



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0161957
(43) 공개일자 2023년11월28일

- | | |
|--|---|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/04 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
C08K 3/22 (2006.01) C09K 5/14 (2006.01)
H01M 10/655 (2014.01) H01M 50/204 (2021.01)</p> <p>(52) CPC특허분류
C08L 83/04 (2013.01)
C08K 3/013 (2018.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2023-7030994
(22) 출원일자(국제) 2022년03월25일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2023년09월11일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2022/014659
(87) 국제공개번호 WO 2022/210422
국제공개일자 2022년10월06일</p> <p>(30) 우선권주장
JP-P-2021-061809 2021년03월31일 일본(JP)</p> | <p>(71) 출원인
세키수이 폴리머텍 가부시키키가이샤
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸
메 10반 1고</p> <p>(72) 발명자
이와모토 다쓰야
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸
메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키키가이샤
내
기타다 가쿠
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸
메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키키가이샤
내
(뒷면에 계속)</p> <p>(74) 대리인
(유)한양특허법인</p> |
|--|---|

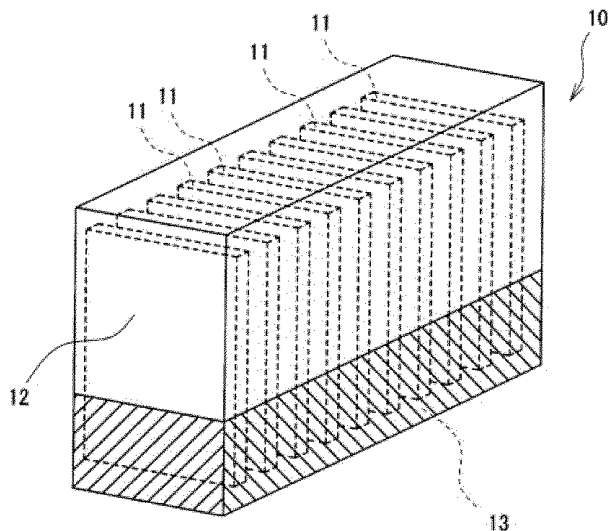
전체 청구항 수 : 총 6 항

(54) 발명의 명칭 열전도성 조성물, 열전도성 부재, 배터리 모듈

(57) 요약

본 발명의 열전도성 조성물은, (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 반응 속도 제어재를 포함하고, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이고, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상이며, 25℃, 전단 속도 10rpm으로 측정된 점도가 220Pa·s 이하이다. 본 발명에 의하면, 비교적 넓은 온도 범위에 있어서, 작업성이 양호하고, 또한 제품으로서의 신뢰성을 유지할 수 있는 열전도성 조성물을 제공할 수 있다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C09K 5/14 (2013.01)
H01M 10/655 (2015.04)
H01M 50/204 (2023.08)
C08K 2003/2227 (2013.01)
Y02E 60/10 (2020.08)

(72) 발명자

가네코 도시키

일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸
메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키키가이샤 내

사토 다이치

일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8쵸
메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키키가이샤 내

명세서

청구범위

청구항 1

- (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산과,
- (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산과,
- (C) 열전도성 충전재와,
- (D) 반응 속도 제어재를 포함하고,

점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이고, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상이며,

25℃, 회전수 10rpm으로 측정한 점도가 220Pa·s 이하인, 열전도성 조성물.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

압축 하중 시험에 있어서, 초기의 압축 하중에 대한 35℃에서 1시간 정치(靜置) 후의 압축 하중의 비율이 145% 이하이고, 초기의 압축 하중에 대한 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중의 비율이 820% 이상인, 열전도성 조성물.

청구항 3

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

추가로, 알콕시실란 화합물을 함유하는, 열전도성 조성물.

청구항 4

청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 있어서,

추가로, 틱소트로피 부여제를 함유하는, 열전도성 조성물.

청구항 5

청구항 1 내지 청구항 4 중 어느 한 항에 기재된 열전도성 조성물을 경화하여 이루어지는, 열전도성 부재.

청구항 6

청구항 5에 기재된 열전도성 부재로 이루어지는 간극재와, 복수의 배터리 셀과, 상기 복수의 배터리 셀을 격납하는 모듈 하우징을 구비하고, 상기 간극재가 모듈 하우징의 내부에 배치되는, 배터리 모듈.

발명의 설명

기술분야

[0001] 본 발명은, 열전도성 조성물, 열전도성 부재, 및, 당해 열전도성 부재를 간극재로 하는 배터리 모듈에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 경화 가능한 열전도성 조성물을, 발열체와 방열체 사이에 충전하고, 그 후, 경화함으로써 형성되는 경화물은, 발열체가 발하는 열을 방열체에 전하는 열전도성 부재로서 사용되고 있다. 경화 가능한 열전도성 조성물은, 유동성이 있기 때문에, 발열체와 방열체 사이의 임의의 간극을 메울 수 있다. 그 때문에, 형성되는 열전도성 부

제는, 발열체와 방열체의 간극이 일정하지 않아도 확실히 그 간극을 메울 수 있어, 열전도성의 간극재로서 이용되고 있다.

[0003] 실은 경화형의 열전도성 조성물은, 리튬 이온 배터리의 방열을 위한 간극재로서 사용되고 있다(예를 들면, 특허 문헌 1). 구체적으로는, 발열체인 배터리 셀과 배터리 셀을 격납하는 모듈 케이스의 사이나, 배터리 모듈과 쿨링 플레이트 사이에 충전되어 사용되고 있다.

[0004] 이러한 열전도성 조성물은, 촉매나 반응 지연제의 배합을 조정함으로써, 경화 반응의 속도를 제어할 수 있어, 피착체로부터의 벗겨짐 등을 방지할 수 있는 것이 보고되어 있다(예를 들면, 특허문헌 2).

선행기술문헌

특허문헌

- [0005] (특허문헌 0001) 국제 공개 제2018/173860호
- (특허문헌 0002) 일본국 특허공개 2005-206733호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 그러나, 열전도성 조성물을 발열체 및 방열체에 도포한 후, 일정한 작업성과 제품의 신뢰성을 확보하는 관점에서, 열전도성 조성물의 경화 속도의 제어가 불충분한 경우가 많다.

[0007] 열전도성 조성물은, 도포(충전)하고 나서 일정 시간 경과 후에 있어서도 유연한 상태를 유지시켜 원하는 두께까지 압축시킴으로써, 후공정에 있어서의 어셈블리가 가능해진다. 여기서, 유연한 상태로 한다는 것은, 유동성을 구비하지 않을 정도의 경화 상태이며, 최종 도달 정도에 비해 유연한 것을 의미한다.

[0008] 이러한 상태를 필요로 하는 이유는, 최종적으로는 어느 정도 강성을 구비하는 정도(예를 들면 E20~E70)에 도달하는 것이 바람직한 한편으로, 어셈블리할 때에는 그것보다 유연한 것이 바람직하기 때문이다.

[0009] 그 때문에, 열전도성 조성물의 경화 속도를 적절히 제어하는 것이 중요해진다.

[0010] 열전도성 조성물의 경화가 느린 경우, 발열체 및 방열체의 사이에 충전하고 나서 일정 시간 경과 후의 유동성이 높기 때문에, 방열체와 발열체 사이에 간극을 발생시켜 버리는 것이나, 진동 등에 의해 발열체와 방열체의 배치에 어긋남이 발생해 버리는 것이 염려된다. 이러한 경우가 발생하면, 제품의 신뢰성이 저하되어 버린다.

[0011] 한편, 열전도성 조성물의 경화가 빠른 경우, 유연성을 유지할 수 있는 시간이 짧아지기 때문에, 상기한 원하는 두께로 압축하는 작업을 행할 수 있는 시간이 짧아져, 작업성이 악화된다. 또한, 후공정의 어셈블리를 행할 때에, 열전도성 조성물의 압축 시에 방열체나 발열체에 큰 부하가 걸려, 방열체나 발열체가 변형될 우려가 있다.

[0012] 또, 열전도성 조성물의 경화 속도는, 외기온에 의해 변동하기 때문에, 계절에 따라 상이한 문제가 발생하기 쉽다. 예를 들면, 여름과 같이 외기온이 높은 경우는, 경화 속도가 빨라지는 경향이 있어, 상기한 바와 같이 원하는 두께로 압축하는 작업을 행할 수 없게 되는 등의 작업성 악화의 문제가 발생하기 쉽다. 한편, 겨울과 같이 외기온이 낮은 경우는, 경화 속도가 느려지기 때문에, 상기한 바와 같이 발열체와 방열체의 배치에 어긋남이 발생하는 등, 제품의 신뢰성이 저하되기 쉬워진다.

[0013] 그래서 본 발명의 과제는, 열전도성 조성물을 발열체나 방열체 등의 피착체에 충전할 때에, 비교적 넓은 온도 범위에 있어서, 작업성이 양호하고, 또한 제품으로서의 신뢰성을 유지할 수 있는 열전도성 조성물을 제공하는 것이다.

[0014] 보다 구체적으로는, 여름철에도 작업성을 양호하게 하는 관점에서, 조성물 조제 후, 25℃에서 6시간 경과한 후의 점도의 초기 점도에 대한 비가 일정 이하(예를 들면 2 이하)인 열전도성 조성물을 제공하는 것을 과제로 한다. 또한, 이에 더하여, 겨울철에 있어서도 제품의 신뢰성을 확보하는 관점에서, 조성물을 조제하여 피착체에 충전하고, 18℃에서 18시간 경과한 후에, 피착체로부터의 위치 어긋남이 발생하기 어려울 정도로 경화되는 것이 가능한 열전도성 조성물을 제공하는 것을 과제로 한다.

[0015] 또한, 본 명세서에서는, 25℃에서 6시간 경과한 후의 점도의 초기 점도에 대한 비가 일정 이하인 열전도성 조성물의 성질을 간단히 「저점도 유지성」으로 기재하기도 한다. 또, 18℃에서 18시간 경과한 후에, 피착체로부터의 위치 어긋남이 발생하기 어려울 정도로 경화되는 것이 가능한 열전도성 조성물의 성질을 간단히 「경시(經時) 경화성」으로 기재하기도 한다.

과제의 해결 수단

[0016] 본 발명자는, 예의 검토의 결과, (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산과, (C) 열전도성 충전제와, (D) 반응 속도 제어제를 포함하는 열전도성 조성물에 있어서, 25℃에 있어서의 점도, 및 35℃에 있어서의 측정 개시로부터 3600초 후 및 7200초 후의 저장 탄성률을 특정 범위로 함으로써, 상기 과제를 해결할 수 있는 것을 찾아내어, 이하의 본 발명을 완성시켰다. 즉, 본 발명은, 이하의 [1]~[6]을 제공한다.

[0017] [1] (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산과, (C) 열전도성 충전제와, (D) 반응 속도 제어제를 포함하고, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이고, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상이며, 25℃, 회전수 10rpm으로 측정한 점도가 220Pa·s 이하인, 열전도성 조성물.

[0018] [2] 압축 하중 시험에 있어서, 초기의 압축 하중에 대한 35℃에서 1시간 정지(靜置) 후의 압축 하중의 비율이 145% 이하이고, 초기의 압축 하중에 대한 18℃에서 18시간 정지 후의 압축 하중의 비율이 820% 이상인, 상기 [1]에 기재된 열전도성 조성물.

[0019] [3] 추가로, 알콕시실란 화합물을 함유하는, 상기 [1] 또는 [2]에 기재된 열전도성 조성물.

[0020] [4] 추가로, 텍스트로피 부여제를 함유하는, 상기 [1] 내지 [3] 중 어느 한 항에 기재된 열전도성 조성물.

[0021] [5] 상기 [1]~[4] 중 어느 한 항에 기재된 열전도성 조성물을 경화하여 이루어지는, 열전도성 부재.

[0022] [6] 상기 [5]에 기재된 열전도성 부재로 이루어지는 간극제와, 복수의 배터리 셀과, 상기 복수의 배터리 셀을 격납하는 모듈 하우징을 구비하고, 상기 간극제가 모듈 하우징의 내부에 배치되는, 배터리 모듈.

발명의 효과

[0023] 본 발명에 의하면, 비교적 넓은 온도 범위에 있어서, 작업성이 양호하고, 또한 제품으로서의 신뢰성을 유지할 수 있는 열전도성 조성물을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0024] 도 1은, 본 발명에 따른 배터리 모듈의 대표적 구성을 나타내는 사시도이다.

도 2는, 배터리 모듈이 갖는 배터리 셀의 대표적 구성을 나타내는 사시도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0025] [열전도성 조성물]

[0026] 이하, 본 발명의 열전도성 조성물에 대해 상세하게 설명한다.

[0027] 본 발명의 열전도성 조성물은, (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산과, (C) 열전도성 충전제와, (D) 반응 속도 제어제를 포함하고, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이고, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상이며, 25℃, 회전수 10rpm으로 측정한 점도가 220Pa·s 이하인, 열전도성 조성물이다.

[0028] <저장 탄성률>

[0029] 본 발명의 열전도성 조성물은, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이다. 저장 탄성률 G'1이 2000Pa를 초과하면, 열전도성 조성물의 저점도 유지성이 저하되어, 작업성이 악화된다. 저장 탄성률 G'1은,

바람직하게는 1800Pa 이하이고, 보다 바람직하게는 1600Pa 이하이다. 저장 탄성률 G'1의 하한은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들면 100Pa이다.

[0030] 본 발명의 열전도성 조성물은, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상이다. 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 미만이면, 열전도성 조성물의 경시 경화성이 악화되어, 제품으로서의 신뢰성을 확보하는 것이 어려워진다. 저장 탄성률 G'2는, 바람직하게는 4500Pa 이상이고, 보다 바람직하게는 5000Pa 이상이다. 저장 탄성률 G'2의 상한은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들면 50000Pa이다.

[0031] 이들, 저장 탄성률 G'1 및 G'2는, 열전도성 조성물에 함유되는 반응 속도 제어제의 종류 및 양 등에 의해 조절할 수 있으며, 그 외에도 (A) 성분, (B) 성분 등의 반응 경화형 실리콘의 종류 및 양, 필요에 따라 배합되는 비(非)반응성 실리콘, 알콕시실란 화합물의 종류 및 양 등에 의해 조절할 수 있다.

[0032] 본 발명의 열전도성 조성물은, 점탄성 측정 장치를 이용한 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건에 있어서의 측정에 있어서, 측정 개시로부터 600초 후의 저장 탄성률 G'0이, 바람직하게는 300Pa 이하이고, 보다 바람직하게는 200Pa 이하이며, 더욱 바람직하게는 100Pa 이하이다. 저장 탄성률 G'0을 이러한 범위로 함으로써, 열전도성 조성물을, 발열체와 방열체 사이에 충전할 때의 충전성이 양호해진다.

[0033] 또한, 저장 탄성률의 측정은, 열전도성 조성물을 조제 후 바로 행하는 것으로 한다. 예를 들면 후술하는 바와 같이 열전도성 조성물이, 제1제와 제2제의 2액형인 경우는, 제1제와 제2제를 혼합하여 열전도성 조성물을 조제한 후 바로, 저장 탄성률의 측정을 개시하는 것으로 한다.

[0034] <압축 하중>

[0035] 본 발명의 열전도성 조성물은, 압축 하중 시험에 있어서, 초기의 압축 하중에 대한 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중의 비율이 145% 이하인 것이 바람직하다. 이에 의해, 열전도성 조성물의 저점도 유지성이 양호해져, 작업성이 향상한다. 초기의 압축 하중에 대한 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중의 비율은, 보다 바람직하게는 130% 이하이고, 더욱 바람직하게는 120% 이하이다.

[0036] 또한, 초기의 압축 하중(N)에 대한 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중(N)의 비율(%)은, 이하의 식으로 산출된다.

[0037] $100 \times (35^\circ\text{C에서 1시간 경과 후의 압축 하중}) / (\text{초기의 압축 하중})$

[0038] 본 발명의 열전도성 조성물은, 압축 하중 시험에 있어서, 초기의 압축 하중에 대한 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중의 비율이 820% 이상인 것이 바람직하다. 이에 의해, 열전도성 조성물의 경화성이 양호해져, 제품의 신뢰성이 향상한다. 초기의 압축 하중에 대한 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중의 비율은, 보다 바람직하게는 900% 이상이고, 더욱 바람직하게는 1000% 이상이다.

[0039] 또한, 초기의 압축 하중(N)에 대한 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중(N)의 비율(%)은, 이하의 식으로 산출된다.

[0040] $100 \times (18^\circ\text{C에서 18시간 경과 후의 압축 하중}) / (\text{초기의 압축 하중})$

[0041] 압축 하중은, 이하와 같이 측정한다.

[0042] 열전도성 조성물을 조제한 후 바로, 만능 재료 시험기(예를 들면, 토요정기사 제조 스트로그래프)의 압축 시험용 스테이지 상에 $5.75 \pm 0.25\text{g}$ 을 토출하고, 당해 토출물에 대해 압축 시험을 행한다.

[0043] 초기의 압축 하중을 측정하는 경우는, 토출된 토출물에 대해 즉시, 압축 시험을 행한다. 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는, 토출된 토출물을 35℃에서 1시간 정치한 후에 압축 시험을 행한다. 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는, 토출된 토출물을 18℃에서 18시간 정치한 후에 압축 시험을 행한다.

[0044] 압축 시험은, 토출물을 40mmΦ의 푸셔(압축 시험용 지그)에 의해, 압축 속도 60mm/min으로 압축하고, 지그 간의 갭이 0.665mm까지 압축되었을 때의 하중값을 읽어내어, 이것을 압축 하중으로 한다. 압축 시험을 행할 때의 온도는, 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는 35℃, 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는 18℃, 초기의 압축 하중을 측정하는 경우의 온도는 22℃이다.

[0045] <점도>

- [0046] 본 발명의 열전도성 조성물은, 25℃에 있어서, 회전수 10rpm으로 측정된 점도가 220Pa·s 이하이다. 당해 점도가 220Pa·s를 초과하면, 열전도성 조성물을 발열체와 방열체 사이에 충전할 때의 충전성이 나빠진다. 충전성을 높이는 관점에서, 상기 점도는, 바람직하게는 200Pa·s 이하이고, 보다 바람직하게는 180Pa·s 이하이다.
- [0047] <실리콘계 재료>
- [0048] (A 성분, B 성분)
- [0049] 본 발명의 열전도성 조성물은, (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산(이하 (A) 성분이라고도 한다), 및 (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산(이하 (B) 성분이라고도 한다)을 함유한다.
- [0050] 또한, 본 명세서에 있어서, (A) 성분 및 (B) 성분을 반응 경화형 실리콘이라고 하기도 한다.
- [0051] (A) 성분은 주체, (B) 성분은 경화제로서 일반적으로 사용되는 것이다. (A) 성분 및 (B) 성분은 부가 반응에 의해 반응하여 경화하고, 실리콘 고무로 이루어지는 매트릭스를 형성한다. 실리콘 고무는 압축 변형이 용이하기 때문에, 본 발명의 열전도성 조성물로 형성되는 열전도성 부재는, 발열체와 방열체 사이에 장착하기 쉬워진다.
- [0052] (A) 성분은, 일 분자 중에 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산이면 특별히 제한되지 않는다. (A) 성분에서 일 분자 중의 알케닐기의 수는, 바람직하게는 2~20이며, 보다 바람직하게는 2~10이다.
- [0053] (A) 성분에서 알케닐기로서는, 예를 들면 탄소수 2~8의 것을 들 수 있으며, 비닐기, 알릴기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기 등을 들 수 있다.
- [0054] (A) 성분은 1종만을 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0055] (B) 성분은, 일 분자 중에 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산이면 특별히 제한되지 않는다. 히드로실릴기란 규소 원자에 결합한 수소 원자(SiH기)를 의미한다. (B) 성분에서 일 분자 중의 히드로실릴기의 수는, 바람직하게는 2~100이며, 보다 바람직하게는 2~50이다.
- [0056] (B) 성분은, 1종만을 사용해도 되고, 2종 이상을 병용할 수 있다.
- [0057] (B) 성분으로서, (B2) 히드로실릴기의 함유율이 2mmol/g 이상인 하이드로젠오르가노폴리실록산(이하, (B2) 성분이라고도 한다)을 포함하는 것이 바람직하다. 이에 의해, 열전도성 조성물의 저장 탄성률이 높아지는 속도가 빨라지기 때문에, 소정 시간 내에 원하는 탄성률의 값이 되도록 조정하기 쉬워진다.
- [0058] (B2) 성분의 히드로실릴기의 함유율은 바람직하게는 3mmol/g 이상이고, 보다 바람직하게는 4mmol/g 이상이다.
- [0059] (B2) 성분의 함유량은, 열전도성 조성물의 저장 탄성률 G'1 및 저장 탄성률 G'2를 원하는 값으로 조정하기 쉽게 하는 관점에서, 열전도성 조성물에 포함되는 실리콘계 재료의 합계를 100질량부로 했을 경우에, 바람직하게는 0.1~10질량부이고, 보다 바람직하게는 0.2~5질량부이며, 더욱 바람직하게는 0.3~3질량부이다. 여기서, 본 명세서에 있어서의 실리콘계 재료란, 폴리실록산 구조를 갖는 화합물을 의미하고, 예를 들면, 상기한 (A) 성분, (B) 성분 및 필요에 따라 배합되는 비반응성 실리콘은 실리콘계 재료이다.
- [0060] (A) 성분 및 (B) 성분은, 경화 전에는 액상인 것이 바람직하다. 경화 전에 액상임으로써, 열전도성 충전재를 고충전하기 쉬워진다. 또한, 본 명세서에 있어서 액상이란, 상온(23℃), 1기압 하에서 액체인 것을 말한다. (A) 성분 및 (B) 성분의 부가 반응은, 부가 반응 촉매의 존재 하에 있어서 행하면 되고, 부가 반응 촉매는 백금 촉매인 것이 바람직하다.
- [0061] (비반응성 실리콘)
- [0062] 본 발명의 열전도성 조성물은, 실리콘 재료로서 상기한 반응 경화형 실리콘 이외에, 비반응성 실리콘을 포함해도 된다. 비반응성 실리콘을 포함함으로써, 유연성을 부여할 수 있으며, 상기한 저장 탄성률 G'1 및 G'2를 원하는 범위로 조정하기 쉬워진다.
- [0063] 비반응성 실리콘으로서, 디메틸 실리콘 오일, 페닐메틸 실리콘 오일 등의 스트레이트 실리콘 오일 외, 실록산 결합을 갖는 주쇄, 주쇄에 결합하는 측쇄, 또는 주쇄의 말단에 비반응성의 유기기를 도입한, 비반응성의 변성 실리콘 오일 등을 들 수 있다. 비반응성의 변성 실리콘 오일로서는, 예를 들면, 폴리에테르 변성 실리콘 오일, 아랄킬 변성 실리콘 오일, 플루오로알킬 변성 실리콘 오일, 장쇄 알킬 변성 실리콘 오일, 고급 지방산 에스테르

변성 실리콘 오일, 고급 지방산 아마이드 변성 실리콘 오일, 및 페닐 변성 실리콘 오일을 들 수 있다. 상기 중에서도, 비반응성 실리콘으로서 스트레이트 실리콘 오일이 바람직하고, 스트레이트 실리콘 오일 중에서도, 디메틸 실리콘 오일이 보다 바람직하다. 상기 비반응성 실리콘 오일은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다.

[0064] 비반응성 실리콘의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 실리콘계 재료 100질량부에 대해, 바람직하게는 5~60질량부이고, 보다 바람직하게는 10~50질량부이며, 더욱 바람직하게는 20~40질량부이다.

[0065] <(C) 성분>

[0066] 본 발명의 열전도성 조성물은, (C) 열전도성 충전제를 함유한다. (C) 열전도성 충전제를 함유함으로써, 열전도성 조성물에 의해 형성되는 열전도성 부재의 열전도성이 향상한다.

[0067] (C) 열전도성 충전제로서는, 예를 들면, 금속, 금속 산화물, 금속 질화물, 금속 수산화물, 탄소 재료, 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물 등을 들 수 있다. 또, (C) 열전도성 충전제의 형상은, 구상, 부정형의 분말 등을 들 수 있다.

[0068] (C) 열전도성 충전제에 있어서, 금속으로서는, 알루미늄, 구리, 니켈 등, 금속 산화물로서는, 알루미늄이나 대표되는 산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화아연 등, 금속 질화물로서는 질화알루미늄 등을 예시할 수 있다. 금속 수산화물로서는, 수산화알루미늄을 들 수 있다. 또한, 탄소 재료로서는 구상 흑연 등을 들 수 있다. 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물로서는, 석영, 질화붕소, 탄화규소 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 열전도성 부재의 방열성 향상의 관점에서, 산화알루미늄이 바람직하고, 난연성을 높이고 싶은 경우에는 수산화알루미늄이 바람직하다.

[0069] (C) 열전도성 충전제는, 상기한 것을 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0070] (C) 열전도성 충전제의 평균 입경은 0.1~200 μm 인 것이 바람직하고, 0.5~100 μm 인 것이 보다 바람직하며, 1~70 μm 인 것이 더욱 바람직하다.

[0071] (C) 열전도성 충전제는, 평균 입경이 0.1 μm 이상 5 μm 이하인 소입경 열전도성 충전제와, 평균 입경이 5 μm 초과 200 μm 이하인 대입경 열전도성 충전제를 병용하는 것이 바람직하다. 평균 입경이 상이한 열전도성 충전제를 사용함으로써, 충전율을 높일 수 있다.

[0072] 또한, (C) 열전도성 충전제의 평균 입경은, 전자 현미경 등으로 관찰하여 측정할 수 있다. 보다 구체적으로는, 예를 들면 전자 현미경이나 광학 현미경을 이용하여, 임의의 (C) 열전도성 충전제 50개의 입경을 측정하고, 그 평균값(상가 평균값)을 평균 입경으로 할 수 있다.

[0073] (C) 열전도성 충전제의 함유량은, 실리콘계 재료 100질량부에 대해, 바람직하게는 150~3000질량부, 보다 바람직하게는 200~2000질량부, 더욱 바람직하게는 300~1000질량부이다. (C) 열전도성 충전제의 함유량을 상기 하한값 이상으로 함으로써, 일정한 열전도성을 열전도성 부재에 부여할 수 있다. (C) 열전도성 충전제의 함유량을 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 부재 중에 (C) 열전도성 충전제를 적절히 분산시킬 수 있다. 또, 열전도성 조성물의 점도가 필요 이상으로 높아지거나 하는 것도 방지할 수 있다.

[0074] <(D) 성분>

[0075] 본 발명의 열전도성 조성물은, 반응 속도 제어제를 함유한다. 반응 속도 제어제를 함유함으로써, 저장 탄성률 G'1 및 G'2를 상기한 원하는 값으로 조정하기 쉬워진다.

[0076] 반응 속도 제어제는, (A) 성분의 알케닐기와 (B) 성분의 히드로실릴기의 부가 반응을 억제하기 위한 것이며, 일반적으로 반응 경화형 실리콘과 병용하여 사용되고 있는 것을 제한없이 사용할 수 있는데, 이와와 같이 열중량 측정에 있어서, 일정한 중량 감소를 나타내는 것을 적합하게 사용할 수 있다.

[0077] 반응 속도 제어제는, 열중량 측정에 있어서, 50mg을 시료로서 이용하고, 질소 분위기 하에서, 실온(25 $^{\circ}\text{C}$)으로부터 승온 속도 4 $^{\circ}\text{C}/\text{분}$ 으로 35 $^{\circ}\text{C}$ 까지 승온시키고, 그 후 35 $^{\circ}\text{C}$ 의 정온(定溫)으로 승온 개시로부터 120분 경과할 때까지 유지하는 조건에 있어서, 측정 개시로부터 60분 후의 중량을 W_{60} , 120분 후의 중량을 W_{120} 으로 했을 때에, $W_{60}-W_{120}$ 이 0.3mg 이상인 것이 바람직하다.

[0078] $W_{60}-W_{120}$ 이 0.3mg 이상이면, 반응 속도 제어제가 일정한 휘발성을 구비함으로써, 반응 속도 제어제가 휘발되는 표면으로부터 열전도성 조성물을 경화시킬 수 있어, 전체의 경화 속도를 높이지 않고, 표면 쪽이 우선적으로 경화

가 진행된 상태가 된다. 이에 의해, 제품의 신뢰성을 확보하기 쉬워진다.

- [0079] $W_{60}-W_{120}$ 은, 바람직하게는 1.0mg 이하이다. $W_{60}-W_{120}$ 이 1.0mg 이하인 반응 속도 제어제는, 적합한 휘발 속도가 되기 때문에, 열전도성 조성물이 너무 경화되는 것이 억제되어, 일정한 작업성을 확보할 수 있다.
- [0080] 반응 속도 제어제의 종류로서는 특별히 제한되지 않지만, 아세틸렌 부위를 갖는 반응 속도 제어제(탄소-탄소 삼중 결합을 갖는 반응 속도 제어제)인 것이 바람직하다. 또, 규소 원자를 갖고 또한 아세틸렌 부위를 갖는 반응 속도 제어제인 것이 바람직하다. 또한, 아세틸렌 부위(아세틸렌기)에 대한 β 위치에 전자 흡인성 원자를 갖는 반응 속도 제어제인 것이 보다 바람직하다. 이러한 화합물로서는, 예를 들면 아세틸렌기가 결합하는 탄소 원자 또는 규소 원자에 히드록실기(전자 흡인성인 산소 원자가 β 위치임)가 결합하는 반응 속도 제어제를 들 수 있다.
- [0081] 반응 속도 제어제의 함유량은, 반응 속도 제어제의 종류에 따라 적절히 조정하면 되는데, 실리콘계 재료 100질량부에 대해, 예를 들면 0.05~3질량부로 하는 것이 바람직하다.
- [0082] 그 중에서도, $W_{60}-W_{120}$ 이 0.3mg 이상이고 또한 1.0mg 이하의 반응 속도 제어제를, 실리콘계 재료 100질량부에 대해, 바람직하게는 0.05~1질량부, 보다 바람직하게는 0.1~0.8질량부 함유하는 것이 바람직하다. 이에 의해, 저점도 유지성 및 경화성을 양립하기 쉬워져, 작업성 및 제품의 신뢰성을 확보하기 쉬워진다.
- [0083] <알콕시실란 화합물>
- [0084] 본 발명의 열전도성 조성물은, 알콕시실란 화합물을 함유하는 것이 바람직하다. 알콕시실란 화합물을 함유함으로써, 조성물 중의 열전도성 충전제의 분산성이 향상한다. 또, 알콕시실란 화합물을 함유함으로써, 저장 탄성을 G'1을 낮게 하기 쉬워져, 작업성이 양호해진다.
- [0085] 알콕시실란 화합물은, 규소 원자(Si)가 갖는 4개의 결합 중, 1~3개가 알콕시기와 결합하고, 잔여의 결합이 유기 치환기와 결합한 구조를 갖는 화합물이다.
- [0086] 알콕시실란 화합물이 갖는 알콕시기로서는, 예를 들면, 메톡시기, 에톡시기, 프로톡시기, 부톡시기, 펜톡시기, 및 헥사톡시기를 들 수 있다. 알콕시실란 화합물은, 열전도성 조성물 중에 이합체로서 함유되어 있어도 된다.
- [0087] 알콕시실란 화합물 중에서도, 입수 용이성의 관점에서, 메톡시기 및 에톡시기 중 적어도 어느 1개를 갖는 알콕시실란 화합물이 바람직하다. 알콕시실란 화합물이 갖는 알콕시기의 수는, 조성물 중의 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 1종인 것이 바람직하다.
- [0088] 알콕시실란 화합물이 갖는 유기 치환기에 포함되는 관능기로서는, 예를 들면, 아크릴로일기, 알킬기, 카르복실기, 비닐기, 메타크릴기, 방향족기, 아미노기, 이소시아네이트기, 이소시아누레이트기, 에폭시기, 히드록실기, 및 메르캡토기를 들 수 있다. 여기서, 열전도성 조성물의 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 메르캡토기를 포함하지 않는 것이 바람직하다.
- [0089] 알콕시실란 화합물은, 작업성 향상의 관점 등에서, 규소 원자에 결합한 알킬기를 갖는 알킬알콕시실란 화합물, 즉, 유기 치환기로서 알킬기를 갖는 알콕시실란 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 따라서, 디알킬디알콕시실란 화합물, 알킬트리알콕시실란 화합물이 바람직하고, 그 중에서도 알킬트리알콕시실란 화합물이 바람직하다.
- [0090] 규소 원자에 결합한 알킬기의 탄소수는, 예를 들면 1~16이면 된다. 또, 트리메톡시실란 화합물, 트리에톡시실란 화합물 등의 트리알콕시실란 화합물에 있어서는, 상기 알킬기의 탄소수가 6 이상인 것이 바람직하고, 8 이상인 것이 더욱 바람직하며, 또, 탄소수가 12 이하인 것이 바람직하고, 10 이하인 것이 보다 바람직하다.
- [0091] 한편, 디메톡시실란 화합물, 트리에톡시실란 화합물 등의 디알콕시실란 화합물에 있어서는, 상기 알킬기의 탄소수는 1 이상이면 되고, 또, 탄소수 10 이하가 바람직하며, 6 이하가 보다 바람직하고, 4 이하가 더욱 바람직하다.
- [0092] 알킬기 함유 알콕시실란 화합물로서는, 예를 들면, 메틸트리메톡시실란, 디메틸디메톡시실란, 디에틸디메톡시실

란, 트리메틸메톡시실란, 메틸트리에톡시실란, 디메틸디에톡시실란, 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.

- [0093] 알킬기 함유 알콕시실란 화합물 중에서도, 작업성 향상의 관점 등에서, n-데실트리메톡시실란, 디메틸디메톡시실란, n-옥틸트리에톡시실란이 바람직하고, n-데실트리메톡시실란이 보다 바람직하다.
- [0094] 열전도성 조성물에 있어서, 실리콘계 재료 100질량부에 대한, 알콕시실란 화합물의 함유량은, 0.1~10질량부인 것이 바람직하고, 0.5~5질량부인 것이 보다 바람직하며, 1~3질량부인 것이 더욱 바람직하다. 알콕시실란 화합물의 함유량이, 이들 하한값 이상이면, 점도를 낮게 하기 쉬워져, 작업성이 양호해진다. 알콕시실란 화합물의 함유량이, 이들 상한값 이하이면, 경화 후에 남는 휘발 성분의 양이 필요 이상으로 많아지지 않기 때문에, 경화물의 경시에서의 물성 변화를 작게 할 수 있다.
- [0095] <티소트로피 부여제>
- [0096] 본 발명의 열전도성 조성물은, 티소트로피 부여제를 함유하는 것이 바람직하다. 티소트로피 부여제를 함유함으로써, 열전도성 조성물이 보관 시에 고점도여도, 사용 시에 교반 등에 의해 저점도화될 수 있어, 피착체에 대한 충전성이나 도포성 등이 양호해진다.
- [0097] 티소트로피 부여제로서, 흙실리카, 탄산칼슘, 알루미늄 등의 무기계 티소트로피 부여제, 및 경화 피마자유나 스테아르산아미드 등의 유기계 티소트로피 부여제 등을 사용할 수 있다. 열안정성의 관점에서, 무기계 티소트로피 부여제가 바람직하고, 그 중에서도 흙실리카 또는 알루미늄이 바람직하다. 무기계 티소트로피 부여제는, 실란 커플링제 등으로 표면 처리하여 이루어지는 소수성의 무기계 티소트로피 부여제가 바람직하고, 표면 처리된 소수성 흙실리카 또는 표면 처리된 소수성 알루미늄이 보다 바람직하다.
- [0098] 티소트로피 부여제의 함유량은, 실리콘계 재료 100질량부에 대해, 바람직하게는 0.5~10질량부이며, 보다 바람직하게는 1~5질량부이다. 티소트로피 부여제의 함유량이, 이들 하한값 이상이면, 열전도성 충전제의 침전을 억제하여 열전도성 조성물의 보존 안정성이 향상한다. 티소트로피 부여제의 함유량이, 이들 상한값 이하이면, 열전도성 조성물의 충전성, 도포성이 향상한다.
- [0099] 본 발명의 열전도성 조성물 중에는, 여러 가지의 첨가제를 함유시킬 수 있다. 첨가제로서는, 예를 들면, 촉매, 분산제, 난연제, 가소제, 산화 방지제, 착색제 등을 들 수 있다.
- [0100] 본 발명의 열전도성 조성물의 형태는, 1액형이어도 되고, 제1제와 제2제를 조합하여 이루어지는 2액형이어도 되는데, 보존 안정성의 관점에서, 2액형이 바람직하다.
- [0101] 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1제와 제2제의 질량비(제2제/제1제)는, 1 또는 1에 가까운 값인 것이 바람직하고, 구체적으로는 0.9~1.1이 바람직하고, 0.95~1.05가 보다 바람직하다. 이와 같이, 제1제와 제2제의 질량비를 1 또는 1에 가까운 값으로 함으로써, 열전도성 조성물의 조제가 용이해진다. 또, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1제와 제2제의 점도비(제2제/제1제)도, 1 또는 1에 가까운 값인 것이 바람직하고, 구체적으로는 0.5~2.0이 바람직하며, 0.8~1.2가 보다 바람직하다. 이와 같이, 제1제와 제2제의 질량비를 1 또는 1에 가까운 값으로 함으로써, 열전도성 조성물을 균일하게 혼합하기 쉬워진다. 또한, 질량비나 점도비를 조정하는 방법은 후술한다.
- [0102] 2액형의 열전도성 조성물은, 보다 구체적으로는, 제1제가 (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산(A 성분)(주제)을 포함하고, 제2제가 (B) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산(B 성분)(경화제)을 포함하는 것이다.
- [0103] 부가 반응 촉매는 제1제에 함유되고, 제2제에는 함유되지 않는 것이 바람직하다. 그렇게 함으로써, 제1제와 제2제는 혼합 전에는 보존 안정성이 뛰어나고, 혼합 후에는 반응이 촉진되어, 신속하게 경화되는 것으로 할 수 있어, 경화에 의해 얻어지는 열전도성 부제의 각종 물성을 양호하게 할 수 있다. 그 요인은 확실하지 않지만, 백금 촉매 등의 부가 반응 촉매가, (A) 성분의 부가 반응 부위인, 알케닐기에 배위한 상태가 되어, 경화가 진행되기 쉽기 때문이라고 추정된다.
- [0104] (C) 열전도성 충전제는, 제1제 및 제2제 중 적어도 어느 한쪽에 함유되면 되는데, 바람직하게는 제1제 및 제2제 양쪽에 함유시킨다. (C) 열전도성 충전제를 제1제 및 제2제 양쪽에 함유시키면, 제1제와 제2제를 혼합하기 쉬

워진다. 또, 열전도성 조성물을 제작할 때의 제1제에 대한 제2제의 질량비 및 점도비를 1 또는 1에 가까운 값으로 할 수 있기 때문에, 2액형으로서 사용하기 쉬워진다.

[0105] 또, 제2제는, (A) 성분을 함유하는 것이 바람직하다. 제2제가 경화제인 (B) 성분에 대하여 주제인 (A) 성분도 함유함으로써, 열전도성 조성물을 제작할 때의 제1제에 대한 제2제의 질량비 및 점도비를 1 또는 1에 가까운 값으로 조정하기 쉬워진다. 한편, 제1제에는, 경화제인 (B) 성분이 함유되지 않으면 된다.

[0106] 또, 제2제는 (D) 반응 속도 제어제를 함유하는 것이 바람직하고, 제1제는 (D) 반응 속도 제어제를 함유하지 않는 것이 바람직하다.

[0107] [열전도성 부재]

[0108] 본 발명의 열전도성 조성물을 경화함으로써, 열전도성 부재를 형성할 수 있다. 열전도성 부재(즉, 열전도성 조성물의 경화물)의 경도는, JIS K 6253의 타입 E의 경도계에 의해 측정되는 값(이하 「E 경도」라고 한다)으로 예를 들면 20~70이다.

[0109] 열전도성 부재(즉, 열전도성 조성물의 경화물)의 열전도율은, 1.0W/m·K 이상인 것이 바람직하고, 1.5W/m·K 이상인 것이 보다 바람직하며, 2.0W/m·K 이상인 것이 더욱 바람직하다. 이들 하한값 이상으로 함으로써, 열전도성이 양호해진다. 그 때문에, 예를 들면 배터리 셀 모듈의 간극재로서 사용하는 경우에는, 배터리 셀로부터 발생하는 열을, 간극재를 경유하여, 모듈 하우징에 효율적으로 전할 수 있어, 배터리 셀의 온도의 과도한 상승을 억제할 수 있다. 열전도성 부재의 열전도율은, 높으면 높을수록 좋은데, 실용적으로는, 예를 들면 7W/m·K 이하이다.

[0110] [배터리 모듈]

[0111] 본 발명에 따른 배터리 모듈은, 열전도성 부재로 이루어지는 간극재와, 복수의 배터리 셀과, 상기 복수의 배터리 셀을 격납하는 모듈 하우징을 구비하고, 상기 간극재는, 모듈 하우징의 내부에 배치된다.

[0112] 열전도성 부재로 이루어지는 간극재는, 배터리 셀 상호간, 및 배터리 셀과 모듈 하우징간에 충전되어 있으며, 충전되어 있는 간극재는, 배터리 셀, 및 모듈 하우징에 밀착한다. 이에 의해, 배터리 셀간의 간극재는, 배터리 셀 상호간의 이격 상태를 유지하는 기능을 갖고 있다. 또, 배터리 셀과 모듈 하우징 사이의 간극재는, 배터리 셀과 모듈 하우징의 쌍방에 밀착하여, 배터리 셀에서 발생하는 열을 모듈 하우징에 전하는 기능을 갖고 있다.

[0113] 도 1은, 배터리 모듈의 구체적인 구성을 나타낸다. 도 2는 각 배터리 셀의 구체적인 구성을 나타낸다. 도 1에서 나타내는 바와 같이, 배터리 모듈(10)의 내부에는, 복수의 배터리 셀(11)이 배치된다. 각 배터리 셀(11)은, 가요성의 외장 필름 내에 래미네이트하여 봉입한 것이며, 전체적인 형상은, 높이나 폭의 크기에 비해 두께가 얇은 편평체이다. 이러한 배터리 셀(11)은, 도 2에서 나타내는 바와 같이, 양극(11a)과 음극(11b)이 외부에 나타나고, 편평면의 중앙부(11c)는 압착된 단부(11d)보다 두껍게 형성되어 있다.

[0114] 도 1에 나타내는 바와 같이, 각 배터리 셀(11)은, 그 편평면끼리 대향하도록 배치되어 있다. 도 1의 구성에 있어서, 간극재(13)는, 모듈 하우징(12)의 내부에 격납되는, 복수의 배터리 셀(11)의 전체를 덮도록 충전되어 있지 않다. 간극재(13)는, 모듈 하우징(12)의 내부의 일부분(바닥 측 부분)에 존재하는 간극을 채우도록 충전되어 있다. 간극재(13)는, 배터리 셀(11) 상호간, 및, 배터리 셀(11)과 모듈 하우징(12) 사이에 충전되고, 이 부분의 배터리 셀(11)의 표면, 및, 모듈 하우징(12)의 내면과 밀착되어 있다.

[0115] 배터리 셀(11) 상호의 사이에 충전되는 간극재(13)는, 쌍방의 배터리 셀(11)의 표면에 접촉되어 있는데, 간극재(13) 자체는, 상기한 경도를 가짐으로써, 적당한 탄성과 유연성을 갖고 있으며, 배터리 셀(11) 상호의 간격을 변위하는 외력이 인가되어도, 외력에 의한 뒤틀림 변형을 완화할 수 있다. 따라서, 간극재(13)는, 배터리 셀(11) 상호간의 이격 상태를 유지하는 기능을 갖고 있다.

[0116] 배터리 셀(11)과 모듈 하우징(12)의 내면 사이의 간극에 충전되어 있는 간극재(13)도, 배터리 셀(11)의 표면과, 모듈 하우징(12)의 내면에, 긴밀하게 접촉되어 있다. 그 결과, 배터리 셀(11)의 내부에서 발생하는 열은, 배터리 셀(11)의 표면에 접촉되어 있는 간극재(13)를 경유하여, 당해 간극재(13)의 다른 면에 의해 밀착되어 있는 모듈 하우징(12)의 내면으로 전해진다.

[0117] 배터리 모듈(10) 내로의 간극재(13)의 형성은, 일반적인 디스펜서를 이용하여, 액상의 열전도성 조성물을 충전하여 도포한 후, 그 액상의 열전도성 조성물을 경화시킴으로써 행하면 된다. 또, 본 발명의 열전도성 조성물은, 상기한 바와 같이, 뛰어난 저점도 유지성 및 경시 경화성을 구비하고 있기 때문에, 간극재(13)의 형

성 시의 작업성이 양호하고, 또한 간극재(13)는 제품으로서의 신뢰성이 뛰어난 것이 된다.

[0118] 간극재(13)를 형성시킬 때, 상기와 같이 2액형의 열전도성 조성물을 사용하는 것이 바람직하다. 2액형은, 보관이 용이함과 더불어, 사용 직전에 혼합하면 디스펜서로 도포하는 작업 시에는 경화되기 어렵고, 도포 후에는 신속하게 경화시킬 수 있다. 또, 디스펜서에서의 도포는, 배터리 모듈(10)의 하우징(12) 내의 비교적 깊숙하게까지, 액상의 열전도성 조성물을 충전시킬 수 있는 점에서도 바람직하다.

[0119] 배터리 셀(11)을 덮는 간극재(13)는, 배터리 셀(11)의 한쪽 측에 있어서, 각 배터리 셀(11)의 20~40%를 덮는 것이 바람직하다. 20% 이상으로 함으로써, 배터리 셀(11)을 안정적으로 유지할 수 있다. 또, 발열량이 큰 배터리 셀을 충분히 덮음으로써, 방열 효율이 양호해진다. 한편으로, 40% 이하로 함으로써, 배터리 셀(11)로부터 발생하는 열의 방열을 효율적으로 행할 수 있어, 중량 증대나, 작업성의 악화 등도 방지할 수 있다. 또, 방열 효율을 양호하게 하기 위해, 배터리 셀(11)의 전극(11a, 11b)이 있는 측을 간극재(13)로 덮는 것이 바람직하고, 전극(11a, 11b)의 전체를 간극재(13)로 덮는 것이 보다 바람직하다. 이상과 같이, 배터리 모듈(10)은, 배터리 셀(11)로부터 발생한 열을, 간극재(13)를 경유하여, 모듈 하우징(12)으로 빼낼 수 있다.

[0120] 간극재(13)는, 복수의 배터리 모듈(10)을 내부에 구비하는 배터리 팩에 사용하는 것도 바람직하다. 배터리 팩은, 일반적으로는, 복수의 배터리 모듈(10)과, 당해 복수의 배터리 모듈(10)을 수용하는 배터리 팩의 하우징을 구비한다. 당해 배터리 팩에 있어서, 배터리 모듈(10)과 배터리 팩의 하우징 사이에 간극재(13)를 설치할 수 있다. 이에 의해, 상기와 같이 모듈 하우징(12)으로 빼낸 열을 또한, 배터리 팩의 하우징으로 빼낼 수 있어, 효과적인 방열이 가능해진다.

[0121] **실시예**

[0122] 이하, 본 발명을 실시예에 의해 더욱 상세하게 설명하는데, 본 발명은 이들 예에 의해 조금도 한정되지 않는다.

[0123] [저장 탄성률]

[0124] 제1제와 제2제를 각 50cc의 2액 병렬 카트리지에 충전하고 나서 24hr 정치한 후에, 스태틱 믹서를 사용하여 점탄성 측정 장치(예를 들면, 티·에이·인스트루먼트사 제조 ARES-G2)의 25mm 패럴렐 플레이트 상에 제1제와 제2제의 혼합물(질량비 1 : 1)인 열전도성 조성물을 토출했다. 토출 후 바로 패럴렐 플레이트간의 갭을 1mm로 조정하고, 35℃, 전단 모드, 주파수 1Hz, 변형률 10%의 조건으로, 저장 탄성률 G'의 시간 변화의 측정을 개시하고, 측정 개시로부터 600초 후의 저장 탄성률 G'0, 측정 개시로부터 3600초 후의 저장 탄성률 G'1, 측정 개시로부터 7200초 후의 저장 탄성률 G'2를 측정했다. 토출 후의 샘플은 바로 경화를 개시하기 때문에, 토출로부터 측정 개시까지의 30초로 했다.

[0125] [점도]

[0126] 열전도성 조성물의 조제 직후(제1제 및 제2제의 혼합 직후)의 시료를, 점도계(Brookfield사 제조 「DV2T(스핀들 SC4-14)」)를 이용하여, 25℃에서, 회전수 10rpm(전단 속도 10rpm)으로 120초간 측정하고, 90~120초의 평균값을 측정값으로 했다.

[0127] [열중량 측정]

[0128] 반응 속도 제어제 50mg을 알루미늄 팬(시마즈제작소 제조 알루미늄 매크로 셀 「201-57268-90」, 외경 치수 Φ6×5mm)에 세트하고, 열중량 분석 장치(시마즈제작소 제조 「DTG60」)에 의해, 질소 분위기 하에서, 실온(25℃)으로부터 승온 속도 4℃/분으로 35℃까지 승온시키고, 그 후 35℃의 정온에서 승온 개시로부터 120분 경과할 때까지 유지하는 조건에 있어서, 측정 개시로부터 60분 후의 중량(W₆₀), 120분 후의 중량(W₁₂₀)을 각각 측정하여, W₆₀-W₁₂₀을 구했다. 또한, 측정에 임하여, 알루미늄 팬은 코킹하지 않고 그대로 시료실에 세트했다.

[0129] [압축 하중 시험]

[0130] 제1제와 제2제를 각 50cc의 2액 병렬 카트리지에 충전하고 나서 24hr 정치한 후에, 스태틱 믹서를 사용하여 만능 재료 시험기(예를 들면, 토요정기사 제조 스트로그래프)의 압축 시험용 스테이지 상에, 제1제와 제2제의 혼합물(질량비 1 : 1)인 열전도성 조성물 5.75±0.25g을 토출하고, 당해 토출물에 대해 압축 시험을 행했다.

[0131] 초기의 압축 하중은, 토출된 토출물에 대해 즉시 압축 시험을 행함으로써 구했다. 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중은, 토출된 토출물을 35℃에서 1시간 정치한 후에 압축 시험을 행함으로써 구했다. 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중은, 토출된 토출물을 18℃에서 18시간 정치한 후에 압축 시험을 행함으로써 구했다.

- [0132] 압축 시험은, 토출물을 40mmΦ의 푸셔(압축 시험용 지그)에 의해, 압축 속도 60mm/min으로 압축하고, 지그간의 갭이 0.665mm까지 압축되었을 때의 하중값을 읽어내어, 이것을 압축 하중으로 했다. 압축 시험을 행할 때의 온도는, 35℃에서 1시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는 35℃, 18℃에서 18시간 정치 후의 압축 하중을 측정하는 경우는 18℃, 초기의 압축 하중을 측정하는 경우의 온도는 22℃이다.
- [0133] [18℃에서 18시간 정치 후의 경화 확인 시험]
- [0134] 제1제와 제2제를 각 50cc의 2액 병렬 카트리지에 충전하고 나서 24hr 정치한 후에, 스테틱 믹서를 사용하여 실리콘으로 이형 처리된 PET 필름(파낙사 제조 SG2)의 이형 처리면에, 샘플(제1제와 제2제의 혼합물(질량비 1 : 1)인 열전도성 조성물)을 소량 토출했다. 그 샘플의 위로부터 다른 한 장의 PET 필름(파낙사 제조 SG2)을 이형 면이 샘플에 접촉하도록 하여, 샘플의 두께가 일정하게 2mm가 되도록 눌러 고정했다. 이와 같이 하여 제작한 시험체(2장의 PET 필름 사이에 샘플이 끼인 시험체)를 18℃ 항온조 내에 수평의 상태로 18시간 방치한 후에, 상측의 PET 필름을 벗겨 보고, 샘플이 상측 PET 필름에 추종하지 않고 깨끗하게 벗길 수 있었을 경우는 외주가 경화되어 있다고 판정하고, 반대로 상측 필름에 끌려가 깨끗하게 벗길 수 없었을 경우는 외주가 경화되지 않았다고 판정했다. 또, 외주가 경화되어 있는 경우는, 경화되어 있는 부분의 두께를 측정했다.
- [0135] (평가)
- [0136] A ·· 외주가 경화되어 있음
- [0137] B ·· 외주가 경화되어 있지 않음
- [0138] [경화성 시험]
- [0139] 제1제와 제2제를 각 50cc의 2액 병렬 카트리지에 충전하고 나서 24hr 정치한 후에, 스테틱 믹서를 사용하여 알루미늄관형상으로 16g의 샘플(제1제와 제2제의 혼합물(질량비 1 : 1)인 열전도성 조성물)을 토출했다. 그 샘플을 위로부터 유리판으로 샘플 두께가 일정하게 2mm가 되도록 눌러 고정했다. 샘플의 형상과 위치를 기록하기 위해, 유리판 상에 샘플의 외주를 따라 유성 매직으로 마킹했다. 이와 같이 하여 제작한 시험체(2장의 PET 필름 사이에 샘플이 끼인 시험체)를 18℃ 항온조 내에 수평의 상태로 18시간 방치한 후에, 40℃의 항온조에서 수직으로 세운 상태로 24시간 보관했다. 알루미늄판과 유리판 사이에 끼인 샘플이 40℃ 보관 전후로, 형상과 위치에 변화가 없는지를 관찰하고, 변화가 없었을 경우를 합격 「A」로 판정하고, 변화가 있었을 경우를 불합격 「B」로 판정했다. 상기 18℃ 18시간 정치 후에서의 경화 확인의 시험에서 외주가 경화되지 않는 샘플에 있어서는, 본 시험에 의해 40℃ 보관 후에 샘플이 하측 방향으로 어긋나는 거동이 관찰되었다.
- [0140] [작업성 평가]
- [0141] 열전도성 조성물의 조제 직후(제1제 및 제2제의 혼합 직후)의 점도 I과, 조제 후 25℃에서 6시간 정치한 후의 점도 II를 측정하고, 점도 II/점도 I이 2 미만이면 작업성이 양호하며 「A」로 평가했다. 점도 II/점도 I이 2 이상이면 작업성이 나쁜 「B」로 평가했다.
- [0142] [판정(종합 평가)]
- [0143] 경화성 시험 및 작업성 시험에 있어서 양쪽 모두 「A」인 경우를 합격, 경화성 시험 및 작업성 시험 중 적어도 한쪽이 「B」인 경우를 불합격으로 판정했다.
- [0144] [실시에 1~8, 비교예 1~5]
- [0145] 이하와 같이 제1제 및 제2제를 조제하여, 상기한 각종 평가를 행했다.
- [0146] (제1제)
- [0147] (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산 및 미량의 부가 반응 촉매(백금 촉매)를 포함하는 제1액, 디메틸폴리실록산(디메틸 실리콘 오일), n-데실트리메톡시실란, 열전도성 충전제, 및 텍스트로피 부여제를 표 1에 나타내는 배합으로 조정하여, 제1제로 했다.
- [0148] (제2제)
- [0149] (A) 알케닐기를 적어도 2개 갖는 오르가노폴리실록산 및 (B1) 히드로실릴기를 적어도 2개 갖는 하이드로젠오르가노폴리실록산(히드로실릴기 함유율 1mmol/g 이하)을 포함하는 제2액, (B2) 히드로실릴기 함유율이 4mmol/g의 하이드로젠오르가노폴리실록산, 디메틸폴리실록산(디메틸 실리콘 오일), n-데실트리메톡시실란, 반응 속도 제어

재, 열전도성 충전제, 및 틱소트로피 부여제를 표 1에 나타내는 배합으로 조정하여, 제2제로 했다.

[0150]

또한 반응 속도 제어재로서는, 규소 원자를 갖고 또한 아세틸렌 부위를 갖는 반응 속도 제어재를 이용했다. 당해 반응 속도 제어제의 열중량 추정에 있어서의 $W_{60}-W_{120}$ 은 0.49mg였다.

표 1

열전도성 조성물 (질량부)	실시예1 제1제	실시예1 제2제	실시예2		실시예3		실시예4		실시예5		실시예6		실시예7		실시예8	
			제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제
(A) 성분과 미량의 부가 반응 촉매를 포함하는 제1액	60		60		70		70		70		70		60		60	
(A) 성분과 (B1) 성분을 포함하는 제2액		60		60		70		70		70		70		60		60
(B2) 성분 하드실릴기 농도 4mmol/g	1		1		5		5		4		3		4		5	
비반응성 실리콘-디메틸폴리실록산 (점도 10cSt)	39	39	38	29	24	29	24	29	25	29	26	29	35	35	39	34
n-데실트리메톡시실란	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
(D) 반응 속도 제어제	0.40		0.40		0.40		0.50		0.5		0.5		0.35		0.35	
(C) 열전도성 충전제	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
산화알루미늄(구상, 평균 입경 8 μ m)	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400
산화알루미늄(구상, 평균 입경 40 μ m)	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
수산화알루미늄(원근 입경 1 μ m)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
수산화알루미늄(원근 입경 10 μ m)	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265
옥틸실란으로 표면 처리된 소수성 하드실리카 (비표면적 150m ² /g)	3	3														
틱소트로피 부여제 옥틸실란으로 표면 처리된 소수성 알루미나			3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3	3	3	3	3	3	3	3
열전도성 조성물의 성질	점도 (Pa·s)	175	193	198	200	215	218	170	188	170	198	170	188	170	198	170
	저장 탄성률 G' (Pa)	70	75	67	78	78	86	78	86	78	99	86	99	78	86	78
	35°C600초의 저장 탄성률G' ₁	812	856	1593	703	480	793	1376	628	480	793	1376	628	480	793	1376
	35°C7200초의 저장 탄성률G' ₂	13050	12110	16236	5187	4376	6110	14156	10899	4376	6110	14156	10899	4376	6110	14156
평가	초기의 압축 하중A(N)	169	173	178	178	178	192	161	178	192	195	161	192	161	192	161
	35°C에서 1시간 경과 후의 압축 하중B(N)	174	200	322	298	241	241	208	298	241	240	208	298	241	208	298
	18°C에서 18시간 경과 후의 압축 하중C(N)	1474	2855	4967	2492	2824	2824	3311	2824	2824	2824	3311	2824	2824	3311	2824
	100×B/A (%)	103%	116%	181%	145%	126%	123%	119%	123%	126%	123%	119%	123%	119%	123%	119%
18°C/18hrs 경화 확인 시험	872%	1708%	2788%	1400%	1471%	1379%	2063%	2350%	1471%	1379%	2063%	2350%	1471%	1379%	2063%	2350%
판정	100×C/A (%)	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	경화되어 있는 부분의 두께 (mm)	1mm	1mm	0.5~1mm	0.5mm	0.5mm	1.0mm	0.5mm	0.5mm	0.5mm	0.5mm	1.0mm	0.5mm	0.5mm	1.0mm	0.5mm
판정	25°C6시간 후의 점도 변화	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	합격/불합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격	합격

[0151]

표 2

	비교예 1		비교예 2		비교예 3		비교예 4		비교예 5	
	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제	제1제	제2제
실리콘계 재료	70		70		70		70		65	
		70		70		70		70		65
(A) 성분과 미량의 부가 반응 촉매를 포함하는 제1액										
(A) 성분과 (B1) 성분을 포함하는 제2액										
(B2) 성분 히드록실기 농도 4mmol/g	5		5		5		5		10	
비반응성 질리온: 디메틸폴리실록산(점도 10cSt)	29	24	29	24	29	24	29	24	29	19
	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
n-데실트리메톡시실란										
		0.20		0.30		0.60		0.90		0.80
(D) 반응 속도 제어제										
(C) 열전도성 충전제	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	400	400	400	400	400	400	400	400	400	400
펠러	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
텍스트로피 부여제	265	265	265	265	265	265	265	265	265	265
열전도성 조성물의 성질	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3	3
평가	206	200	207	160	207	160	207	160	168	168
	76	79	71	59	71	59	71	59	63	63
점도 (Pa·s)	44548	6361	658	83	658	83	658	83	151	151
	182510	62560	4312	758	4312	758	4312	758	1279	1279
저장 탄성률 G' (Pa)	185	179	185	151	185	151	185	151	160	160
	2049	478	218	158	218	158	218	158	175	175
압축 하중 시험	축정 불가	축정 불가	1498	227	1498	227	1498	227	313	313
	1107%	267%	118%	105%	118%	105%	118%	105%	110%	110%
18°C/18hrs 경과 확인 시험	-	-	810%	150%	810%	150%	810%	150%	196%	196%
	A	A	B	B	B	B	B	B	B	B
경화성 시험	안정 경과	안정 경과	미경화	미경화	미경화	미경화	미경화	미경화	미경화	미경화
	A	A	B	B	B	B	B	B	B	B
작업성	B	B	A	A	A	A	A	A	A	A
	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격	불합격
판정	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격	합격/불합격

[0152]

[0153]

저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하이고, 또한 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상인 각 실시예의 열전도성 조성물은, 경화성에 관한 시험 및 작업성을 확인하는 시험의 결과가 모두 양호한 점에서, 넓은 온도 범위에서, 작업성이 양호하고, 또한 제품으로서의 신뢰성을 유지할 수 있는 것을 알 수 있었다.

[0154]

이에 대해, 저장 탄성률 G'1이 2000Pa 이하의 요건을 만족하지 않는 비교예 1~2의 열전도성 조성물은, 작업성을 확인하는 시험의 결과가 나빴다. 또, 저장 탄성률 G'2가 4350Pa 이상의 요건을 만족하지 않는 비교예 3~5는, 경화성에 관한 시험의 결과가 나쁘고, 제품으로서의 신뢰성이 저하되어 버리는 것을 알 수 있었다.

부호의 설명

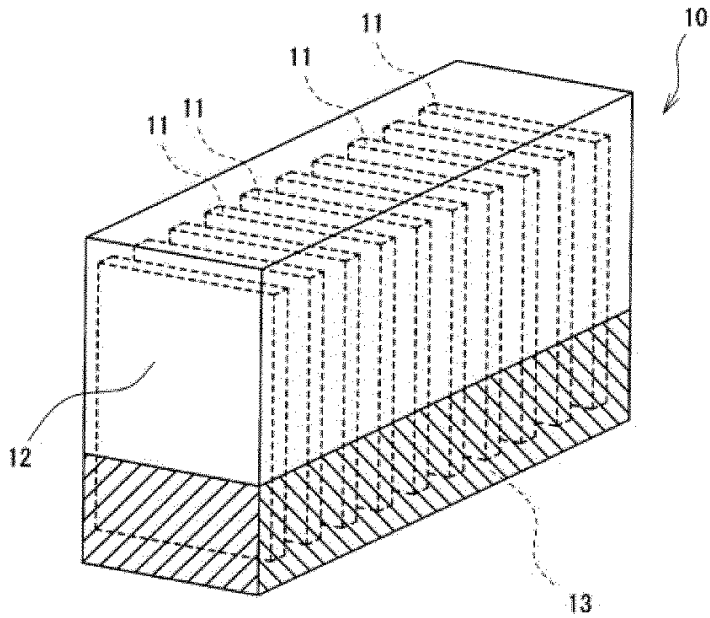
[0155]

10 배터리 모듈

- 11 배터리 셀
- 12 배터리 모듈의 하우징(모듈 하우징)
- 13 간극재

도면

도면1



도면2

