하가 보다 바람직하다.

[0055] 또한, 실리콘 매트릭스 (A)는, 후술하는 경화성 실리콘 조성물 (A1)로부터 형성되는 것이다. 따라서, 후술하는 혼합 조성물에 있어서는, 경화성 실리콘 조성물 (A1)과 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대한, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 상기한 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량과 같아진다. 후술하는 열전도성 충전재 (C), 이방성 충전재, 및 비(非)이방성 충전재의 함유량도 동일하다.

[0056] 또, 바인더 성분은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)로 이루어지면 되는데, 본 발명의 효과를 저해하지 않는 범위이면, 실리콘 매트릭스 (A) 이외의 수지 성분이나, 알킬 실리콘 화합물 (B) 이외의 가소제 등을 바인더 성분으로서 함유해도 된다.

[0057] 본 발명에서 사용하는 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 실온에서 액상, 혹은, 일정의 온도(예를 들어, 23℃보다 높고 80℃ 이하의 온도)로 가열함으로써 용융되는 화합물을 사용하면 된다. 열전도성 시트는, 알킬 실리콘 화합물 (B)로서 액상 혹은 가열에 의해 용융되는 화합물을 특정량 함유함으로써, 고온 가열시에 유연성을 높일 수 있고, 또 상기한 원하는 팽창률 X로 조정하기 쉬워진다.

[0058] 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점은, 고온(예를 들어, 80℃) 가열시에 용융될 수 있는 관점에서, 바람직하게는 80℃ 이하이지만, 보다 바람직하게는 70℃ 이하, 더 바람직하게는 60℃ 이하, 보다 더 바람직하게는 50℃ 이하이다.

[0059] 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 실온, 1기압하에서 고체상인 것이 바람직하다. 실온에서 고체임으로써, 취급성을 높이고, 예를 들어 후술하는 절단 가공을 실온 근방의 온도에서 행할 때, 소정의 강성을 가짐으로써, 용이하게 열전도성 시트를 얻을 수 있다. 따라서, 알킬 실리콘 화합물의 융점은 상온(23℃)보다 높은 것이 바람직하고, 30℃ 이상인 것이 보다 바람직하며, 35℃ 이상인 것이 더 바람직하다.

[0060] 또, 상기 관점에서, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점은, 바람직하게는 23℃ 초과 80℃ 이하이며, 보다 바람직하게는 30℃ 이상 70℃ 이하이며, 더 바람직하게는 35℃ 이상 60℃ 이하이며, 보다 더 바람직하게는 35℃ 이상 50℃ 이하이다.

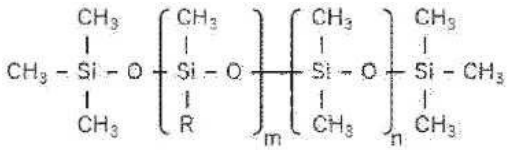
[0061] 또한, 알킬 실리콘 화합물의 융점은, 열중량 시차열 분석(TGDTA)을 이용하여 승온 속도 1℃/min로 측정한 DTA 곡선의 흡열 피크의 온도이다. 또, 알킬 실리콘 화합물이 혼합물인 경우에는, 융점은 상기 온도 범위 중의 최대의 흡열 피크로 한다.

[0062] 또한, 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 실리콘 매트릭스 (A)에 상용되지 않으며, 바인더 성분에 있어서, 실리콘 매트릭스 (A)가 바다 성분, 알킬 실리콘 화합물 (B)가 섬 성분이 되는 해도(海島) 구조가 된다고 추정된다. 바인더 성분이 해도 구조를 가짐으로써, 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 가열시에 연화, 용융, 저점도화 등 해도 실리콘 매트릭스 (A)에 의해서 계속 유지되고, 유연성을 높이면서도 펌프 아웃도 억제할 수 있다. 또, 실리콘 매트릭스 (A)가 바다 성분을 구성함으로써, 열전도성 시트는 소정의 반발 탄성을 구비하므로, 발열체, 또는 방열체와의 사이 등에 공기층이 생기지 않아 안정적으로 부착할 수 있다.

[0063] 알킬 실리콘 화합물로는, 주쇄에 폴리실록산 골격을 갖고, 또한 알킬기를 갖는 화합물을 들 수 있다. 당해 알

킬기는 규소 원자에 결합한 알킬기이며, 탄소수가 8 이상인 알킬기를 포함하는 것이 바람직하다.

[0064] 그 중에서도, 알킬 실리콘 화합물로는, 하기 식 (1)로 표시되는 알킬 실리콘 화합물이 바람직하다.



(1)

[0065]

[0066] 여기서, R은 탄소수 8 이상의 알킬기를 나타내고, m과 n은 m : n이 100 : 0~50 : 50의 범위가 되는 정수이다. 또, m+n은 20 이상 1000 이하의 정수이다.

[0067] 탄소수 8 이상의 알킬기는, 직쇄상의 알킬기여도 되고 분기상의 알킬기여도 되는데, 직쇄상의 알킬기인 것이 바람직하다.

[0068] 여기서, 상기 알킬기의 탄소수는 8~26의 범위가 바람직하고, 탄소수 12~22의 범위가 보다 바람직하다. R이 탄소수 8 이상의 알킬기인 경우에는 알킬 실리콘 화합물의 융점이 너무 낮아지는 것을 방지할 수 있다. 한편, R이 탄소수 26 이하의 알킬기인 경우에는, 80℃ 이하의 융점의 알킬 실리콘 화합물을 얻기 쉬워진다.

[0069] 또한, 본 명세서에 있어서, 「~」로 나타내는 범위는, 「~」의 전후에 기재되어 있는 하한의 수치 이상에서 상한의 수치 이하까지의 범위를 의미한다.

[0070] R은, 특별히 한정되지 않으나, 바람직하게는, 도데실기, 테트라데실기, 펜타데실기, 헥사데실기, 헵타데실기, 옥타데실기, 노나데실기, 에이코실기, 헨에이코실기, 도코실기 등이며, 보다 바람직하게는 옥타데실기이다.

[0071] 또, m : n은 100 : 0인 경우에는, 알킬 실리콘 화합물이 융점 이하의 온도에 있어서, 이른바 경질 수지에 가까운 성상이 되어, m : n이 50 : 50에 가까워질수록 왁스와 같은 성상이 된다. 바꾸어 말하면, m : n이 100 : 0인 알킬 실리콘 화합물을 적량 이용함으로써 열전도성 시트가 일정 정도 단단해져 취급성을 개선하기 쉬워진다.

[0072] 상기 알킬 실리콘 화합물은, 특히 바람직하게는 폴리옥타데실메틸실록산(R=18, m : n=100 : 0)이다.

[0073] 또한, 알킬 실리콘 화합물로는, 상기한 식 (1)로 표시되는 화합물 이외의 것이어도 되고, 예를 들어, 알킬기 이외의 치환기를 갖는 알킬 실리콘 화합물이어도 된다.

[0074] <열전도성 충전재 (C)>

[0075] 본 발명의 열전도성 시트는, 열전도성 충전재 (C)를 더 구비한다. 열전도성 충전재 (C)는, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분 중에 분산되고, 또한 바인더 성분에 유지되면 된다.

[0076] 열전도성 충전재는, 열전도성 시트의 두께 방향으로 배향되는 이방성 충전재를 함유하는 것이 바람직하다. 이에 따라, 열전도성 시트는, 열전도성을 높이기 쉬워진다. 두께 방향으로 배향되면, 압축률을 높이기 어려워지나, 본 발명에서는, 알킬 실리콘 화합물 (B)를 실리콘 매트릭스 (A) 중에 분산시킴으로써, 두께 방향의 압축률을 높일 수 있다.

[0077] 또한, 이방성 충전재는, 두께 방향으로 배향되는 경우, 그 장축 방향이 엄밀하게 두께 방향에 평행일 필요는 없고, 장축 방향이 다소 두께 방향에 대해서 기울어져 있어도 두께 방향으로 배향되는 것으로 한다. 구체적으로는, 장축 방향이 20° 미만 정도 기울어져 있는 것도 두께 방향으로 배향되고 있는 이방성 충전재로 하고, 그러한 이방성 충전재가, 열전도성 시트에 있어서, 대부분이면(예를 들어, 전체 이방성 충전재의 수에 대해서 60% 초과, 바람직하게는 80% 초과), 두께 방향으로 배향되는 것으로 한다.

[0078] 열전도성 충전재 (C)의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 바람직하게는 150~3000질량부, 보다 바람직하게는 200~2000질량부, 더 바람직하게는 300~1000질량부이다. 열전도성 충전재 (C)를 150질량부 이상으로 함으로써, 일정의 열전도성을 열전도성 시트에 부여할 수 있다. 또, 1500질량부 이하로 함으로써, 바인더 성분에 열전도성 충전재 (C)를 적절히 분산할 수 있다. 또, 후술하는 혼합 조성물의 점도가 필요 이상으로 높아지는 것도 방지할 수 있다.

[0079] 또, 열전도성 시트 전량에 대한 열전도성 충전재의 체적 충전율은, 바람직하게는 30~85체적%이고, 보다 바람직하게는 50~83체적%이며, 더 바람직하게는 61~80체적%이다. 체적 충전율을 상기 하한값 이상으로 함으로써, 일정의 열전도성을 열전도성 시트에 부여할 수 있다. 또, 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 시트의 제조가 용이

해진다.

[0080] (이방성 충전재)

[0081] 이방성 충전재는, 형상에 이방성을 갖는 충전재이며, 배향이 가능한 충전재이다. 이방성 충전재로는, 섬유 재료, 인편상(鱗片狀) 재료 등을 들 수 있다. 이방성 충전재는, 애스펙트비가 높은 것이고, 구체적으로는 애스펙트비가 2를 초과하는 것이며, 애스펙트비는 5 이상인 것이 바람직하다. 애스펙트비를 2보다 크게 함으로써, 이방성 충전재를 두께 방향 등의 한 방향으로 배향시키기 쉬워지고, 열전도성 시트의 두께 방향 등의 한 방향의 열전도성을 높이기 쉽다. 또, 애스펙트비의 상한은, 특별히 한정되지 않으나, 실용적으로는 100이다.

[0082] 또한, 애스펙트비란, 이방성 충전재의 단축 방향의 길이에 대한 장축 방향의 길이의 비이며, 섬유 재료에 있어서는, 섬유 길이/섬유의 직경을 의미하고, 인편상 재료에 있어서는 인편상 재료의 장축 방향의 길이/두께를 의미한다.

[0083] 열전도성 시트에 있어서의 이방성 충전재의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서 10~500질량부인 것이 바람직하고, 30~300질량부인 것이 보다 바람직하며, 50~250질량부인 것이 더 바람직하다.

[0084] 이방성 충전재의 함유량을 10질량부 이상으로 함으로써, 열전도성을 높이기 쉬워진다. 또, 500질량부 이하로 함으로써, 후술하는 혼합 조성물의 점도가 적절해지기 쉽고, 이방성 충전재의 배향성이 양호해진다. 또한, 실리콘 매트릭스 (A)에 있어서의 이방성 충전재의 분산성도 양호해진다.

[0085] 이방성 충전재는, 섬유 재료인 경우, 그 평균 섬유 길이가, 바람직하게는 10~500㎛, 보다 바람직하게는 20~350㎛, 더 바람직하게는 50~300㎛이다. 평균 섬유 길이를 10㎛ 이상으로 하면, 열전도성 시트 내부에 있어서, 이방성 충전재들이 적절히 접촉하고, 열의 전달 경로가 확보되어, 열전도성 시트의 열전도성이 양호해진다.

[0086] 한편, 평균 섬유 길이를 500㎛ 이하로 하면, 이방성 충전재의 부피가 낮아지고, 바인더 성분 중에 고충전할 수 있게 된다.

[0087] 또, 섬유 재료의 평균 섬유 길이는, 열전도성 시트의 두께보다 짧은 것이 바람직하다. 두께보다 짧음으로써, 섬유 재료가 열전도성 시트의 표면으로부터 필요이상으로 돌출하는 것을 방지한다.

[0088] 또한, 상기의 평균 섬유 길이는, 이방성 충전재를 현미경으로 관찰하여 산출할 수 있다. 보다 구체적으로는, 예를 들어 전자 현미경이나 광학 현미경을 이용하여, 임의의 이방성 충전재 50개의 섬유 길이를 측정하고, 그 평균값(상가 평균값)을 평균 섬유 길이로 할 수 있다.

[0089] 또, 이방성 충전재가 인편상 재료인 경우, 그 평균 입경은, 10~400㎛가 바람직하고, 15~300㎛가 보다 바람직하며, 20~200㎛가 더 바람직하다. 평균 입경을 10㎛ 이상으로 함으로써, 열전도성 시트에 있어서 이방성 충전재들이 접촉하기 쉬워지고, 열의 전달 경로가 확보되어, 열전도성 시트의 열전도성이 양호해진다. 한편, 평균 입경을 400㎛ 이하로 하면, 열전도성 시트의 부피가 낮아져, 바인더 성분 중에 이방성 충전재를 고충전하는 것이 가능해진다.

[0090] 또한, 인편상 재료의 평균 입경은, 이방성 충전재를 현미경으로 관찰하여 장경을 직경으로서 산출할 수 있다. 보다 구체적으로는, 예를 들어 전자 현미경이나 광학 현미경을 이용하여, 임의의 이방성 충전재 50개의 장경을 측정하고, 그 평균값(상가 평균값)을 평균 입경으로 할 수 있다.

[0091] 이방성 충전재는, 열전도성을 갖는 공지의 재료를 사용하면 되는데, 후술하는 바와 같이 자장 배향에 의해 배향되는 경우에는, 반자성을 구비하면 된다. 한편, 유동 배향에 의해 배향되거나, 혹은, 이방성 충전재를 배향하지 않는 경우에는 반자성을 구비하지 않아도 된다.

[0092] 이방성 충전재의 구체예로는, 탄소 섬유, 또는 인편상 탄소 분말로 대표되는 탄소계 재료, 금속 섬유로 대표되는 금속 재료나 금속 산화물, 질화 붕소나 금속 질화물, 금속 탄화물, 금속 수산화물, 폴리파라페닐렌벤조옥사졸 섬유 등을 들 수 있다. 이들 중에서는, 탄소계 재료는, 비중이 작고, 바인더 성분 중으로의 분산성이 양호하기 때문에 바람직하고, 그 중에서도 열전도율이 높은 흑연화 탄소 재료가 보다 바람직하다. 흑연화 탄소 재료는, 그래파이트 면이 소정 방향에 맞춰짐으로써 반자성을 구비한다.

[0093] 또, 이방성 충전재로는, 질화 붕소도 바람직하다. 질화 붕소는, 특별히 한정되지 않으나, 인편상 재료로서 사용되는 것이 바람직하다. 인편상의 질화 붕소는, 응집되어도 되고, 응집되어 있지 않아도 되는데, 일부 또는 전부가 응집되어 있지 않은 것이 바람직하다. 또한, 질화 붕소 등도, 결정면이 소정 방향에 맞춰짐으로써 반자

성을 구비한다.

[0094] 또, 이방성 충전재는, 특별히 한정되지 않으나, 이방성을 갖는 방향(즉, 장축 방향)을 따르는 열전도율이, 일반적으로 30W/m·K 이상이며, 바람직하게는 60W/m·K 이상이고, 보다 바람직하게는 100W/m·K 이상, 더 바람직하게는 200W/m·K 이상이다. 이방성 충전재의 열전도율은, 그 상한이 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 2000W/m·K 이하이다. 열전도율은, 레이저 플래시법 등에 의해 측정할 수 있다.

[0095] 이방성 충전재는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다. 예를 들어, 이방성 충전재로서, 적어도 2개의 서로 상이한 평균 입경 또는 평균 섬유 길이를 갖는 이방성 충전재를 사용해도 된다. 크기가 상이한 이방성 충전재를 사용하면, 상대적으로 큰 이방성 충전재 사이에 작은 이방성 충전재가 들어감으로써, 이방성 충전재를 바인더 성분 중에 고밀도로 충전할 수 있음과 더불어, 열의 전도 효율을 높일 수 있다고 생각된다.

[0096] 이방성 충전재로서 이용하는 탄소 섬유는, 흑연화 탄소 섬유가 바람직하다. 또, 인편상 탄소 분말로는, 인편상 흑연 분말이 바람직하다. 이방성 충전재로는, 흑연화 탄소 섬유와 인편상 흑연 분말을 병용하는 것도 바람직하다.

[0097] 흑연화 탄소 섬유는, 그래파이트의 결정면이 섬유축 방향으로 연속되어 있으며, 그 섬유축 방향에 높은 열전도율을 구비한다. 그로 인해, 그 섬유축 방향을 소정의 방향에 맞춤으로써, 특정 방향의 열전도율을 높일 수 있다. 또, 인편상 흑연 분말은, 그래파이트의 결정면이 인편면의 면내 방향으로 연속되어 있으며, 그 면내 방향에 높은 열전도율을 구비한다. 그로 인해, 그 인편면을 소정의 방향에 맞춤으로써, 특정 방향의 열전도율을 높일 수 있다. 흑연화 탄소 섬유 및 인편상 흑연 분말은, 높은 흑연화도를 갖는 것이 바람직하다.

[0098] 상기한 흑연화 탄소 섬유, 인편상 흑연 분말 등의 흑연화 탄소 재료로는, 이하의 원료를 흑연화한 것을 이용할 수 있다. 예를 들어, 나프탈렌 등의 축합 다환 탄화수소 화합물, PAN(폴리아크릴로니트릴), pitch 등의 축합 복소환 화합물 등을 들 수 있는데, 특히 흑연화도가 높은 흑연화 메소페이즈 pitch나 폴리이미드, polybenzazole을 이용하는 것이 바람직하다. 예를 들어 메소페이즈 pitch를 이용함으로써, 후술하는 방사 공정에 있어서, 피치가 그 이방성에 의해 섬유축 방향으로 배향되고, 그 섬유축 방향에 우수한 열전도성을 갖는 흑연화 탄소 섬유를 얻을 수 있다.

[0099] 흑연화 탄소 섬유에 있어서의 메소페이즈 pitch의 사용 양태는, 방사 가능하면 특별히 한정되지 않고, 메소페이즈 pitch를 단독으로 이용해도 되며, 다른 원료와 조합하여 이용해도 된다. 단, 메소페이즈 pitch를 단독으로 이용하는 것, 즉, 메소페이즈 pitch 함유량 100%의 흑연화 탄소 섬유가, 고열전도화, 방사성 및 품질의 안정성의 면에서 가장 바람직하다.

[0100] 흑연화 탄소 섬유는, 방사, 불융화 및 탄화의 각 처리를 순차적으로 행하여, 소정의 입경으로 분쇄 또는 절단한 후에 흑연화한 것이나, 탄화 후에 분쇄 또는 절단한 후에 흑연화한 것을 이용할 수 있다. 흑연화 전에 분쇄 또는 절단하는 경우에는, 분쇄로 새롭게 표면에 노출된 표면에 있어서 흑연화 처리시에 중축합 반응, 고리화 반응이 진행되기 쉬워지기 때문에, 흑연화도를 높이고, 보다 한층 열전도성을 향상시킨 흑연화 탄소 섬유를 얻을 수 있다. 한편, 방사한 탄소 섬유를 흑연화한 후에 분쇄하는 경우에는, 흑연화 후의 탄소 섬유가 단단하여 분쇄하기 쉽고, 단시간의 분쇄로 비교적 섬유 길이 분포가 좁은 탄소 섬유 분말을 얻을 수 있다.

[0101] 흑연화 탄소 섬유의 평균 섬유 길이는, 상기했던 바와 같이, 바람직하게는 10~500㎛, 보다 바람직하게는 20~350㎛, 더 바람직하게는 50~300㎛이다. 또, 흑연화 탄소 섬유의 애스펙트비는 상기했던 바와 같이 2를 초과하고 있으며, 바람직하게는 5 이상이다. 흑연화 탄소 섬유의 열전도율은, 특별히 한정되지 않으나, 섬유축 방향에 있어서의 열전도율이, 바람직하게는 400W/m·K 이상, 보다 바람직하게는 800W/m·K 이상이다.

[0102] 열전도성 시트는, 이방성 충전재를 함유하는 경우, 이방성 충전재는 시트 표면에 있어서 노출되어 있어도 되고, 노출되어 있지 않아도 되는데, 노출되어 있는 것이 바람직하다. 열전도성 시트의 시트 표면은, 이방성 충전재가 노출됨으로써, 비점착면으로 할 수 있다. 열전도성 시트는, 시트의 주면이 되는 것이고, 시트의 양표면 중, 어느 한쪽에만 이방성 충전재가 노출되어 있어도 되며, 양쪽 모두에 이방성 충전재가 노출되어 있어도 된다. 열전도성 시트는, 시트 표면이 비점착임으로써, 전자 기기 등에 부착할 때에 슬라이드 등 시키는 것이 가능해져, 부착성이 향상된다.

[0103] (비이방성 충전재)

[0104] 본 발명에 있어서의 열전도성 충전재 (C)는, 비이방성 충전재를 함유해도 되고, 상기한 이방성 충전재와 비이방성 충전재를 병용해도 된다.

[0105] 비이방성 충전재는, 특히, 한 방향으로 배향된 이방성 충전재와 병용함으로써, 배향된 이방성 충전재 사이의 간극에 개재하여, 열전도성을 보다 한층 높일 수 있다. 비이방성 충전재는, 형상에 이방성을 실질적으로 갖지 않는 충전재이며, 후술하는 자력선 발생하 또는 전단력 작용하 등, 이방성 충전재가 소정의 방향으로 배향되는 환경하에 있어서도, 그 소정의 방향으로 배향되지 않는 충전재이다.

[0106] 비이방성 충전재는, 그 애스펙트비가 2 이하이며, 1.5 이하인 것이 바람직하다. 이와 같이 애스펙트비가 낮은 비이방성 충전재는, 이방성 충전재와 병용하는 경우, 이방성 충전재의 간극에 배치되기 쉬워지고, 열전도율을 향상시키기 쉬워진다. 또, 애스펙트비를 2 이하로 함으로써, 후술하는 혼합 조성물의 점도가 상승하는 것을 방지하고, 고충전으로 하는 것이 가능해진다.

[0107] 비이방성 충전재의 구체예는, 예를 들어, 금속, 금속 산화물, 금속 질화물, 금속 수산화물, 탄소 재료, 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물 등을 들 수 있다. 또, 비이방성 충전재의 형상은, 구상, 부정형의 분말 등을 들 수 있다.

[0108] 비이방성 충전재에 있어서, 금속으로는, 알루미늄, 구리, 니켈 등, 금속 산화물로는, 알루미나로 대표되는 산화알류미늄, 산화 마그네슘, 산화 아연 등, 금속 질화물로는 질화 알루미늄 등을 예시할 수 있다. 금속 수산화물로는, 수산화 알루미늄을 들 수 있다. 또한, 탄소 재료로는 구상 흑연 등을 들 수 있다. 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물로는, 석영, 질화 붕소, 탄화 규소 등을 들 수 있다.

[0109] 이들 중에서도, 산화 알류미늄이나 알루미늄은, 열전도율이 높고, 구상인 것이 입수하기 쉬운 점에서 바람직하다.

[0110] 비이방성 충전재는, 상기한 것을 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0111] 비이방성 충전재의 평균 입경은, 예를 들어 0.1~200㎛이다. 예를 들어 이방성 충전재와 병용하는 경우에는, 비이방성 충전재의 평균 입경은 0.1~50㎛인 것이 바람직하고, 0.5~35㎛인 것이 보다 바람직하며, 1~15㎛인 것이 더 바람직하다. 평균 입경을 50㎛ 이하로 함으로써, 이방성 충전재와 병용해도, 이방성 충전재의 배향을 흩뜨리는 등의 문제가 발생하기 어려워진다. 또, 평균 입경을 0.1㎛ 이상으로 함으로써, 비이방성 충전재의 비표면적이 필요 이상으로 커지지 않아, 다량으로 배합해도 혼합 조성물의 점도는 상승하기 어렵고, 비이방성 충전재를 고충전하기 쉬워진다.

[0112] 비이방성 충전재는, 예를 들어, 비이방성 충전재로서, 적어도 2개의 서로 상이한 평균 입경을 갖는 비이방성 충전재를 사용해도 된다.

[0113] 또, 비이방성 충전재의 평균 입경은 0.1~200㎛인 것이 바람직하고, 0.5~100㎛인 것이 보다 바람직하며, 1~70㎛인 것이 더 바람직하다.

[0114] 또한, 비이방성 충전재의 평균 입경은, 전자 현미경 등으로 관찰하여 측정할 수 있다. 보다 구체적으로는, 예를 들어 전자 현미경이나 광학 현미경을 이용하여, 임의의 비이방성 충전재 50개의 입경을 측정하고, 그 평균값(상가 평균값)을 평균 입경으로 할 수 있다.

[0115] 비이방성 충전재의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 50~2500질량부인 것이 바람직하고, 100~1500질량부인 것이 보다 바람직하며, 200~750질량부인 것이 더 바람직하다. 50질량부 이상으로 함으로써, 열전도성 시트의 열전도성을 양호하게 할 수 있다. 한편, 1500질량부 이하로 함으로써, 비이방성 충전재가 바인더 성분 중에 적절히 분산되어, 함유량에 따른 열전도성을 높이는 효과를 얻을 수 있다. 또, 혼합 조성물의 점도가 필요 이상으로 상승하는 것도 방지할 수 있다.

[0116] 이방성 충전재의 함유량에 대한, 비이방성 충전재의 함유량의 질량비는, 특별히 한정되지 않으나, 0.5~5인 것이 바람직하고, 1~3인 것이 보다 바람직하며, 1.1~2.5인 것이 바람직하다. 질량비를 상기 범위 내로 함으로써, 비이방성 충전재가, 이방성 충전재 사이에 적절히 충전되어, 효율적인 전열 패스를 형성할 수 있기 때문에, 열전도성 시트의 열전도성을 보다 한층 향상시킬 수 있다.

[0117] (첨가제)

[0118] 열전도성 시트에 있어서, 바인더 성분에는, 추가로 열전도성 시트로서의 기능을 해치지 않는 범위에서 여러 가지의 첨가제를 배합시켜도 된다. 첨가제로는, 예를 들어, 분산제, 커플링제, 점착제, 난연제, 산화 방지제, 착색제, 침강 방지제 등으로부터 선택되는 적어도 1종 이상을 들 수 있다. 또, 상기한 바와 같이 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화시키는 경우에는, 첨가제로서 경화를 촉진시키는 경화 촉매 등이 배합되어도 된다. 경화 촉

매로는, 백금계 촉매를 들 수 있다.

[0119] 또, 후술하는 바와 같이 혼합 조성물에는, 상용성 물질 (D)가 배합되는 경우가 있다. 상용성 물질 (D)는, 열전도성 시트를 제조하는 과정에서 휘발되어 열전도성 시트에는 잔존하지 않아도 되는데, 배합된 상용성 물질 (D)의 적어도 일부가 잔존해도 된다.

[0120] <압축률>

[0121] 본 발명의 열전도성 시트는, 40psi에 있어서의 압축률이 15% 이상인 것이 바람직하다. 열전도성 시트의 압축률이 15% 이상이 되면, 가열했을 때의 유연성이 높고, 사용시에 발열체나 방열체에 대한 추종성이 향상되어, 열전도성이 양호해진다. 상기 압축률은, 사용시의 유연성을 높여, 열전도성을 향상시키는 관점에서, 18% 이상이 바람직하고, 20% 이상이 보다 바람직하다.

[0122] 또, 상기 압축률은, 50% 이하가 바람직하다. 압축률이 50% 이하가 됨으로써, 취급성, 신뢰성이 양호해지기 쉬워지고, 전자 기기로의 부착이나 절단 가공도 용이해지며, 또, 펌프 아웃 등도 발생하기 어려워진다. 이들 관점에서, 상기 압축률은, 40% 이하가 보다 바람직하고, 38% 이하가 더 바람직하다.

[0123] 압축률은, 실시예에 기재한 방법으로 측정된다.

[0124] <두께>

[0125] 열전도성 시트의 두께는, 특별히 한정되지 않으며, 열전도성 시트가 탑재되는 전자 기기의 형상이나 용도에 따라, 적절히 설정되면 되는데, 예를 들어 0.1~5㎜의 범위이면 된다.

[0126] 또, 소형의 전자 기기 등으로 사용하기 쉬운 관점에서, 열전도성 시트의 두께는 바람직하게는 0.1~3㎜이며, 보다 바람직하게는 0.1~1㎜이다.

[0127] [열전도성 시트의 제조 방법]

[0128] 본 발명의 열전도성 시트는, 예를 들어, 이하의 공정 X, 및 공정 Y를 구비하는 제조 방법에 의해 제조할 수 있다.

[0129] 공정 X : 경화성 실리콘 조성물 (A1)과, 알킬 실리콘 화합물 (B)와, 열전도성 충전재 (C)와, 상용성 물질 (D)를 적어도 혼합시켜, 혼합 조성물을 얻는 공정

[0130] 공정 Y : 공정 X에서 얻은 혼합 조성물을 가열에 의해 경화하는 공정

[0131] 이하, 각 공정에 대해 상세하게 설명한다.

[0132] (공정 X)

[0133] 공정 X에서는, 경화성 실리콘 조성물 (A1), 알킬 실리콘 화합물 (B), 및 열전도성 충전재 (C)에 더해, 상용성 물질 (D)를 혼합함으로써, 혼합 조성물을 얻는다. 상용성 물질 (D)는, 알킬 실리콘 화합물 (B) 및 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대해서, 상용 내지 용해되는 물질이다. 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대한 상용성이 낮으나, 상용성 물질 (D)를 사용함으로써, 경화성 실리콘 조성물 (A1) 중에 균일하게 혼합할 수 있다. 그로 인해, 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화하여 얻어지는 실리콘 매트릭스 (A)에 있어서도 균일하게 섞여 있다.

[0134] 또한, 상기 「상용」은, 상용성 물질 (D)와 알킬 실리콘 화합물 (B), 또는 상용성 물질 (D)와 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 실제로 사용하는 비율로 혼합했을 때에 2상이 분리되지 않는 상태를 말한다. 또, 「용해」는, 상용성 물질 (D)와 알킬 실리콘 화합물 (B), 또는 상용성 물질 (D)와 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 실제로 사용하는 비율로 혼합했을 때에 고체상에 잔존물이 없는 상태를 말한다.

[0135] 공정 X에서는, 상기 각 성분을 혼합하여, 혼합 조성물을 얻을 수 있는 한, 그 혼합 방법이나 혼합 순서는 특별히 한정되지 않으며, 경화성 실리콘 조성물 (A1), 알킬 실리콘 화합물 (B), 열전도성 충전재 (C), 상용성 물질 (D), 및 필요에 따라서 임의로 첨가되는 그 외의 성분을 임의의 차례로 적절히 혼합하여, 혼합 조성물을 얻으면 된다.

[0136] 경화성 실리콘 조성물 (A1)은, 상기한 바와 같이, 예를 들어 주제와 경화제로 이루어지는데, 그러한 경우, 주제, 경화제, 알킬 실리콘 화합물 (B), 열전도성 충전재 (C), 상용성 물질 (D), 및 필요에 따라서 임의로 첨가되는 그 외의 성분을 임의의 차례로 혼합하여, 혼합 조성물을 얻어도 된다.

[0137] 또한, 혼합 조성물의 형태는, 1액형이여도 되고, 제1제와 제2제를 조합하여 이루어지는 2액형 중 어느 하나여도 된다. 2액형은, 사용시에 제1제와 제2제를 혼합시켜 혼합 조성물을 얻는 것이다.

[0138] 2액형의 혼합 조성물은, 보다 구체적으로는, 제1제가 알케닐기 함유 오르가노폴리실록산(주제)을 포함하고, 제2제가 하이드로젠오르가노폴리실록산(경화제)을 포함하는 것이다. 제2제는 추가로 알케닐기 함유 오르가노폴리실록산을 함유해도 된다. 또, 2액형의 혼합 조성물의 일실시 형태에 있어서, 경화 촉매가 제1제에 함유된다. 이 경우, 알킬 실리콘 화합물 (B), 열전도성 충전재 (C), 및 상용성 물질 (D)는, 제1제 및 제2제 중 어느 하나에 포함되어 있으면 되는데, 양쪽 모두에 포함되어 있는 것이 바람직하다.

[0139] 또, 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 상용성 물질 (D)에 용해시킨 후에, 경화성 실리콘 조성물 (A1)이나, 그 외의 성분과 혼합시키는 것이 바람직하다.

[0140] 이 경우, 알킬 실리콘 화합물 (B)와 상용성 물질 (D)의 혼합물, 경화성 실리콘 조성물 (A1)(혹은, 주제 및 경화제), 열전도성 충전재 (C), 및 필요에 따라서 임의로 첨가되는 그 외의 성분을 임의의 차례로 혼합하여, 혼합 조성물을 얻으면 된다.

[0141] 이와 같이, 공정 X에 있어서 알킬 실리콘 화합물 (B)를 상용성 물질 (D)에 용해시켜 두면, 알킬 실리콘 화합물 (B)는, 실리콘 매트릭스 (A)에 있어서 보다 한층 균일하게 혼합할 수 있다.

[0142] 또한, 알킬 실리콘 화합물 (B)를 상용성 물질 (D)에 용해시키는 경우, 적절히 가열해도 된다. 이 때 가열 온도는, 상용성 물질 (D)의 융점보다 높은 온도까지 가열하는 것이 바람직하고, 예를 들어 40℃ 이상으로 가열하여 용해해도 된다. 또, 가열 온도의 상한은, 주제와 경화제에 혼합하는 경우, 혼합의 과정에서 열전도성 실리콘이 실질적으로 경화하지 않는 온도로 할 수 있다. 한편, 주제와 경화제에 각각 상용성 물질 (D)를 혼합하는 경우에는, 상용성 물질 (D)가 휘발되기 어려운 온도로 할 수 있으며, 예를 들어 80℃ 이하로 가열하여 용해해도 된다.

[0143] 또, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)와 혼합한 상태는, 상용성 물질 (D)가 개재함으로써, 투명 또는 약간 백탁한 균일한 혼합물이다. 한편, 상용성 물질 (D)를 포함하지 않는 경우에는, 고형의 알킬 실리콘 화합물이 분산된 상태 또는 액상의 알킬 실리콘 화합물이 2층 분리된 상태가 된다.

[0144] <상용성 물질 (D)>

[0145] 본 발명에서 사용되는 상용성 물질 (D)는, 알킬 실리콘 화합물 (B)에 용해되고, 또한 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대해서 상용하는 물질이면 된다. 상용성 물질 (D)는, 상온(23℃), 1기압에서 액상인 물질인 것이 바람직하다. 상용성 물질 (D)는, 후술하는 바와 같이, 예를 들어, 공정 Y의 50~180℃ 정도의 가열에 의해 휘발되는 성분이다. 상용성 물질 (D)는, 경화시의 가열에 의해 휘발됨으로써, 열전도성 시트에 있어서의 열전도성 충전재 (C)의 함유 비율을 크게 할 수 있다. 또, 혼합 조성물은, 상용성 물질 (D)를 함유함으로써, 점도가 저하한다. 그로 인해, 열전도성 충전재 (C)의 배합량을 많게 하기 쉬워지고, 또, 후술하는 자장 배향 등에 의해 이방성 충전재를 소정의 방향으로 배향시키기 쉬워진다.

[0146] 상용성 물질 (D)로는, 알콕시실란 화합물, 탄화수소계 용매, 알콕시실록산 화합물 등을 들 수 있다. 이들 화합물은, 알킬 실리콘 화합물 (B) 및 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대한 용해성 내지 상용성이 높기 때문에, 혼합 조성물에 있어서, 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대한 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높일 수 있다. 이에 따라, 열전도성 시트에 있어서도, 알킬 실리콘 화합물 (B)가 적절히 분산되어, 보형성, 신뢰성, 고온하에 있어서의 유연성 등을 확보하기 쉬워진다.

[0147] 상용성 물질 (D)는, 1종 단독으로 사용되어도 되고, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.

[0148] 상용성 물질 (D)로는, 알콕시실란 화합물을 사용하는 것이 바람직하다. 알콕시실란 화합물을 사용함으로써, 경화에 의해 얻어진 열전도성 시트의 표면에 기포 등이 보여지지 않아 외관이 양호해진다.

[0149] 상용성 물질 (D)로서 사용되는 알콕시실란 화합물은, 규소 원자(Si)가 갖는 4개의 결합 중, 1~3개가 알콕시기와 결합하고, 잔여 결합이 유기 치환기와 결합한 구조를 갖는 화합물이다. 알콕시실란 화합물은, 알콕시기 및 유기 치환기를 가짐으로써, 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대한 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높일 수 있다.

[0150] 알콕시실란 화합물이 갖는 알콕시기로는, 예를 들어, 메톡시기, 에톡시기, 프로톡시기, 부톡시기, 펜톡시기, 및 헥사톡시기를 들 수 있다. 알콕시실란 화합물은, 경화성 실리콘 조성물 (A1) 중에 이량체로서 함유되어 있어도 된다.

[0151] 알콕시실란 화합물 중에서도, 입수 용이성의 관점에서, 메톡시기 및 에톡시기 중 적어도 어느 하나를 갖는 알콕시실란 화합물이 바람직하다. 알콕시실란 화합물이 갖는 알콕시기의 수는, 경화성 실리콘 조성물 (A1) 및 알킬 실리콘 화합물 (B)의 상용성, 용해성 등의 관점에서, 2 또는 3인 것이 바람직하고, 3인 것이 보다 바람직하다. 알콕시실란 화합물은, 구체적으로는 트리메톡시실란 화합물, 트리에톡시실란 화합물, 디메톡시실란 화합물, 디에톡시실란 화합물로부터 선택되는 적어도 일종인 것이 바람직하다.

[0152] 알콕시실란 화합물이 갖는 유기 치환기에 포함되는 관능기로는, 예를 들어, 아크릴로일기, 알킬기, 카르복실기, 비닐기, 메타크릴기, 방향족기, 아미노기, 이소시아네이트기, 이소시아누레이트기, 에폭시기, 히드록실기, 및 메르캅토기를 들 수 있다. 여기서, 경화성 실리콘 조성물 (A1)의 경화 촉매로서 백금 촉매를 이용하는 경우, 오르가노폴리실록산의 경화 반응에 영향을 주기 어려운 알콕시실란 화합물을 선택하여 이용하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 백금 촉매를 이용한 부가 반응형의 오르가노폴리실록산을 이용하는 경우, 알콕시실란 화합물의 유기 치환기는, 아미노기, 이소시아네이트기, 이소시아누레이트기, 히드록실기, 또는 메르캅토기를 포함하지 않는 것이 바람직하다.

[0153] 알콕시실란 화합물은, 실리콘 매트릭스 (A)에 있어서의 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높이는 관점에서, 규소 원자에 결합한 알킬기를 갖는 알콕시실란 화합물, 즉, 유기 치환기로서 알킬기를 갖는 알콕시실란 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 따라서, 디알킬디알콕시실란 화합물, 알킬트리알콕시실란 화합물이 바람직하고, 그 중에서도 알킬트리알콕시실란 화합물이 바람직하다.

[0154] 규소 원자에 결합한 알킬기의 탄소수는, 예를 들어 1~16이면 된다. 또, 트리메톡시실란 화합물, 트리에톡시실란 화합물 등의 트리알콕시실란 화합물에 있어서는, 알킬 실리콘 화합물의 분산성을 높이는 관점에서, 상기 알킬기의 탄소수가 6 이상인 것이 바람직하고, 8 이상인 것이 더 바람직하며, 또, 탄소수가 12 이하인 것이 바람직하고, 10 이하인 것이 보다 바람직하다.

[0155] 한편, 디메톡시실란 화합물, 트리에톡시실란 화합물 등의 디알콕시실란 화합물에 있어서는, 알킬 실리콘 화합물의 분산성을 높이는 관점에서, 상기 알킬기의 탄소수는 1 이상이면 되고, 또, 탄소수 10 이하가 바람직하며, 6 이하가 보다 바람직하고, 4 이하가 더 바람직하다.

[0156] 알킬기 함유 알콕시실란 화합물로는, 예를 들어, 메틸트리메톡시실란, 디메틸디메톡시실란, 디에틸디메톡시실란, 트리메틸메톡시실란, 메틸트리에톡시실란, 메틸에톡시실란, 에틸트리메톡시실란, n-프로필트리메톡시실란, 디-n-프로필디메톡시실란, 디-n-프로필디에톡시실란, 이소부틸트리메톡시실란, 이소부틸트리에톡시실란, 이소부틸트리메톡시실란, 이소부틸트리에톡시실란, n-헥실트리메톡시실란, n-헥실트리에톡시실란, 메틸시클로헥실디메톡시실란, 메틸시클로헥실디에톡시실란, n-옥틸트리메톡시실란, n-옥틸트리에톡시실란, n-데실트리메톡시실란, n-데실트리에톡시실란 등을 들 수 있다.

[0157] 알킬기 함유 알콕시실란 화합물 중에서도, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 양호하게 하는 관점에서, n-데실트리메톡시실란, 디메틸디메톡시실란, n-옥틸트리에톡시실란이 더 바람직하고, 알킬 실리콘 화합물 (B)와의 용해성의 관점에서 n-데실트리메톡시실란, n-옥틸트리에톡시실란이 보다 더 바람직하다.

[0158] 상용성 물질 (D)로서 사용되는 알콕시실록산 화합물은, 두 개 이상의 실록산 결합을 갖고, 적어도 하나의 규소 원자에 알콕시기가 결합한 구조를 갖는다. 알콕시실록산 화합물은, 실록산 결합을 구성하는 규소 원자 중, 적어도 하나의 규소 원자에 유기 치환기가 결합한 구조를 갖는다. 알콕시실록산 화합물은, 알콕시기 및 유기 치환기를 가짐으로써, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높일 수 있다.

[0159] 알콕시실록산 화합물이 갖는 알콕시기 및 유기 치환기로는, 상기 알콕시실란 화합물의 설명에서 예시한 것을 들 수 있으며, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높이는 관점에서, 적어도 알킬기를 갖는 것이 바람직하다.

[0160] 알콕시실록산 화합물로는, 예를 들어, 메틸메톡시실록산 올리고머, 메틸페닐메톡시실록산 올리고머, 메틸에폭시메톡시실록산 올리고머, 메틸메르캅토메톡시실록산 올리고머, 및 메틸아크릴로일메톡시실록산 올리고머 등을 들 수 있다.

[0161] 알콕시실록산 화합물은, 1종류 또는 2종류 이상을 사용할 수 있다.

[0162] 상용성 물질 (D)로서 사용되는 탄화수소계 용매로는, 방향족 탄화수소계 용매를 들 수 있다. 그 중에서도 경화성 실리콘 조성물 (A1)과의 상용성의 관점에서 방향족 탄화수소계 용매가 바람직하다. 방향족 탄화수소계 용매로는, 탄소수 6~10 정도의 방향족 탄화수소계 용매를 들 수 있고, 예를 들어, 톨루엔, 크실렌, 메시틸렌, 에틸벤젠, 프로필벤젠, 부틸벤젠, t-부틸벤젠 등을 들 수 있으며, 바람직하게는 톨루엔, 크실렌 등이다.

[0163] 혼합 조성물에 있어서, 경화성 실리콘 조성물 (A1)과 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대한, 상용성 물질 (D)의 함유량은, 6~60질량부인 것이 바람직하다. 6질량부 이상이면, 경화성 실리콘 조성물 (A1)에 대해서 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합의 균일성을 충분히 높일 수 있다. 또, 60질량부 이하로 함으로써, 상용성 물질 (D)의 사용량에 알맞은 효과를 얻을 수 있다. 이들 관점에서, 상용성 물질 (D)의 상기 함유량은, 10~50질량부가 보다 바람직하고, 15~45질량부가 더 바람직하다.

[0164] 이 때, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합이 균일하지 않은 경우에는, 알킬 실리콘 화합물이 용해되고 남아, 예를 들어 고형의 알킬 실리콘 화합물이 분산된 상태가 되어 버린다. 이들 분산된 고형물은, 혼합 조성물 중에서는 충전재로서의 성질이 발생해 버릴 우려가 있다. 즉, 용해되고 남은 고형물이 점도를 상승시키는 충전재의 일부가 되기 때문에, 결과적으로 열전도성 충전재의 배합량을 많게 하기 어려워질 우려가 있다.

[0165] 또, 혼합 조성물에 있어서, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 분산성을 높이는 관점에서, 상용성 물질 (D)의 함유량은, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량보다 많게 하는 것이 바람직하다.

[0166] 또한, 상용성 물질 (D)는, 공정 Y의 가열에 의해, 일부 또는 전부가 휘발되는 것이 바람직하다. 따라서, 상용성 물질 (D)는, 열전도성 시트에 함유되지 않아도 되나, 혼합 조성물에 있어서의 함유량보다 적은 양으로 열전도성 시트에 함유되어도 된다.

[0167] 또, 열전도성 시트에 상용성 물질 (D)가 함유되는 경우에는, 혼합 조성물에 배합한 상용성 물질 (D)의 2~30질량%가 잔존하여 함유되고 있는 것이 바람직하다. 구체적인 열전도성 시트에 있어서의 상용성 물질 (D)의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서 0.1~18질량부인 것이 바람직하고, 0.3~15질량부인 것이 보다 바람직하며, 1~10질량부인 것이 더 바람직하다. 상용성 물질 (D)가 상기 범위 내이면, 열전도성 시트의 유연성을 높일 수 있다.

[0168] 또한, 혼합 조성물에 있어서의, 상용성 물질 (D) 이외의 성분(즉, 경화성 실리콘 조성물 (A1), 알킬 실리콘 화합물 (B), 열전도성 충전재 (C), 그 외의 첨가제등)의 상세한 설명은, 상기한 바와 같다. 또, 혼합 조성물에 있어서의 알킬 실리콘 화합물 (B) 및 열전도성 충전재 (C)의 함유량도 상기한 바와 같다. 단, 상기에서는, 각 성분의 함유량은, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부를 기준으로 하는 양이 나타내어지나, 혼합 조성물에 있어서는, 경화성 실리콘 조성물 (A1)과 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부를 기준으로 하는 양으로 한다.

[0169] (공정 Y)

[0170] 공정 Y는, 혼합 조성물을 가열에 의해 경화하는 공정이다. 혼합 조성물을 가열할 때의 온도는, 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 가열에 의해 경화 가능한 한, 특별히 한정되지 않으며, 실온(23℃)보다 높으면 되는데, 바람직하게는 50℃ 이상의 온도로 가열하면 된다. 또, 가열 온도는, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 시트, 혼합 조성물이 열열화하지 않는 정도의 온도이면 되고, 예를 들어 180℃ 이하, 바람직하게는 150℃ 이하이다. 또, 혼합 조성물의 가열은, 1단계로 행해도 되고, 2단계 이상으로 행해도 된다. 2단계 이상으로 행하는 경우에는, 적어도 어느 한 단계에서 가열 온도가 상기 범위 내이면 되는데, 모든 단계에서 가열 온도가 상기 범위 내인 편이 바람직하다. 또, 가열 시간 합계는, 예를 들어 10분~3시간 정도이다. 또, 2단계 이상으로 행하는 경우, 예를 들어 1단계째에 있어서 혼합 조성물을 반경화시키고, 2단계째 이후의 가열에 의해 혼합 조성물을 전경화시키면 된다.

[0171] 공정 Y에서는, 혼합 조성물은, 블록상, 시트상 등의 소정의 형상으로 성형하고, 또한 가열하여 경화시키면 된다. 또, 공정 Y에서는, 혼합 조성물은, 열전도성 충전재 (C)로서, 이방성 충전재를 포함하는 경우에는, 이방성 충전재를 한 방향으로 배향한 후에 가열에 의해 경화시키면 된다. 이방성 충전재는, 자장 배향법, 유동 배향법에 의해 배향시킬 수 있는데, 자장 배향법에 의해 배향시키는 것이 바람직하다.

[0172] 자장 배향법에서는, 혼합 조성물을 금형 등의 내부에 주입한 후에 자장에 두고, 이방성 충전재를 자장을 따라서 배향시키면 된다. 그리고, 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화시킴으로써 배향 성형체를 얻으면 된다. 혼합 조성물의 경화는, 상기한 바와 같은 가열 조건에 의해 행하면 된다.

[0173] 배향 성형체로는 블록상인 것으로 하는 것이 바람직하나, 시트상인 것이어도 된다. 시트상인 것으로 함으로써, 배향 성형체는, 슬라이스하지 않고 그대로 열전도성 시트로서 사용할 수 있다. 한편으로 블록상으로 함으로써, 이방성 충전재의 배향성이 높아진다.

[0174] 자장 배향법에서는, 금형 내부에 있어서, 혼합 조성물에 접촉하는 부분에는, 박리 필름을 배치해도 된다. 박리

필름은, 예를 들어, 박리성이 좋은 수지 필름이나, 편면이 박리제 등으로 박리 처리된 수지 필름이 사용된다. 박리 필름을 사용함으로써, 배향 성형체가 금형으로부터 이형되기 쉬워진다.

[0175] 자장 배향법에 있어서 사용하는 혼합 조성물의 점도는, 자장 배향시키기 위해서, 10~300Pa·s인 것이 바람직하다. 10Pa·s 이상으로 함으로써, 열전도성 충전재 (C)가 침강하기 어려워진다. 또, 300Pa·s 이하로 함으로써 유동성이 양호해지고, 자장으로 이방성 충전재가 적절히 배향되어, 배향에 시간이 너무 걸리는 문제도 발생하지 않는다. 또한, 점도란, 회전 점토계(브룩필드 점도계 DV-E, 스핀들 SC4-14)를 이용하여, 25℃에 있어서, 회전 속도 10rpm으로 측정된 점도이다.

[0176] 단, 침강되기 어려운 열전도성 충전재 (C)를 이용하거나, 침강 방지제 등의 첨가제를 조합하는 경우에는, 혼합 조성물의 점도는, 10Pa·s 미만으로 해도 된다.

[0177] 자장 배향법에 있어서, 자력선을 인가하기 위한 자력선 발생원으로는, 초전도 자석, 영구 자석, 전자석 등을 들 수 있는데, 높은 자속 밀도의 자장을 발생시킬 수 있는 점에서 초전도 자석이 바람직하다. 이들 자력선 발생원으로부터 발생하는 자장의 자속 밀도는, 바람직하게는 1~30테슬라이다. 자속 밀도를 1테슬라 이상으로 하면, 탄소 재료 등으로 이루어지는 상기한 이방성 충전재를 용이하게 배향시키는 것이 가능해진다. 또, 30테슬라 이하로 함으로써, 실용적으로 제조하는 것이 가능해진다.

[0178] 유동 배향법에서는, 혼합 조성물에 전단력을 가해, 면 방향을 따라서 이방성 충전재가 배향된 일차 시트를 제조한다. 보다 구체적으로는, 유동 배향법에서는, 우선, 공정 X에 있어서 조제된 혼합 조성물에 대해서 전단력을 부여하면서 평평하게 신장시켜 시트상(일차 시트)으로 성형한다. 전단력을 가함으로써, 이방성 충전재를 전단 방향으로 배향시킬 수 있다. 시트의 성형 수단으로서, 예를 들어, 바코터나 닥터 블레이드 등의 도포용 어플리케이터, 혹은, 압출 성형이나 노즐로부터의 토출 등에 의해, 기재 필름 상에 혼합 조성물을 도공하고, 그 후, 필요에 따라서 건조하거나 혼합 조성물을 반경화시키거나 전경화시키면 된다. 일차 시트의 두께는, 50~5000㎛ 정도로 하는 것이 바람직하다. 일차 시트에 있어서, 이방성 충전재는 시트의 면 방향을 따르는 한 방향으로 배향되어 있다.

[0179] 유동 배향법에서 사용하는 혼합 조성물은, 시트상으로 신장시킬 때에 전단력이 걸리도록 비교적 고점도이다. 혼합 조성물의 점도는, 구체적으로는 3~500Pa·s인 것이 바람직하다.

[0180] 일차 시트는, 후술하는 바와 같이 블록으로 하지 않고 그대로 열전도성 시트로서 사용해도 된다. 또, 일차 시트를, 배향 방향이 같아지도록 복수 장 겹추어 적층한 후, 필요에 따라서 가열에 의해 경화시키면서, 열프레스 등에 의해 일차 시트를 서로 접착시킴으로써 적층 블록(블록상의 배향 성형체)을 형성해도 된다.

[0181] 또, 적층 블록을 형성하는 경우에는, 일차 시트의 서로 겹추는 면 중 적어도 한쪽에, 진공 자외선을 조사시킨 후, 일차 시트를 겹쳐도 된다. 진공 자외선이 조사된 면을 통해, 일차 시트를 겹추면, 일차 시트들이 강고하게 접착할 수 있다. 또, 진공 자외선을 조사시키는 경우에는, 일차 시트를 제작할 때에 혼합 조성물을 전경화시켜 두어도 되고, 일차 시트를 겹쳐 적층 블록을 형성할 때에는 가열 등에 의해 경화시킬 필요는 없다.

[0182] 유동 배향법에서도, 혼합 조성물의 경화는, 상기한 바와 같이 가열 조건에 의해 행하면 된다.

[0183] 상기한 바와 같이, 블록상의 배향 성형체를 형성할 때에는, 얻어진 배향 성형체를, 이방성 충전재가 배향되는 방향에 대해서 수직으로, 슬라이스 등에 의해 절단하여, 시트상 성형체로 하면 된다. 슬라이스는, 예를 들어 전단날 등으로 행하면 된다. 시트상 성형체는, 슬라이스 등의 절단에 의해, 절단면인 각 표면에 있어서 바인더 성분으로부터 이방성 충전재의 선단이 노출되게 된다.

[0184] 절단에 의해 얻어진 시트상 성형체는, 그대로 열전도성 시트로 해도 되는데, 또 다른 처리를 해도 된다. 예를 들어 절단면인 각 표면을 연마하는 등 해도 된다. 표면의 연마는, 예를 들어, 연마지를 사용하여 행하면 된다.

[0185] [열전도성 시트의 사용 방법]

[0186] 본 발명의 열전도성 시트는, 전자 기기 내부 등에 있어 사용된다. 구체적으로는, 열전도성 시트는, 2개의 부재 사이에 개재되어, 한쪽의 부재로부터 다른쪽의 부재로 열을 전도시키기 위해서 사용된다. 구체적으로는, 열전도성 시트는, 발열체와 방열체 사이에 개재되어, 발열체에서 발한 열을 열전도하여 방열체로 이동시키고, 방열체로부터 방열시킨다. 여기서, 발열체로는, 전자 기기 내부에서 사용되는 CPU, 파워 반도체, 전원 등의 각종의 전자 부품을 들 수 있다. 또, 방열체는, 히트 싱크, 히트 펌프, 전자 기기의 금속 하우징 등을 들 수 있다. 열전도성 시트는, 양표면 각각이, 발열체 및 방열체 각각에 밀착하고, 또한 압축하여 사용하면 된다.

[0187] [열전도성 시트의 장착 방법]

[0188] 본 발명은, 열전도성 시트의 장착 방법도 제공한다. 본 발명의 열전도성 시트는, 상기한 바와 같이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 혼합물인 바인더 성분과, 상기 바인더 성분에 분산되는 열전도성 충전재 (C)를 구비하고, 상기 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서, 2.0~20질량부이며, 압축 하중 0.01N, 측정 온도 30~80℃ 및 승온 속도 2℃/분의 조건에서 열기계 분석 장치(TMA)에 의해 측정한 팽창률 X가 -2.0% 이상 0% 미만이다.

[0189] 본 발명의 열전도성 시트는, 이하의 공정 1~공정 3을 갖는 장착 방법에 의해서, 2개의 부재 사이(제1 및 제2 부재 사이)에 안정적으로 장착시킬 수 있다.

[0190] 공정 1 : 상기 열전도성 시트를, 제1 부재의 표면에 배치하는 공정

[0191] 공정 2 : 열전도성 시트를 가열하는 공정

[0192] 공정 3 : 열전도성 시트의 제1 부재 측의 면과는 반대측의 면에 제2 부재를 배치하고, 또한 열전도성 시트를 가압하여, 제1 및 제2 부재 사이에 열전도성 시트를 부착하는 공정

[0193] 본 장착 방법에 있어서, 제1 및 제2 부재는, 특별히 한정되지 않으나, 한쪽이 발열체이고, 다른쪽이 방열체이면 된다. 발열체, 방열체의 상세한 설명은 상기한 바와 같다.

[0194] (공정 1)

[0195] 공정 1에서는, 열전도성 시트를, 제1 부재의 표면에 배치한다. 열전도성 시트의 배치 방법은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 시트의 한쪽의 면이, 제1 부재에 접촉하도록 배치하면 된다.

[0196] 본 방법에서는, 후술하는 바와 같이, 공정 1 후에 공정 2를 행하는 것이 바람직하다. 그 경우, 열전도성 시트는, 가열 전의 탄력성이 있는 상태로 제1 부재의 표면에 배치되게 되기 때문에, 공정 1의 작업성이 양호해진다.

[0197] (공정 2)

[0198] 공정 2에서는, 열전도성 시트를 가열한다. 공정 2는 공정 1의 후에 행해도 되고, 공정 1의 앞에 행해도 되며, 공정 1과 병행하여 행해도 되는데, 공정 2는, 상기한 바와 같이 공정 1의 후에 행하는 것이 바람직하다. 즉, 공정 2에서는, 제1 부재의 표면에 배치된 열전도성 시트를 가열하는 것이 바람직하다.

[0199] 공정 2에서는, 열전도성 시트를, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점 이상의 온도로 가열하면 된다. 따라서, 열전도성 시트는, 상온(23℃)보다 높은 온도로 가열되면 되는데, 알킬 실리콘 화합물 (B)를 확실히 용융시켜, 부착시(후술하는 공정 3)에 있어서, 열전도성 시트의 유연성을 높이는 관점에서, 바람직하게는 50℃ 이상, 보다 바람직하게는 60℃ 이상, 더 바람직하게는 70℃ 이상으로 가열되면 된다.

[0200] 또, 필요 이상으로 열전도성 시트를 가열하는 것을 방지하는 관점에서, 열전도성 시트는, 100℃ 이하로 가열하면 되고, 바람직하게는 90℃ 이하, 보다 바람직하게는 85℃ 이하로 가열하면 된다.

[0201] 공정 2에 있어서, 열전도성 시트를 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점 이상으로 가열시키면, 그 용융된 알킬 실리콘 화합물 (B)를 통해, 공정 3에 있어서의 가압에 의해 제1 및 제2 부재에 용이하게 고정시킬 수 있다.

[0202] 열전도성 시트의 가열 방법은, 특별히 한정되지 않으며, 적외선 히터, 열풍 히터, 전열 히터 등의 가열 장치에 의해 열전도성 시트를 가열하면 된다.

[0203] 종래, 페이즈 체인지 시트는, 제1 및 제2 부재 중 어느 한쪽을 구성하는 발열체의 가열에 의해, 연화 내지 용융되는 것이 일반적이지만, 본 장착 방법에 있어서 열전도성 시트는, 발열체와는 다른 가열 장치에 의해, 제1 및 제2 부재 사이에 끼워 넣기 전에 가열되는 것이 바람직하다. 이러한 양태에 의하면, 열전도성 시트를, 전자 기기의 사용 전에 제1 및 제2 부재에 고정시키는 것이 가능해진다. 따라서 열전도성 시트를 설계대로의 압축률 등으로 압축시켜 부착하는 것도 가능해진다.

[0204] (공정 3)

[0205] 공정 3에서는, 열전도성 시트의 제1 부재 측의 면과는 반대측의 면에 제2 부재를 배치하고, 또한 열전도성 시트를 가압하여, 제1 및 제2 부재 사이에 열전도성 시트를 부착한다.

[0206] 공정 3에서는, 제1 부재의 표면 상에 배치된 열전도성 시트 위에 추가로 제2 부재를 배치시키면 되고, 이에 따

라, 열전도성 시트는, 제1 및 제2 부재 사이에 끼워 넣은 상태가 된다.

[0207] 공정 3은, 공정 2와 병행하여 행해도 되는데, 공정 2의 후에 행하는 것이 바람직하다. 따라서, 공정 3에서는, 제1 부재의 표면 상에 배치되고, 또한 이미 가열된, 열전도성 시트 위에 추가로 제2 부재를 배치시키면 된다.

[0208] 또한, 본 장착 방법에서는, 공정 1, 공정 2, 및 공정 3의 순으로 행하는 것이 보다 바람직하다. 이러한 차례로 각 공정을 행하면 작업성이 향상된다.

[0209] 공정 3에 있어서 제1 및 제2 부재 사이에 끼워 넣은 열전도성 시트는, 공정 2에 의해 가열되고 있으며, 따라서 공정 3에서는, 그 가열된 상태로, 더욱 두께 방향으로 가압되면 된다. 여기서, 가압은, 예를 들어, 제1 및 제2 부재에 끼워 넣은 열전도성 시트를, 제1 및 제2 부재에 의해서 더욱 두께 방향으로 압압됨으로써 행해지면 된다.

[0210] 또, 열전도성 시트는, 공정 3의 가압시에는, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점 이상의 온도가 되어, 알킬 실리콘 화합물 (B)가 용융되고 있으므로, 그 용융된 알킬 실리콘 화합물 (B)에 의해서 열전도성 시트를 제1 및 제2 부재에 고정시키면 된다.

[0211] 이상과 같이, 본 발명의 열전도성 시트는, 가열된 상태에 있어서 일정 이상의 유연성을 가지므로, 공정 3의 가압에 의해, 제1 및 제2 부재에 추종시킬 수 있다. 따라서, 제1 및 제2 부재가 요철을 갖고 있어도, 열전도성 시트를 제1 및 제2 부재에 밀착시켜, 열저항이 상승하는 것을 방지할 수 있다. 또, 제1 및 제2 부재에 높은 응력을 작용시키지 않고, 열전도성 시트를 부착할 수 있다. 또한, 열전도성 시트는, 가열되어도 보형성을 가지므로, 상기와 같이, 압축된 상태로 사용되어도, 펌프 아웃을 억제하여, 신뢰성이 높아진다. 또한, 열전도성 시트는, 가열 전에 있어서는 일정한 탄력성을 가지므로, 부착시의 작업성을 향상시킬 수 있다.

[0212] [방열 부재]

[0213] 본 발명은, 상기한 열전도성 시트와, 방열체를 구비하고, 열전도성 시트가, 방열체의 표면에 장착된 방열 부재도 제공한다. 이러한 방열 부재는, 예를 들어, 열전도성 시트를 방열체의 표면 상에 배치하고, 또한 열전도성 시트를 방열체의 표면에 고정시킴으로써 얻을 수 있다. 여기서, 열전도성 시트는, 예를 들어 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점 이상의 온도로 가열하고, 또한 가압함으로써 방열체의 표면에 고정시키면 된다. 이 때, 열전도성 시트는, 가열한 후에 방열체의 표면에 배치해도 되고, 방열체의 표면에 배치한 후에 가열해도 된다.

[0214] 또, 방열 부재는, 열전도성 시트의 방열체의 측면의 면과는 반대측의 면에 발열체를 배치함으로써, 방열체와 발열체 사이에 열전도성 시트를 장착시킬 수 있다. 장착 방법으로는, 상기 공정 2, 3을 구비하는 방법으로 행하면 되고, 그 상세는 상기한 바와 같으므로 생략한다.

[0215] **실시예**

[0216] 이하, 본 발명을 실시예에 의해 더 상세하게 설명하는데, 본 발명은 이들 예에 의해서 전혀 한정되는 것은 아니다.

[0217] 본 실시예, 비교예에서 얻어진 열전도성 시트는, 이하의 방법에 의해 평가했다.

[0218] [열저항값]

[0219] 열저항값은, 도 1에 도시하는 열저항 측정기를 이용하여, 이하에 개시하는 방법으로 측정했다. 구체적으로는, 각 시료에 대해서, 본 시험용으로 크기가 30㎜×30㎜의 시험편 S를 제작했다. 그리고 각 시험편 S를, 측정면이 25.4㎜×25.4㎜이고 측면이 단열재(21)로 덮인 구리제 블록(22) 위에 붙이며, 상방의 구리제 블록(23)으로 끼워, 로드 셀(26)에 의해서 압력 20psi(0.138MPa)의 하중을 가했다. 여기서, 하방의 구리제 블록(22)은 히터(24)와 접하고 있다. 또, 상방의 구리제 블록(23)은, 단열재(21)에 의해서 덮이고 ,또한 팬이 달린 히트 싱크(25)에 접속되어 있다. 이어서, 히터(24)를 발열시켜, 온도가 대략 정상 상태가 되는 10분 후에, 상방의 구리제 블록(23)의 온도(Θ_{j0}), 하방의 구리제 블록(22)의 온도(Θ_{j1}), 및 히터의 발열량(Q)을 측정하여, 이하의 식(2)로부터 각 시료의 열저항값 R_{10}을 구했다. 또한, 온도는, 열전도성 시트가 80℃이 되도록 발열량을 조정했다.

[0220] 열저항값=$(\Theta_{j1}-\Theta_{j0})/Q$ · · · 식(2)

[0221] 식 (2)에 있어서, Θ_{j1}은 하방의 구리제 블록(22)의 온도, Θ_{j0}는 상방의 구리제 블록(23)의 온도, Q는 발열량이

다.

[0222] 또, 별도 상기 로드 셀(26)에 의한 압력을 40psi로 변경한 이외는 상기와 동일하게 하여 열저항값 R_{40}을 구했다.

[0223] [압축률]

[0224] 열전도성 시트를, 10mm×10mm의 사이즈로 컷 하고, 80℃ 환경하, 40psi(0.276MPa)로 압축했을 때의 압축률을 측정했다. 구체적으로는 10mm×10mm의 크기로 표면이 평탄한 대좌와, 평행하게 압압하는 압압자 사이에 시험편을 끼워, 0.276MPa로 시험편을 압축했을 때의 두께 T2를 측정하고, 초기 두께 T1에 대한 압축률[100×(T1-T2)/T1]를 산출했다.

[0225] 또, 별도 압력을 20psi로 변경한 이외는 상기와 동일하게 하여, 압축률을 측정했다.

[0226] [팽창률 X(하중 0.01N)]

[0227] 팽창률 X는, 열기계 분석 장치(TMA, SHIMADZU CORPORATION 제조 「TMA-60」)에 의해 이하와 같이 측정했다.

[0228] 열전도성 시트(사이즈 φ6mm, 두께 0.3mm)를 실온하(23℃)에서, 압축 하중 0.01N에 의해 압축시킨 상태로 했다. 이 때의 열전도성 시트의 두께를 초기 두께(mm)로 했다. 이어서, 상기 압축 하중을 부가시킨 채로, 30℃ 내지 80℃까지 승온 속도 2℃/분으로 승온시키고, 30℃에 있어서의 팽창률(%)과 80℃에 있어서의 팽창률(%)을 각각 구해, 이하의 식에 의해 본 발명에 있어서의 팽창률 X를 구했다.

[0229] 팽창률 X(%)=80℃에 있어서의 팽창률(%)-30℃에 있어서의 팽창률(%)

[0230] 30℃에 있어서의 팽창률은, 열전도성 시트의 30℃에 있어서의 두께(mm)와, 초기 두께(mm)로부터 이하와 같이 구했다. 마찬가지로, 80℃에 있어서의 팽창률은, 열전도성 시트의 80℃에 있어서의 두께(mm)와, 초기 두께(mm)로부터 이하와 같이 구했다.

[0231] 30℃에 있어서의 팽창률(%)=100×[(30℃에 있어서의 두께-초기 두께)/초기 두께]

[0232] 80℃에 있어서의 팽창률(%)=100×[(80℃에 있어서의 두께-초기 두께)/초기 두께]

[0233] [팽창률(무하중)]

[0234] 압축 하중을 0.005N으로 한 이외는, 상기와 동일하게 하여 팽창률을 구했다. 또한, 압축 하중을 0.015N으로 한 이외는 상기와 동일하게 하여 팽창률을 구했다.

[0235] 그리고, 얻어진 각 압축 하중과 팽창률의 관계를 플롯한 그래프에 대해서, 최소 이승법으로 선형 근사한 근사식으로부터 무하중시(압축 하중 0N)에 있어서의 팽창률(추정값)을 구했다.

[0236] [팽창에 의한 부하의 크기]

[0237] 열전도성 시트의 팽창에 의한 각 부재(발열체, 방열체 등)에 대한 부하에 대해서, 부하가 작은 순으로부터 A, B, C, D, E의 5단계로 평가했다. A가 가장 부하가 작고 우수한 평가가 된다.

[0238] [밀착성력]

[0239] 밀착성력(인장 전단 강도)은, JIS K6850 : 1999의 인장 전단 시험에 준거하여 측정했다.

[0240] 각 실시예 및 비교예의 방법으로 제작한 열전도성 시트(세로 20mm, 가로 20mm, 두께 0.2mm)를, 2장의 알루미늄 시트(세로 30mm, 가로 100mm, 두께 0.012mm)의 사이에 끼워 넣는다. 이 때, 알루미늄 시트의 선단들이 25mm×25mm의 길이로 겹치는 상태로 배치했다. 그리고, 온도 80℃, 압력 20psi의 조건에서 3분간 압착시켜, 시험 샘플을 제작했다. 당해 시험 샘플을 25℃까지 자연 냉각하고, 인장 시험기(Toyo Seiki Seisaku-sho, Ltd. 제조)를 이용하여, 실온 25℃, 인장 속도 500mm/min의 조건에서 인장 시험을 행하여, 밀착성력(인장 전단 강도)을 측정했다. 측정된 밀착성력(Mpa)에 의거하여, 밀착성을 이하와 같이 평가했다.

[0241] A : 밀착성력이 1.4MPa 이상

[0242] B : 밀착성력이 1.0MPa 이상 1.4MPa 미만

[0243] C : 밀착성력이 0.4MPa 이상 1.0MPa 미만

[0244] D : 밀착성력이 0.3MPa 이상 0.4MPa 미만

[0245] E : 밀착성력이 0.3MPa 미만

[0246] [취급성]

[0247] 알킬 실리콘 화합물의 배합에 수반하는 문제의 크기에 대해서, 각 실시예 및 비교예에서 제작한 열전도성 시트를 시료로 하여 이하와 같이 평가했다. 문제가 작은 순으로 A, B, C, D, E의 5단계로 평가했다.

[0248] A : 알킬 실리콘 화합물의 배합에 수반하는 문제가 발생하지 않고, 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트가 적절한 강성을 갖고 있기 때문에 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착되기 쉽다.

[0249] B : 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트의 강성이 낮아 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착될 때에 약간 신장되기 쉽다.

[0250] C : 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트가 너무 단단해져, 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착될 때에 균열이 발생하기 쉽다.

[0251] D : 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트의 강성이 매우 낮아 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착할 때에 신장되기 쉽다.

[0252] E : 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트가 너무 단단해져, 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착할 때에 깨져 버린다.

[0253] [종합 평가]

[0254] 상기한 「팽창에 의한 부하의 크기」와 「취급성」의 평가에 대해서, 나쁜 쪽의 평가를 「종합 평가」로 했다.

[0255] [실시예 1]

[0256] 알킬 실리콘 화합물 (B)로서의 폴리옥타데실메틸실록산(융점(Tm) : 50℃)과, 상용성 물질 (D)로서의 n-데실트리메톡시실란을 표 1의 배합량에 따라서 23℃에서 혼합시키고, 상용성 물질 (D)에 알킬 실리콘 화합물 (B)를 용해시킨 혼합물을 얻었다. 얻어진 혼합물과, 경화성 실리콘 조성물 (A1)로서의 실리콘 주제(알케닐기 함유 오르가노폴리실록산), 실리콘 경화제(하이드로젠오르가노폴리실록산)와, 촉매(백금계 촉매)를 균일하게 혼합한 후에 열전도성 충전재 (C)를 표 1의 배합량에 따라서 혼합시켜, 혼합 조성물을 얻었다.

[0257] 또한, 열전도성 충전재 (C)로는, 비이방성 충전재로서 알루미늄 분말(구상, 평균 입경 3μmm, 애스펙트비 1~1.5, 열전도율 236W/m·K), 산화 알류미늄 분말(구상, 평균 입경 0.5μm, 애스펙트비 1, 열전도율 32W/m·K)을 사용했다. 또, 이방성 충전재로서 인편상 흑연 분말(평균 입경 40μm, 애스펙트비 10, 열전도율 550W/m·K), 흑연화 탄소 섬유 1(평균 섬유 길이 77μm, 애스펙트비 8, 열전도율 1200W/m·K), 및 흑연화 탄소 섬유 2(평균 섬유 길이 150μm, 애스펙트비 15, 열전도율 900W/m·K)를 사용했다. 또한, 각 실시예, 비교예에 있어서의 열전도성 충전재 (C)의 체적 충전율은 66체적%였다.

[0258] 또, 융점은 열중량 시차열 분석(TGDTA, SHIMADZU CORPORATION 제조 「DTG-60」)으로 승온 속도 1℃/min의 조건에서 측정한 DTA 곡선의 흡열 피크의 온도이다.

[0259] 계속해서, 열전도성 시트보다 충분히 큰 두께로 설정된 금형에 상기 혼합 조성물을 주입하고, 8T의 자장을 두께 방향으로 인가하여 이방성 충전재를 두께 방향으로 배향한 후에, 80℃에서 60분간 가열함으로써 경화성 실리콘 조성물 (A1)을 경화하여, 블록상의 배향 성형체를 얻었다.

[0260] 다음으로, 전단날을 이용하여, 블록상의 배향 성형체를 시트상으로 슬라이스 함으로써, 이방성 충전재가 노출되어 있는 시트상 성형체를 얻고 나서, 추가로 150℃로 2시간 가열하여, 그 시트상 성형체를 얻었다. 또한, 시트상 성형체의 양 표면을, 연마용 입자의 평균 입경(D50)이 20μm인 거친 연마지 A(입도#800)에 의해 50회 왕복 연마하여, 연마 후의 열전도성 시트를 얻었다. 얻어진 열전도성 시트에 대해서, 각 평가를 행했다. 결과를 표 1에 기재했다.

[0261] [실시예 2~4]

[0262] 각 성분의 배합량을 표 1에 기재한 양으로 변경한 이외는, 실시예 1과 동일하게 하여 열전도성 시트를 얻었다. 얻어진 열전도성 시트에 대해서, 각 평가를 행했다. 결과를 표 1에 기재한다.

[0263] [비교예 1]

[0264] 알킬 실리콘 화합물 (B)를 사용하지 않고, 표 1의 배합에 따라서 각 성분을 혼합하여 얻은 혼합 조성물에 의해,

열전도성 시트를 제작한 것 이외는 실시예 1과 동일하게 실시했다. 비교예 1에서 얻어진 열전도성 시트의 평가 결과를 표 1에 기재한다.

[0265] [비교예 2~3]

[0266] 각 성분의 배합량을 표 1에 기재한 양으로 변경한 이외는, 실시예 1과 동일하게 하여 열전도성 시트를 얻었다. 얻어진 열전도성 시트에 대해서, 각 평가를 행했다. 비교예 2에서 얻어진 결과를 표 1에 기재한다.

[0267] [표 1]

[0268]

			실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	비교예 1	비교예 2	비교예 3
배합 (질량부)	경화성 실리콘 조성물(A1)	실리콘 주제	88.2	81.8	77.3	72.7	90.9	90.0	67.5
		실리콘 경화제	8.8	8.2	7.7	7.3	9.1	9.0	7.5
	첨가제	촉매	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	알킬 실리콘(B)	폴리옥타데실메틸실록산	3	10	15	20	0	1	25
	열전도성 충전재(C)	알루미늄 분말 3㎛(평균 입경)	243	243	243	243	243	243	243
		산화 알루미늄 분말 0.5㎛(평균 입경)	30	30	30	30	0	30	30
		인편 흑연 분말 40㎛(평균 장축 길이)	20	20	20	20	20	20	20
		흑연화 탄소 섬유1 77㎛(평균 섬유 길이)	160	160	160	160	155	160	160
		흑연화 탄소 섬유2 150㎛(평균 섬유 길이)	10	0	0	0	10	10	0
	상용성 물질(D)	N-데실트리메톡시실란	27	27	27	27	15	27	27
측정 결과		20psi 열저항 R_{10} (℃·in²/W) 80℃	0.022	0.020	0.018	0.021	0.027	0.024	0.025
		20psi 측정시 두께 T_{10} (mm)	0.184	0.143	0.155	0.166	0.172	0.174	0.164
		20psi의 압축률 %	14%	27%	19%	11%	12%	13%	13%
		40psi 열저항 R_{40} (℃·in²/W) 80℃	0.018	0.017	0.016	0.014	0.022	0.020	0.021
		40psi 측정시 두께 T_{40} (mm)	0.172	0.130	0.141	0.152	0.159	0.150	0.155
		40psi의 압축률 %	20%	33%	27%	18%	23%	25%	21%
		팽창률 (하중 0.005N)	-0.32%	-0.43%	-0.50%	-1.14%	0.25%	0.15%	-1.80%
		팽창률X (하중 0.01N)	-0.49%	-0.83%	-0.93%	-1.40%	0.21%	0.09%	-2.10%
		팽창률 (하중 0.015N)	-0.94%	-1.15%	-1.30%	-1.67%	0.17%	0.04%	-2.40%
평가		팽창률(무하중) 추정값	-0.01%	-0.08%	-0.11%	-0.87%	0.29%	0.21%	-1.50%
		팽창에 의한 부하의 크기	C	B	B	A	E	D	A
		밀착성력 (MPa)	0.45	1.38	1.40	1.55	0.25	0.30	1.62
		밀착성	C	B	A	A	E	D	A
		취급성	B	A	A	C	D	D	E
		종합 평가	C	B	A	C	E	D	E

[0269] 실시예 1~4의 열전도성 시트는, 본 발명의 요건을 만족하는 열전도성 시트이며, 팽창하기 어렵고, 팽창에 의한 부하의 크기에 관한 평가가 「C」 이상의 평가이며, 발열체 및 방열체 등에 부하를 주기 어려운 것을 알았다. 취급성에 관한 평가도 「C」 이상의 평가이며, 알킬 실리콘 화합물을 첨가하는 것에 의한 문제도 발생하기 어려운 것을 알았다. 또한, 열저항값이 낮고, 열전도성이 우수했다.

[0270] 각 실시예에서 얻어진 열전도성 시트는, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 융점보다 낮은 실온에 있어서는, 비교적 강성이 있는 시트였기 때문에, 상기한 바와 같이 슬라이스에 의해 열전도성 시트를 얻을 수 있어, 취급성이 우수했다. 또, 80℃에 있어서도, 액상이 되는 일도 액상물이 흘러나올 일도 없었기 때문에, 장기간 압축해도 펌프 아웃 등이 발생하지 않아, 신뢰성도 양호했다. 또, 열전도성 시트의 표면에 기포 등이 보여지지 않아, 외관이 양호했다.

[0271] 이에 비해, 비교예 1, 2의 열전도성 시트는, 알킬 실리콘 화합물의 함유량이 본 발명에서 규정하는 양보다 적어, 그로 인해 팽창하기 쉽고, 팽창에 의한 부하의 크기에 관한 평가가 D 또는 E이며, 발열체 및 방열체 등에 부하를 주기 쉬운 것을 알았다. 또한, 열저항값이 높고, 열전도성이 뒤떨어져 있었다.

[0272] 또, 비교예 3의 열전도성 시트는, 알킬 실리콘 화합물 (B)의 함유량이, 실리콘 매트릭스 (A)와 알킬 실리콘 화합물 (B)의 합계 100질량부에 대해서 20질량부를 초과하고 있었다. 그로 인해, 실온(23℃)에 있어서 열전도성 시트가 너무 단단해져, 각 부재(발열체, 방열체 등)에 부착할 때에 깨짐이 발생하여, 취급성이 악화된 결과가 되었다.

부호의 설명

[0273] 21 단열재

22 하방의 구리제 블록

23 상방의 구리제 블록

24 히터

25 히트 싱크

26 로드 셀

S 시험편

Θ_{j0} 상방의 구리제 블록의 온도

Θ_{j1} 하방의 구리제 블록의 온도

도면

도면1

