

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5264924号
(P5264924)

(45) 発行日 平成25年8月14日(2013.8.14)

(24) 登録日 平成25年5月10日(2013.5.10)

(51) Int.Cl.

F I

CO8L 101/00	(2006.01)	CO8L 101/00
CO8K 3/16	(2006.01)	CO8K 3/16
CO8K 7/00	(2006.01)	CO8K 7/00
CO8L 67/00	(2006.01)	CO8L 67/00
CO8L 77/00	(2006.01)	CO8L 77/00

請求項の数 5 (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2010-534173 (P2010-534173)
 (86) (22) 出願日 平成20年11月13日(2008.11.13)
 (65) 公表番号 特表2011-503327 (P2011-503327A)
 (43) 公表日 平成23年1月27日(2011.1.27)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2008/083389
 (87) 国際公開番号 W02009/064873
 (87) 国際公開日 平成21年5月22日(2009.5.22)
 審査請求日 平成23年9月30日(2011.9.30)
 (31) 優先権主張番号 61/003,556
 (32) 優先日 平成19年11月16日(2007.11.16)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 390023674
 イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
 アンド・カンパニー
 E. I. DU PONT DE NEMO
 URS AND COMPANY
 アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイلم
 ントン、マーケット・ストリート 100
 7
 (74) 代理人 100077481
 弁理士 谷 義一
 (74) 代理人 100088915
 弁理士 阿部 和夫
 (72) 発明者 佐賀 裕司
 栃木県宇都宮市清原工業団地19-2

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱伝導性プラスチック樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

- (a) 25～75容量パーセントのポリマー；
 (b) 7～65容量パーセントのフッ化カルシウム；
 (c) 2～50容量パーセントのガラスフレーク

を含む、熱伝導性ポリマー組成物であって、(c)対(b)の容量比が10対90～70
 対30であり、

この百分率が組成物の総容量を基準にしている組成物。

【請求項2】

請求項1に記載の組成物から製造された物品。

10

【請求項3】

請求項1に記載の組成物で製造された金属/ポリマーハイブリッド品。

【請求項4】

請求項1に記載の組成物でできたモーターまたは発電機の固定子鉄心の絶縁体。

【請求項5】

請求項1に記載の組成物で封入された固定子アセンブリ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

ポリマーおよびフッ化カルシウムとガラスフレークとの組み合わせを含む熱伝導性プラ

20

スチック樹脂組成物は、封入剤組成物として有用である。

【背景技術】

【0002】

それらの優れた機械的特性および電気絶縁性のために、ポリマー樹脂組成物は、自動車部品、電気および電子部品、機械部品などの広範囲の用途に使用されている。多くの場合に、それらが許すデザイン融通性、シーリング能力およびそれらの電気絶縁性のために、ポリマー樹脂組成物は、電気およびエレクトロニクスデバイスまたはモーター用の封入剤として使用することができる。しかしながら、電気絶縁性が封入ポリマー組成物に必要とされるのみならず、それらはまた多くの場合、特に幾つかの電気デバイスの小型化傾向と共に、より高い熱伝導性を有する必要がある。封入ポリマー組成物にとって重要な別の必要条件は、それらの線熱膨張係数（CLTE）が、封入されたデバイスによって発生する熱を放出しながらシール完全性を保持するために、ポリマー組成物で封入される材料のCLTEに近いべきであることである。一般に、充填剤のCLTEは多くの場合ポリマーのCLTEより低いので、ポリマーでの熱伝導性充填剤のより高い使用量は、より高い熱伝導性とより低いCLTEとにつながる。しかしながら、高い充填剤使用量は多くの場合、メルト形成プロセスにおいてポリマー組成物の流動性を低下させ、それは密封性能の不具合またはポリマー組成物で封入されるコアデバイスの損傷につながり得る。従って、良好な流動性を持った、熱伝導性の、電気絶縁性の、低いCLTEポリマー組成物が望ましい。

10

【0003】

特開2003-40619号公報は、フッ化カルシウム粉末をシランカップリング剤で表面処理し、コートされた粉末を熱可塑性樹脂および、任意選択的に、充填剤とブレンドして熱伝導性組成物を生成する方法を開示している。しかしながら、ポリマー組成物の粘度の有意な増加なしに熱伝導性および低いCLTEの両方を達成する方法については全く言及されていない。

20

【0004】

国際公開第2005/071001号パンフレットは、熱可塑性ポリマーとフッ化カルシウムと繊維状充填剤とを含むポリマー組成物を開示している。しかしながら、繊維状充填剤の使用は、繊維状充填剤の配向のために流れ方向と横方向との間で成形収縮のおよび熱伝導性の異方性につながる。

30

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0005】

(a) 25～75容量パーセントの1種以上のポリマー；

(b) 7～約65容量パーセントのフッ化カルシウム；

(c) 2～50容量パーセントのガラスフレーク

を含む、熱伝導性ポリマー組成物であって、(c)対(b)の容量比が10対90～70対30であり、

この百分率が組成物の総容量を基準にしている組成物。

【発明を実施するための形態】

40

【0006】

本発明の組成物は、(a)少なくとも1種のポリマー、(b)フッ化カルシウム、(c)ガラスフレーク、および任意選択的に(d)少なくとも1種のポリマー強化剤を含む。

【0007】

(a)ポリマーは組成物のポリマーマトリックスである、言い換えれば、1種以上のポリマーは連続相である。有用な熱可塑性ポリマーには、ポリカーボネート、ポリエチレンおよびポリプロピレンなどのポリオレフィン、ポリアセタール、アクリル、ビニル、フルオロポリマー、ポリアミド、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンスルフィド、芳香族ポリエステルなどの液晶ポリマー、ポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリアセタール、ポリフェニレンオキシド、ポリアリーレート、ポリエーテルエーテルケトン

50

(P E E K)、ポリエーテルケトンケトン (P E K K)、およびシンジオタクチックポリスチレン、ならびにそれらのブレンドが含まれる。

【 0 0 0 8 】

あるいはまた、エポキシ、ポリイミド、シリコン、不飽和ポリエステルおよびポリウレタンなどの熱硬化性ポリマーを成分 (a) として使用することができる。

【 0 0 0 9 】

熱可塑性ポリマーおよびポリエステル、ポリアミドが好ましく、液晶ポリマー (L C P) が特に好ましい。

【 0 0 1 0 】

より好ましい熱可塑性ポリエステルには、0.3以上の固有粘度を有し、かつ、一般に、ジオールおよびジカルボン酸、またはそれらの反応性誘導体の線状飽和の縮合生成物であるポリエステルが含まれる。好ましくは、それらは、8~14個の炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸と、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサンジメタノール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオールおよび式 $\text{HO}(\text{CH}_2)_n\text{OH}$ (式中、 n は2~10の整数である)の脂肪族グリコールからなる群から選択される少なくとも1種のジオールとの縮合生成物を含むであろう。ジオールの20モルパーセント以下は、Akzo Nobel Chemicals, Inc. によって商品名Dianol (登録商標) 220で販売される、エトキシ化ビスフェノールA; ヒドロキノン; ビフェノール; またはビスフェノールAなどの芳香族ジオールであってもよい。芳香族ジカルボン酸の50モルパーセント以下は、8~14個の炭素原子を有する少なくとも1種の異なる芳香族ジカルボン酸で置き換えることができ、および/または20モルパーセント以下は2~12個の炭素原子を有する脂肪族ジカルボン酸で置き換えることができる。コポリマーは、2種以上のジオールもしくはそれらの反応性等価物と少なくとも1種のジカルボン酸もしくはその反応性等価物とから、または2種以上のジカルボン酸もしくはそれらの反応性等価物と少なくとも1種のジオールもしくはその反応性等価物とから製造されてもよい。ヒドロキシ安息香酸もしくはヒドロキシナフトエ酸またはそれらの反応性等価物などの二官能性ヒドロキシ酸モノマーがまたコモノマーとして使用されてもよい。

【 0 0 1 1 】

好ましいポリエステルには、ポリ(エチレンテレフタレート)(PET)、ポリ(1,4-ブチレンテレフタレート)(PBT)、ポリ(1,3-プロピレンテレフタレート)(PPT)、ポリ(1,4-ブチレン2,6-ナフタレート)(PBN)、ポリ(エチレン2,6-ナフタレート)(PEN)、ポリ(1,4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート)(PCT)、ならびに前述のもののコポリマーおよび混合物が含まれる。1,4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート/イソフタレートコポリマーならびに、イソフタル酸; ピ安息香酸; 1,5-, 2,6-, および2,7-ナフタレンジカルボン酸を含むナフタレンジカルボン酸; 4,4'-ジフェニレンジカルボン酸; ビス(p-カルボキシフェニル)メタン; エチレン-ビス-p-安息香酸; 1,4-テトラメチレンビス(p-オキシ安息香酸); エチレンビス(p-オキシ安息香酸); 1,3-トリメチレンビス(p-オキシ安息香酸); および1,4-テトラメチレンビス(p-オキシ安息香酸)を含む、芳香族ジカルボン酸と、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール; ネオペンチルグリコール; シクロヘキサンジメタノール; および一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2)_n\text{OH}$ (式中、 n は2~10の整数である)の脂肪族グリコール、例えば、エチレングリコール; 1,3-トリメチレングリコール; 1,4-テトラメチレングリコール; 1,6-ヘキサメチレングリコール; 1,8-オクタメチレングリコール; 1,10-デカメチレングリコール; 1,3-プロピレングリコール; および1,4-ブチレングリコールからなる群から選択されるグリコールとから誘導される他の線状ホモポリマーエステルもまた好ましい。上に示されたような、20モルパーセント以下の、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、ドデカン二酸または1,4-シクロヘキサンジカルボン酸を含む、1種以上の脂肪族酸が存在することができる。1,4-ブタンジオール、エトキシ化ビスフェノールA、およびテレフタル酸またはその反応性等価物から誘導されるコポリマーもまた

10

20

30

40

50

好ましい。PET、PBT、およびPPTの少なくとも2種のランダムコポリマー、PET、PBT、およびPPTの少なくとも2種の混合物、ならびに前述のもののいずれかの混合物もまた好ましい。

【0012】

熱可塑性ポリエステルはまた、ポリ(アルキレンオキシド)ソフトセグメント(ブロック)を含有するコポリマーの形態にあってもよい。ポリ(アルキレンオキシド)セグメントは、熱可塑性ポリエステルの100重量部当たり約1~約15重量部で存在する。ポリ(アルキレンオキシド)セグメントは、約200~約3,250の範囲のまたは、好ましくは、約600~約1,500の範囲の数平均分子量を有する。好ましいコポリマーは、PETまたはPBT鎖中へ組み入れられたポリ(エチレンオキシド)および/またはポリ(テトラメチレンエーテルグリコール)を含有する。組み入れの方法は当業者に公知であり、ポリエステルの形成するための重合反応中にモノマーとしてポリ(アルキレンオキシド)ソフトセグメントを使用することを含むことができる。PETは、PBTと少なくとも1種のポリ(アルキレンオキシド)とのコポリマーとブレンドされてもよい。ポリ(アルキレンオキシド)はまた、PET/PBTコポリマーとブレンドされてもよい。本組成物のポリエステル部分へのポリ(アルキレンオキシド)ソフトセグメントの包含は、ポリエステルの結晶化の速度を加速する可能性がある。

10

【0013】

好ましいポリアミドには、ポリアミド6、ポリアミド66、ポリアミド612、ポリアミド610、または他の脂肪族ポリアミドならびに、テレフタル酸および/またはイソフタル酸から誘導されるものなどの、半芳香族ポリアミドが含まれる。例には、ポリアミド9T; 10T; 12T; ヘキサメチレンジアミン、アジピン酸、およびテレフタル酸から誘導されるポリアミド; ならびにヘキサメチレンジアミン、2-メチルペンタメチレンジアミン、およびテレフタル酸から誘導されるポリアミドが挙げられる。2種以上のポリアミドのブレンドが使用されてもよい。

20

【0014】

ポリアセタールは、別の好ましいタイプのポリマーである。ポリアセタールは、1種以上のホモポリマー、コポリマー、またはそれらの混合物であることができる。ホモポリマーは、ホルムアルデヒドまたは、ホルムアルデヒドの環状オリゴマーなどの、ホルムアルデヒド等価物を重合させることによって製造される。コポリマーは、ポリオキシメチレン組成物を製造するのに一般に使用される1種以上のモノマーを含有することができる。一般に使用されるモノマーには、2~12個の炭素原子のアルキレンオキシドが含まれる。コポリマーが選択される場合、モノマーの量は20重量パーセント以下、好ましくは15重量パーセント以下、最も好ましくは約2重量パーセントであろう。好ましいモノマーはエチレンオキシドおよびブチレンオキシドであり、好ましいポリオキシメチレンコポリマーは、エチレンオキシドまたはブチレンオキシドの量が約2重量パーセントである、ホルムアルデヒドとエチレンオキシドまたはブチレンオキシドとのコポリマーである。ホモ-およびコポリマーは、1)その末端ヒドロキシ基が化学反応によってエンド-キャップされてエステルまたはエーテル基を形成するもの; または、2)完全にはエンド-キャップされておらず、モノマー単位からの幾らかの遊離ヒドロキシ末端を有するコポリマーであることがまた好ましい。好ましい末端基は、どちらの場合にも、アセテートおよびメトキシである。

30

40

【0015】

LCPとは、参照により本明細書によって援用される、米国特許第4,118,372号明細書に記載されているような、TOT試験またはその任意の妥当な変形を用いて試験されるときに異方性であるポリマーを意味する。有用なLCPには、ポリエステル、ポリ(エステル-アミド)、およびポリ(エステル-イミド)が含まれる。LCPの好ましい形態は「全芳香族」である、すなわち、(エステル基などの連結基を除いては)ポリマー主鎖中の基の全てが芳香族であるが、芳香族でない側鎖が存在してもよい。

【0016】

50

ポリマー (a) は、組成物の総容量を基準にして、好ましくは約 25 ~ 約 75 容量パーセント、またはより好ましくは約 30 ~ 約 60 容量パーセントで存在するであろう。

【0017】

フッ化カルシウム (b) の形状は通常球状または粒状である。粒子または顆粒は広い粒度分布を有することができる。好ましくは、最大粒度は 300 ミクロン未満、より好ましくは 200 ミクロン未満である。好ましくは、平均粒度は $5\ \mu\text{m}$ ~ $100\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは、 $15\ \mu\text{m}$ ~ $60\ \mu\text{m}$ である。それらの粒度に多峰性サイズ分布を有する粒子または顆粒もまた使用することができる。

【0018】

フッ化カルシウムの表面は、組成物の特性を改善するための他の材料で改質することができる。例えば、組成物の機械的強度および流動性を改善するためのアミノシランおよびエポキシシランなどのカップリング剤、ならびに充填剤の耐水性を改善するためのシリコンなどのコーティング剤。

【0019】

フッ化カルシウム (b) は、組成物の総容量を基準にして、好ましくは 7 ~ 65 容量パーセント、より好ましくは 25 ~ 55 容量パーセントで存在するであろう。

【0020】

本発明に成分 (c) として使用されるガラスフレークは、組成物の特性を改善するための他の材料で改質することができる。例えば、組成物の機械的強度を改善するためのアミノシランおよびエポキシシランなどのカップリング剤、充填剤の耐水性を改善するためのシリコンなどのコーティング剤、ならびに熱伝導性を改善するためのセラミック入りコーティング。

【0021】

成分 (c) は、組成物の総容量を基準にして、好ましくは 2 ~ 50 容量パーセント、またはより好ましくは 5 ~ 30 容量パーセントで存在するであろう。

【0022】

(c) / (b) の容量比は 10 / 90 ~ 70 / 30、または好ましくは 15 / 85 ~ 50 / 50、より好ましくは 15 / 85 ~ 35 / 65 である。

【0023】

本発明における成分 (d) として任意選択的に使用されるポリマー強化剤は、使用されるポリマーにとって有効である任意の強化剤である。熱可塑性ポリマーがポリエステルであるとき、強化剤は典型的にはエラストマーであるか、または比較的低い、一般に 200

未満、好ましくは 150 未満の融点を有し、それは、熱可塑性ポリエステル (および任意選択的に、存在する他のポリマー) と反応することができる官能基をそれに結合している。熱可塑性ポリエステルは通常、カルボキシルおよびヒドロキシル基が存在するので、これらの官能基は通常、カルボキシルおよび / またはヒドロキシル基と反応することができる。かかる官能基の例には、エポキシ、カルボン酸無水物、ヒドロキシル (アルコール)、カルボキシル、およびイソシアネートが挙げられる。好ましい官能基は、エポキシ、およびカルボン酸無水物であり、エポキシが特に好ましい。かかる官能基は通常、既に存在するポリマー上へ小分子をグラフト化することによってか、またはより強靱なポリマー分子が共重合によって製造されるときに所望の官能基を含有するモノマーを共重合させることによってポリマー強化剤に「結合させ」られる。グラフト化の例として、無水マレイン酸がフリーラジカルグラフト化技法を用いて炭化水素ゴム上へグラフトされてもよい。生じたグラフト化ポリマーは、カルボン酸無水物および / またはカルボキシル基がそれに結合している。官能基がポリマーへ共重合されているポリマー強化剤の例は、エチレンと適切な官能基を含有する (メタ) アクリレートモノマーとのコポリマーである。 (メタ) アクリレートとは本明細書では、アクリレート、メタアクリレート、または 2 つの混合物のいずれであってもよい化合物を意味する。有用な (メタ) アクリレート官能性化合物には、 (メタ) アクリル酸、2 - ヒドロキシエチル (メタ) アクリレート、グリシジル (メタ) アクリレート、および 2 - イソシアナトエチル (メタ) アクリレートが含まれる。エ

10

20

30

40

50

チレンおよび官能性（メタ）アクリレートモノマーに加えて、酢酸ビニル、エチル（メタ）アクリレート、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、およびシクロヘキシル（メタ）アクリレートなどの非官能化（メタ）アクリレートエステルなどの、他のモノマーがかかるポリマーへ共重合されてもよい。好ましい強化剤には、参照により本明細書によって援用される、米国特許第4,753,980号明細書にリストされているものが含まれる。特に好ましい強化剤は、エチレン、エチルアクリレートまたは*n*-ブチルアクリレート、およびグリシジルメタクリレートのコポリマーである。

【0024】

熱可塑性ポリエステルと共に使用されるポリマー強化剤は、約0.5～約20重量パーセントの官能基含有モノマー、好ましくは約1.0～約15重量パーセント、より好ましくは約7～約13重量パーセントの官能基含有モノマーを含有することが好ましい。2つ以上のタイプの官能性モノマーがポリマー強化剤中に存在してもよい。組成物の強靱性は、ポリマー強化剤の量および/または官能基の量を増やすことによって増大することが分かった。しかしながら、これらの量は、特に最終部品形状が達成される前に、組成物が架橋する可能性があるポイントまでは好ましくは増やされるべきではない。

【0025】

熱可塑性ポリエステルと共に使用されるポリマー強化剤はまた、エチレンのコポリマーではない熱可塑性アクリルポリマーであってもよい。熱可塑性アクリルポリマーは、アクリル酸、アクリレートエステル（メチルアクリレート、*n*-プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、*n*-ヘキシルアクリレート、および*n*-オクチルアクリレートなどの）、メタクリル酸、およびメタクリレートエステル（メチルメタクリレート、*n*-プロピルメタクリレート、イソプロピルメタクリレート、*n*-ブチルメタクリレート（BA）、イソブチルメタクリレート、*n*-アミルメタクリレート、*n*-オクチルメタクリレート、グリシジルメタクリレート（GMA）などの）を重合させることによって製造される。前述のタイプのモノマーの1種以上をスチレン、アクリロニトリル、ブタジエン、イソプレンなどと重合させることによって製造されたコポリマーだけでなく、前述のタイプのモノマーの2種以上から誘導されるコポリマーがまた使用されてもよい。これらのコポリマーの一部または全てが0以下のガラス転移温度を好ましくは有するべきである。熱可塑性アクリルポリマー強化剤を製造するための好ましいモノマーは、メチルアクリレート、*n*-プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、*n*-ヘキシルアクリレート、および*n*-オクチルアクリレートである。

【0026】

熱可塑性アクリルポリマー強化剤はコア-シェル構造を有することが好ましい。コア-シェル構造は、コア部分が好ましくは0以下のガラス転移温度を有するが、シェル部分が好ましくはコア部分のそれより高いガラス転移温度を有するものである。コア部分は、シリコーンでグラフトされてもよい。シェルセクションは、シリコーン、フッ素などの低表面エネルギー基質でグラフトされてもよい。低表面エネルギー基質が表面にグラフトされたコア-シェル構造のアクリルポリマーは、本発明の組成物の熱可塑性ポリエステルおよび他の成分と混合中にまたは混合後にそれ自体凝集するだろうし、組成物中に容易に一樣に分散させることができる。

【0027】

ポリアミド用の好適な強化剤は、米国特許第4,174,358号明細書に記載されている。好ましい強化剤には、酸無水物、ジカルボン酸もしくはその誘導体、カルボン酸もしくはその誘導体、および/またはエポキシ基などの相溶化剤で変性されたポリオレフィンが含まれる。相溶化剤は、不飽和酸無水物、ジカルボン酸もしくはその誘導体、カルボン酸もしくはその誘導体、および/またはエポキシ基をポリオレフィンにグラフトすることによって導入されてもよい。相溶化剤はまた、ポリオレフィンが不飽和酸無水物、ジカルボン酸もしくはその誘導体、カルボン酸もしくはその誘導体、および/またはエポキシ基を含有するモノマーと共重合させることによって製造されながら導入され

てもよい。相溶化剤は、好ましくは3～20個の炭素原子を含有する。ポリオレフィンにグラフトされても（またはポリオレフィンを製造するためのモノマーとして使用されても）よい典型的な化合物の例は、アクリル酸、メタクリル酸、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、クロトン酸、シトラコン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水クロトン酸および無水シトラコン酸である。

【0028】

ポリアセタール用の好ましい強化剤には、熱可塑性ポリウレタン、ポリエステルポリエーテルエラストマー、他の官能化および／またはグラフト化ゴム、ならびにそれらの主鎖にグラフトされているかまたは1種以上の極性基を含有するモノマーと共重合させることによって組み入れられた極性基を含有するポリオレフィンが含まれる。好ましいモノマーは、グリシジルメタクリレートなどの、エポキシド基を含有するものである。好ましい強化剤は、E B A G M A（エチレン、ブチルアクリレート、およびグリシジルメタクリレートから誘導されたターポリマー）である。

10

【0029】

使用されるとき、任意のポリマー強化剤は、組成物の総重量を基準にして、好ましくは約0.5～約25容量パーセント、またはより好ましくは約2～約20容量パーセントで存在するであろう。

【0030】

本発明の組成物は、1種以上の可塑剤、核剤、難燃剤、難燃相乗剤、熱安定剤、酸化防止剤、染料、顔料、離型剤、滑剤、UV安定剤、（ペイント）接着促進剤などを任意選択的に含んでもよい。

20

【0031】

本発明の組成物は、とくに熱可塑性樹脂を含むとき、好ましくは、溶融混合されたまたは溶液混合されたブレンド、より好ましくは溶融混合されたブレンドの形態にあり、ここで、ブレンドが統合された全体を形成するように、ポリマー成分の全ては互いに十分に分散され、非ポリマー成分の全ては、ポリマーマトリックス中に均一に分散され、ポリマーマトリックスによって結び付けられている。ブレンドは、任意の溶融混合法を用いて成分材料を組み合わせることによってか、またはマトリックスポリマー以外の成分をポリマーマトリックスのモノマーと混合し、次にモノマーを重合させることによって得られてもよい。成分材料は、樹脂組成物を得るために、単軸もしくは二軸スクリュウ押出機、ブレンダー、混練機、Banburyミキサーなどのメルト-ミキサーを使用して均一になるまで混合されてもよい。材料の一部はメルト-ミキサーで混合されてもよく、材料の残りが次に加えられ、均一になるまでさらに溶融混合されてもよい。本発明の熱伝導性ポリマー樹脂組成物の製造における一連の混合は、当業者によって理解されるであろうように、個々の成分が一回で溶融されてもよい、または充填剤および／または他の成分が側方供給機などから供給されてもよいようなものであってもよい。

30

【0032】

本発明の組成物は、例えば射出成形、ブロー成形、押出、プレス成形またはトランスファー成形などの、当業者に公知の方法を用いて物品へ成形されてもよい。本組成物は、電気および／または電子デバイスを封入するのに、時として、ある意味で金属／樹脂ハイブリッドを形成するのに特に有用である。かかる物品には、モーターハウジング、ランプハウジング、自動車および他の車両におけるランプハウジング、電気および電子ハウジング、モーターまたは発電機の固定子における巻線と磁気誘導性金属コアとの間に存在する絶縁ボビン、ならびにモーターまたは発電機の固定子鉄心を実質的に封入するハウジングに使用するためのものが含まれ得る。自動車および他の車両におけるランプハウジングの例は、ヘッドライト、テールライト、およびブレーキライトを含む、前灯および尾灯、特に発光ダイオード（LED）ランプを使用するものである。本物品は、多くの用途においてアルミニウムまたは他の金属から製造された物品の代替品としての機能を果たす可能性がある。

40

【実施例】

50

【 0 0 3 3 】

配合および成形方法

表 1 に示すポリマー組成物は、32mmのWerner and Pfleiderer 二軸スクルー押出機で配合することによって調製した。繊維を下流バレル中へ側方供給したことを除いて全成分を一緒にブレンドし、押出機の後方に加えた。バレル温度を約 320 に設定した。

【 0 0 3 4 】

本組成物を、CLTE および熱伝導率の測定のために ISO 試験検体へ射出成形機で成形した。溶融温度は約 325 であり、金型温度は約 140 であった。

【 0 0 3 5 】

10

試験方法

成形流れ方向 (MD) および横方向 (TD) の CLTE は、ASTM D696 方法を用いて -40 ~ 180 の温度範囲で ISO 棒のほぼ中央部分に関して測定した。

【 0 0 3 6 】

熱伝導率は、ASTM E1461 に記載されているようなレーザーフラッシュ法 (Laser Flash Method) を用いて 4mm の厚さの ISO 棒のゲートサイドエリアに関して測定した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 3 7 】

以下の用語を表 1 において用いる：

HTN-1 は、Zytel (登録商標) HTN501、E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, DE) によって製造されるポリアミド 6 TDT を意味する。

20

【 0 0 3 8 】

PA66 は、Zytel (登録商標) FE310036、E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, DE) によって製造されるポリアミド 66 を意味する。

【 0 0 3 9 】

変性 EPDM は、無水マレイン酸でグラフトされた EPDM (エチレン/プロピレン/ジエンポリオレフィン) を意味する。

【 0 0 4 0 】

30

CaF₂ は、Sankyo Seifun Co., Ltd. によって製造される平均サイズ 30 μm のフッ化カルシウム粉末を意味する。

【 0 0 4 1 】

ガラスフレークは、日本板硝子株式会社によって製造されるガラスフレーク FLEKA (登録商標) REF G302 を意味する。

【 0 0 4 2 】

タルクは、日本タルク株式会社によって製造されるアミノシランカップリング剤で表面改質されているタルク KOSAP (登録商標) #10 を意味する。

【 0 0 4 3 】

ウォラストナイトは、Nyc Minerals から供給される 1% アミノシラン被覆ウォラストナイト繊維 Nyglos (登録商標) 8 を意味する。

40

【 0 0 4 4 】

ガラス繊維は、旭ファイバーグラス株式会社によって製造される FT756D ガラス繊維を意味する。

【 0 0 4 5 】

【表 1】

表 1

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
HTN-1	36	36	36	33	36	36	36	36
PA66	16	16	16	14	16	16	16	16
変性-EPDM	3	3	3	3	3	3	3	3
CaF ₂	35	25	45	50	25	35	25	35
ガラスフレーク	10	20	--	--				--
タルク			--	--	20			--
ウォラストナイト						10	20	
ガラス繊維								10
熔融粘度(Pa.s)	107	133	185	230	285	179	149	104
熱伝導率(W/m ² K)	1.02	0.71	1.08	1.30	0.93	0.95	0.81	0.83
MD の CLTE(ppm)	41	33	57	50	48	39	30	30
TD の CLTE(ppm)	43	35	55	52	50	54	51	54
MD の CLTE/TD の CLTE	0.95	0.94	1.04	0.96	0.96	0.72	0.59	0.56

全成分量は、組成物の総容量に対する容量パーセントで示す

全ての組成物は、HTN-1 および PA66 の合計の 100 部に対して 1 重量部のテレフタル酸を含有する

本出願は、特許請求の範囲に記載の発明を含め、以下の発明を包含する。

- (1) (a) 約 25 ~ 約 75 容量パーセントのポリマー；
- (b) 約 7 ~ 約 65 容量パーセントのフッ化カルシウム；
- (c) 約 2 ~ 約 50 容量パーセントのガラスフレーク

を含む、熱伝導性ポリマー組成物であって、(c) 対 (b) の容量比が 10 対 90 ~ 70 対 30 であり、

この百分率が組成物の総容量を基準にしている組成物。

- (2) 前記ポリマーが熱可塑性ポリマーである (1) に記載の組成物。
- (3) 前記ポリマーがポリエステル、ポリアミドおよび液晶ポリマーからなる群から選択される少なくとも 1 種である (2) に記載の組成物。
- (4) (1) に記載の組成物から製造された物品。
- (5) (1) に記載の組成物で製造された金属 / ポリマーハイブリッド品。
- (6) (1) に記載の組成物でできたモーターまたは発電機の固定子鉄心の絶縁体。
- (7) (1) に記載の組成物で封入された固定子アセンブリ。
- (8) 0.01 ~ 約 15 容量パーセントの少なくとも 1 種のポリマー強化剤をさらに含む (1) に記載の組成物。
- (9) 前記ポリマーが熱可塑性ポリマーである (8) に記載の組成物。
- (10) 前記ポリマーがポリエステル、ポリアミドおよび液晶ポリマーからなる群から選択される少なくとも 1 種である (9) に記載の組成物。
- (11) 前記ポリマー強化剤が、組成物の総重量を基準にして、約 2 ~ 約 20 容量パーセントで存在する (8) に記載の組成物。
- (12) (8) に記載の組成物から製造された物品。
- (13) (8) に記載の組成物で製造された金属 / ポリマーハイブリッド品。
- (14) (8) に記載の組成物でできたモーターまたは発電機の固定子鉄心の絶縁体。
- (15) (8) に記載の組成物で封入された固定子アセンブリ。

フロントページの続き

審査官 福井 美穂

(56)参考文献 国際公開第2006/135840(WO, A1)

特開2003-040619(JP, A)

特開2002-188007(JP, A)

特表2007-517968(JP, A)

特開平10-271730(JP, A)

特開平09-082136(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 101, 67, 77

C08K 3, 7