

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 10 月 4 日(04.10.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/132926 A1

- (51) 国際特許分類:
H05K 7/20 (2006.01) H01L 23/36 (2006.01)
C09K 5/08 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/056682
- (22) 国際出願日: 2012 年 3 月 15 日(15.03.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-076542 2011 年 3 月 30 日(30.03.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日東
電工株式会社 (NITTO DENKO CORPORATION)
[JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1
番 2 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 北川 寿恵
(KITAGAWA, Hisae) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木
市下穂積 1 丁目 1 番 2 号 日東電工株式会社内
Osaka (JP). 泉谷 誠治 (IZUTANI, Seiji) [JP/JP]; 〒
5678680 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号
日東電工株式会社内 Osaka (JP). 福岡 孝博
(FUKUOKA, Takahiro) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨
木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号 日東電工株式会
社内 Osaka (JP). 山口 美穂 (YAMAGUCHI, Miho)
- [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1
番 2 号 日東電工株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 岡本 寛之 (OKAMOTO, Hiroyuki); 〒
5320003 大阪府大阪市淀川区宮原 4 丁目 5 番 3
6 号 セントラル新大阪ビル 3 F いくみ特許
事務所内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,
GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS,
KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY,
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA,
RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV,
SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC,
VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシ
ア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (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, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

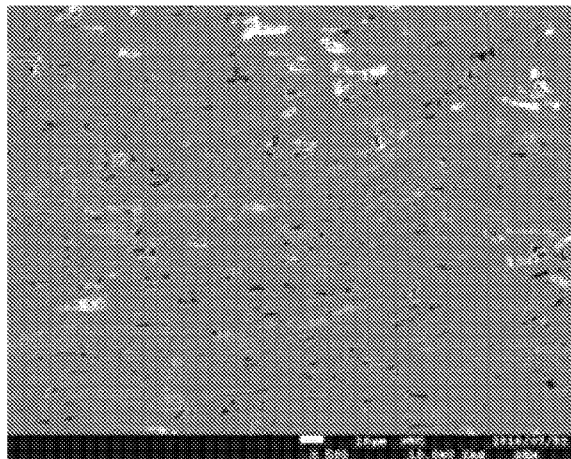
[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING THERMALLY CONDUCTIVE SHEET, AND THERMALLY CONDUCTIVE SHEET

(54) 発明の名称: 熱伝導性シートの製造方法および熱伝導性シート

[図1]

図 1



(57) Abstract: A method for manufacturing a thermally conductive sheet in which the thermal conductivity of the sheet in the direction orthogonal to the thickness direction is equal to or greater than 10 W/m·K, the method comprising: a preparation step for preparing a resin composition containing a resin and thermally conductive inorganic particles; and a sheet formation step for hot-pressing the resin composition, converting the resin composition from a molten state to a semi-solid state, and then causing the viscosity to increase, thereby forming a sheet.

(57) 要約: 熱伝導性シートの製造方法は、厚み方向に対する直交方向の熱伝導率が 10 W/m·K 以上の熱伝導性シートの製造方法であって、樹脂および熱伝導性無機粒子を含む樹脂組成物を準備する準備工程と、樹脂組成物を熱プレスし、熔融状態から半固形状態にした後、さらに、粘度を増加させることによりシート化するシート化工程とを備える。

WO 2012/132926 A1



OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：熱伝導性シートの製造方法および熱伝導性シート 技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導性シートの製造方法および熱伝導性シート、詳しくは、パワーエレクトロニクス技術に用いられる熱伝導性シートの製造方法、および、その熱伝導性シートの製造方法により得られる熱伝導性シートに関する。

背景技術

[0002] 近年、ハイブリッドデバイス、高輝度ＬＥＤデバイス、電磁誘導加熱デバイスなどでは、半導体素子により電力を変換・制御するパワーエレクトロニクス技術が採用されている。パワーエレクトロニクス技術では、大電流を熱などに変換するため、半導体素子の近傍に配置される材料には、高い放熱性（高熱伝導性）が要求されている。

[0003] 例えば、板状の窒化ホウ素粉末およびアクリル酸エステル共重合樹脂を含有する熱伝導シートが提案されている（例えば、特許文献１参照。）。

[0004] 特許文献１の熱伝導シートでは、窒化ホウ素粉末は、その長軸方向（窒化ホウ素粉末の板厚に直交する方向）が、シートの厚み方向に沿うように配向されており、これによって、熱伝導性シートの厚み方向の熱伝導性を向上させている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献１：特開２００８－２８０４９６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかるに、熱伝導性シートは、用途および目的によって、厚み方向に直交する直交方向（面方向）における高い熱伝導性が要求される場合がある。その場合には、特許文献１の熱伝導シートでは、窒化ホウ素粉末の長軸方向が

、面方向に対して直交（交差）しているため、かかる面方向の熱伝導性が不十分であるという不具合がある。

[0007] また、このような熱伝導性シートは、内部に空隙が生じやすく、空隙により、熱伝導性の低下や、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）の低下など、各種電気特性の低下を惹起する場合がある。

[0008] 本発明の目的は、面方向の熱伝導性に優れるとともに、内部の空隙が低減された熱伝導性シートおよびその製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の熱伝導性シートの製造方法は、厚み方向に対する直交方向の熱伝導率が $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の熱伝導性シートの製造方法であって、樹脂および熱伝導性無機粒子を含有する樹脂組成物を準備する準備工程と、前記樹脂組成物を熱プレスし、熔融状態から半固形状態にした後、さらに、粘度を増加させることによりシート化するシート化工程とを備えることを特徴としている。

[0010] このような熱伝導性シートの製造方法によれば、樹脂組成物を熱プレスすることにより、熱伝導性無機粒子を所定方向に配向された形態で分散させることができるとともに、その状態において粘度が増加されるため、シート中の空隙を低減することができる。

[0011] その結果、このような熱伝導性シートの製造方法によれば、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、さらに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートを製造することができる。

[0012] また、このような熱伝導性シートの製造方法では、シート中の空隙を低減するため、脱泡などの工程を要しないので、手間およびコストを低減して熱伝導性シートを製造することができる。

[0013] また、本発明の熱伝導性シートの製造方法では、前記シート化工程は、前記樹脂組成物を、前記樹脂が熱熔融する加熱および加圧条件において熱プレスする熔融工程と、前記熔融工程の後、前記樹脂がほぼ流動しない温度まで、温度を降下させるとともに、当該温度に至るまで、加圧状態で保持する保

持工程とを備えることが好適である。

[0014] このような熱伝導性シートの製造方法では、溶融工程において熱溶融された樹脂組成物が、保持工程において樹脂がほぼ流動しない温度まで、温度を降下させるとともに、当該温度に至るまで加圧状態で保持されるので、熱伝導性無機粒子の配向性を高めるとともに、シート中の空隙を低減することができる。

[0015] その結果、このような熱伝導性シートの製造方法によれば、より一層、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートを製造することができる。

[0016] また、本発明の熱伝導性シートの製造方法では、前記溶融工程において、前記樹脂の粘度が5000 mPa・s未満となるように熱プレスし、前記保持工程において、前記樹脂の粘度が5000 mPa・s以上になるまで前記シートを保持することが好適である。

[0017] このような熱伝導性シートの製造方法によれば、溶融工程において、樹脂の粘度が5000 mPa・s未満となるように熱プレスされたシートが、保持工程において5000 mPa・s以上になるまで保持されるため、より熱伝導性無機粒子の配向性を高めるとともに、シート中の空隙を低減することができる。

[0018] その結果、このような熱伝導性シートの製造方法によれば、より一層、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートを製造することができる。

[0019] また、本発明の熱伝導性シートの製造方法では、前記熱伝導性無機粒子が、平均1次粒子径10 μm以上の鱗片状粒子であり、前記樹脂組成物が、その総量に対して、前記熱伝導性粒子を40体積%以上の割合で含有することが好適である。

[0020] このような熱伝導性シートの製造方法によれば、平均1次粒子径10 μm

以上の鱗片状の熱伝導性無機粒子が、40体積%以上の割合で樹脂組成物に含有されるため、優れた熱伝導性を確保することができる。

[0021] また、本発明の熱伝導性シートは、上記の熱伝導性シートの製造方法により得られ、空隙率が30体積%以下であることを特徴としている。

[0022] このような熱伝導性シートは、上記の方法により得られ、また、空隙率が30体積%以下であるため、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる。

発明の効果

[0023] 本発明の熱伝導性シートの製造方法では、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートを得ることができる。

[0024] また、本発明の熱伝導性シートの製造方法では、シート中の空隙を低減するため、脱泡などの工程を要しないので、手間およびコストを低減して熱伝導性シートを製造することができる。

[0025] 本発明の熱伝導性シートは、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートとして、種々の放熱用途に用いることができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]実施例1の熱伝導性シートの厚み方向に沿う断面のSEM写真の画像処理図を示す。

[図2]比較例1の熱伝導性シートの厚み方向に沿う断面のSEM写真の画像処理図を示す。

発明の実施形態

[0027] 本発明の熱伝導性シートの製造方法では、まず、樹脂および熱伝導性無機粒子を含有する樹脂組成物を準備する（準備工程）。

[0028] 樹脂は、熱伝導性無機粒子を分散できるもの、つまり、熱伝導性無機粒子が分散される分散媒体（マトリックス）であって、後述するシート化工程において粘度変化を生じる樹脂であれば、特に制限されず、例えば、熱硬化性

樹脂成分、熱可塑性樹脂成分などの樹脂成分が挙げられる。

[0029] 熱硬化性樹脂成分としては、例えば、エポキシ樹脂、熱硬化性ポリイミド、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコン樹脂、熱硬化性ウレタン樹脂などが挙げられる。

[0030] 熱可塑性樹脂成分としては、例えば、ポリオレフィン（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体など）、アクリル樹脂（例えば、ポリメタクリル酸メチルなど）、ポリ酢酸ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、ポリアミド（ナイロン（登録商標））、ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリエチレンテレフタレート、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアリルスルホン、熱可塑性ポリイミド、熱可塑性ウレタン樹脂、ポリアミノビスマレイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ビスマレイミドトリアジン樹脂、ポリメチルペンテン、フッ化樹脂、液晶ポリマー、オレフィン-ビニルアルコール共重合体、アイオノマー、ポリアリレート、アクリロニトリル-エチレン-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、アクリロニトリル-スチレン共重合体などが挙げられる。

[0031] これら樹脂は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0032] 樹脂のうち、熱硬化性樹脂成分として、好ましくは、エポキシ樹脂が挙げられ、熱可塑性樹脂成分として、好ましくは、ポリオレフィンが挙げられる。

[0033] エポキシ樹脂は、常温において、液状、半固形状および固形状のいずれかの形態である。

[0034] 具体的には、エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノール型エポキシ樹脂（例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、水添加ビスフェノールA型エ

ポキシ樹脂、ダイマー酸変性ビスフェノール型エポキシ樹脂など）、ノボラック型エポキシ樹脂（例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂など）、ナフタレン型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂（例えば、ビスアリールフルオレン型エポキシ樹脂など）、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（例えば、トリスヒドロキシフェニルメタン型エポキシ樹脂など）などの芳香族系エポキシ樹脂、例えば、トリエポキシプロピルイソシアヌレート（トリグリシジルイソシアヌレート）、ヒダントインエポキシ樹脂などの含窒素環エポキシ樹脂、例えば、脂肪族系エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂（例えば、ジシクロ環型エポキシ樹脂など）、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂などが挙げられる。

[0035] これらエポキシ樹脂は、単独使用または2種以上併用することができる。

[0036] 好ましくは、半固形状のエポキシ樹脂の単独使用、さらに好ましくは、半固形状の芳香族系エポキシ樹脂の単独使用が挙げられる。そのようなエポキシ樹脂としては、より具体的には、半固形状のフルオレン型エポキシ樹脂が挙げられる。

[0037] また、好ましくは、液状のエポキシ樹脂および固形状のエポキシ樹脂の組合せが挙げられ、さらに好ましくは、液状の芳香族系エポキシ樹脂および芳香族系固形状のエポキシ樹脂の組合せが挙げられる。そのような組合せとしては、液状のビスフェノール型エポキシ樹脂および固形状のトリフェニルメタン型エポキシ樹脂の組合せ、液状のビスフェノール型エポキシ樹脂および固形状のビスフェノール型エポキシ樹脂の組合せが挙げられる。

[0038] また、エポキシ樹脂は、エポキシ当量が、例えば、 $100 \sim 1000 \text{ g/eq}$ 、好ましくは、 $180 \sim 700 \text{ g/eq}$ であり、軟化温度（環球法）が、例えば、 80°C 以下（具体的には、 $20 \sim 80^\circ\text{C}$ ）、好ましくは、 70°C 以下（具体的には、 $35 \sim 70^\circ\text{C}$ ）である。

[0039] また、エポキシ樹脂の 80°C における溶融粘度は、例えば、 $10 \sim 20000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ 、好ましくは、 $50 \sim 10000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ でもある。エポ

キシ樹脂を2種以上併用する場合には、それらの混合物としての溶融粘度が、上記した範囲内に設定される。

[0040] また、エポキシ樹脂を2種以上併用する場合には、例えば、常温で固形状のエポキシ樹脂と、常温で液状のエポキシ樹脂とが併有される。また、エポキシ樹脂を2種以上併用する場合には、軟化温度が、例えば、45℃未満、好ましくは、35℃以下の第1エポキシ樹脂と、軟化温度が、例えば、45℃以上、好ましくは、55℃以上の第2エポキシ樹脂とが併有される。これにより、樹脂（混合物）の動粘度（JIS K 7233に準拠、後述）を所望の範囲に設定することができる。

[0041] また、2種のエポキシ樹脂（第1エポキシ樹脂および第2エポキシ樹脂）を併用する場合において、第1エポキシ樹脂の第2エポキシ樹脂に対する質量割合（第1エポキシ樹脂の質量／第2エポキシ樹脂の質量）は、各エポキシ樹脂（第1エポキシ樹脂および第2エポキシ樹脂）の軟化温度などに応じて適宜設定することができ、例えば、1／99～99／1、好ましくは、10／90～90／10である。

[0042] また、エポキシ樹脂には、例えば、硬化剤および硬化促進剤を含有させて、エポキシ樹脂組成物として調製することができる。

[0043] 硬化剤は、加熱によりエポキシ樹脂を硬化させることができる潜在性硬化剤（エポキシ樹脂硬化剤）であって、例えば、イミダゾール化合物、アミン化合物、酸無水物化合物、アミド化合物、ヒドラジド化合物、イミダゾリン化合物などが挙げられる。また、上記の他に、フェノール化合物、ユリア化合物、ポリスルフィド化合物なども挙げられる。

[0044] イミダゾール化合物としては、例えば、2-フェニルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾールなどが挙げられる。

[0045] アミン化合物としては、例えば、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレントトラミンなどのポリアミン、または、これらのアミンアダクトなど、例えば、メタフェニレンジアミン、ジア

ミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホンなどが挙げられる。

[0046] 酸無水物化合物としては、例えば、無水フタル酸、無水マレイン酸、テトラヒドロフタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、4-メチルーヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルナジック酸無水物、ピロメリット酸無水物、ドデセニルコハク酸無水物、ジクロロコハク酸無水物、ベンゾフェノンテトラカルボン酸無水物、クロレンジック酸無水物などが挙げられる。

[0047] アミド化合物としては、例えば、ジシアンジアミド、ポリアミドなどが挙げられる。

[0048] ヒドラジド化合物としては、例えば、アジピン酸ジヒドラジドなどが挙げられる。

[0049] イミダゾリン化合物としては、例えば、メチルイミダゾリン、2-エチルー4-メチルイミダゾリン、エチルイミダゾリン、イソプロピルイミダゾリン、2,4-ジメチルイミダゾリン、フェニルイミダゾリン、ウンデシルイミダゾリン、ヘプタデシルイミダゾリン、2-フェニルー4-メチルイミダゾリンなどが挙げられる。

[0050] これら硬化剤は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0051] 硬化剤として、好ましくは、イミダゾール化合物が挙げられる。

[0052] 硬化促進剤としては、例えば、トリエチレンジアミン、トリ-2,4,6-ジメチルアミノメチルフェノールなどの3級アミン化合物、例えば、トリフェニルホスフィン、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラ-*n*-ブチルホスホニウム-*o*, *o*-ジエチルホスホロジチオエートなどのリン化合物、例えば、4級アンモニウム塩化合物、例えば、有機金属塩化合物、例えば、それらの誘導体などが挙げられる。これら硬化促進剤は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0053] エポキシ樹脂組成物における硬化剤の配合割合は、エポキシ樹脂100質量部に対して、例えば、0.5～50質量部、好ましくは、1～10質量部であり、硬化促進剤の配合割合は、例えば、0.1～10質量部、好ましくは、0.2～5質量部である。

- [0054] 上記した硬化剤および／または硬化促進剤は、必要により、溶媒により溶解および／または分散された溶媒溶液および／または溶媒分散液として調製して用いることができる。
- [0055] 溶媒としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトンなどケトン、例えば、酢酸エチルなどのエステル、例えば、N，N－ジメチルホルムアミドなどのアミドなどの有機溶媒などが挙げられる。また、溶媒として、例えば、水、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノールなどのアルコールなどの水系溶媒も挙げられる。溶媒として、好ましくは、有機溶媒、さらに好ましくは、ケトンが挙げられる。
- [0056] ポリオレフィンとして、好ましくは、ポリエチレン、エチレン－プロピレン共重合体が挙げられる。
- [0057] ポリエチレンとしては、例えば、低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレンなどが挙げられる。
- [0058] エチレン－プロピレン共重合体としては、例えば、エチレンおよびプロピレンの、ランダム共重合体、ブロック共重合体またはグラフト共重合体などが挙げられる。
- [0059] これらポリオレフィンは、単独使用または２種以上併用することができる。
- [0060] また、ポリオレフィンの重量平均分子量および／または数平均分子量は、例えば、１０００～１００００である。
- [0061] また、ポリオレフィンの融点は、例えば、８０℃以下（具体的には、２０～８０℃）、好ましくは、７０℃以下（具体的には、３５～７０℃）である。
- [0062] また、ポリオレフィンは、単独使用または複数併用することができる。
- [0063] 樹脂のうち、好ましくは、熱硬化性樹脂成分、さらに好ましくは、エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0064] なお、樹脂には、上記した各成分（重合物）の他に、例えば、ポリマー前駆体（例えば、オリゴマーを含む低分子量ポリマーなど）、および／または

、モノマーが含まれる。

[0065] 樹脂の室温（25℃）における粘度は、例えば、3000 mPa・s以上30000 mPa・s未満、好ましくは、5000 mPa・s以上20000 mPa・s未満である。

[0066] また、樹脂の溶融温度（樹脂が熱硬化性樹脂成分の場合には、その軟化温度（環球法）、熱可塑性樹脂成分の場合には、その融点）は、上記したように、例えば、80℃以下（具体的には、20～80℃）、好ましくは、70℃以下（具体的には、35～70℃）である。

[0067] 熱伝導性無機粒子は、樹脂中に均一に分散され、後述するように、厚み方向に対する直交方向の熱伝導率が10 W/m・K以上の熱伝導性シートを製造できれば、特に制限されず、公知の充填材を用いることができる。

[0068] 具体的には、例えば、酸化アルミニウム、二酸化ケイ素、二酸化チタン、マイカ、チタン酸カリウム、酸化鉄、タルクなどの酸化物粒子、例えば、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウムなどの窒化物粒子、例えば、炭化ケイ素などの炭化物粒子、例えば、銅、アルミニウムなどの金属粒子などが挙げられる。

[0069] これら熱伝導性無機粒子は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0070] 熱伝導性無機粒子として、好ましくは、窒化物粒子、より好ましくは、窒化ホウ素が挙げられる。

[0071] また、熱伝導性無機粒子の形状としては、例えば、板状、鱗片状、球状などが挙げられ、好ましくは、板状、鱗片状が挙げられ、より好ましくは、鱗片状が挙げられる。

[0072] 鱗片状（または板状。以下同様。）の熱伝導性無機粒子は、長手方向長さ（鱗片の厚み方向に対する直交方向における最大長さ）の平均が、例えば、1～100 μm、好ましくは、3～90 μmである。また、熱伝導性無機粒子の長手方向長さの平均は、5 μm以上、好ましくは、10 μm以上、さらに好ましくは、20 μm以上、とりわけ好ましくは、30 μm以上、最も好

ましくは、 $40\mu\text{m}$ 以上であり、通常、例えば、 $100\mu\text{m}$ 以下、好ましくは、 $90\mu\text{m}$ 以下である。

[0073] また、熱伝導性無機粒子の厚み（鱗片の厚み方向長さ、つまり、粒子の短手方向長さ）の平均は、例えば、 $0.01\sim 20\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $0.1\sim 15\mu\text{m}$ である。

[0074] また、熱伝導性無機粒子のアスペクト比（長手方向長さ／厚み）は、例えば、 $2\sim 10000$ 、好ましくは、 $10\sim 5000$ である。

[0075] そして、窒化ホウ素粒子の光散乱法によって測定される平均1次粒子径は、例えば、 $5\mu\text{m}$ 以上、好ましくは、 $10\mu\text{m}$ 以上、さらに好ましくは、 $20\mu\text{m}$ 以上、とりわけ好ましくは、 $30\mu\text{m}$ 以上、最も好ましくは、 $40\mu\text{m}$ 以上であり、通常、 $100\mu\text{m}$ 以下である。

[0076] なお、光散乱法によって測定される平均1次粒子径は、動的光散乱式粒度分布測定装置にて測定される体積平均粒子径である。

[0077] 熱伝導性無機粒子の光散乱法によって測定される平均1次粒子径が上記範囲に満たないと、熱伝導性シートが脆くなり、取扱性が低下する場合がある。

[0078] また、熱伝導性無機粒子の嵩密度（JIS K 5101、見かけ密度）は、例えば、 $0.3\sim 1.5\text{g}/\text{cm}^3$ 、好ましくは、 $0.5\sim 1.0\text{g}/\text{cm}^3$ である。

[0079] また、熱伝導性無機粒子は、市販品またはそれを加工した加工品を用いることができる。

[0080] 市販品としては、例えば、窒化ホウ素粒子の市販品などが挙げられ、窒化ホウ素粒子の市販品として、具体的には、例えば、モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製の「PT」シリーズ（例えば、「PT-110」など）、昭和電工社製の「ショービーエヌUHP」シリーズ（例えば、「ショービーエヌUHP-1」など）などが挙げられる。

[0081] 樹脂組成物において、熱伝導性無機粒子の体積基準の含有割合（固形分、つまり、樹脂が熱可塑性樹脂成分からなる場合には、熱可塑性樹脂成分およ

び熱伝導性無機粒子の総体積に対する熱伝導性無機粒子の体積百分率)は、35体積%以上、好ましくは、40体積%以上、好ましくは、65体積%以上、より好ましくは、75体積%以上、通常、例えば、95体積%以下である。

[0082] 熱伝導性無機粒子の体積基準の含有割合が上記した範囲に満たない場合には、熱伝導性無機粒子を熱伝導性シートにおいて所定方向に配向させることができない場合がある。一方、熱伝導性無機粒子の体積基準の含有割合が上記した範囲を超える場合には、熱伝導性シートが脆くなり、取扱性が低下する場合がある。

[0083] また、熱伝導性シートを形成する各成分(熱伝導性無機粒子および樹脂)総量(固形分総量)100質量部に対する熱伝導性無機粒子の質量基準の配合割合は、例えば、40~95質量部、好ましくは、65~90質量部であり、熱伝導性シートを形成する各成分総量100質量部に対する樹脂の質量基準の配合割合は、例えば、5~60質量部、好ましくは、10~35質量部である。なお、熱伝導性無機粒子の、樹脂100質量部に対する質量基準の配合割合は、例えば、60~1900質量部、好ましくは、185~900質量部でもある。

[0084] そして、樹脂組成物の準備においては、特に制限されないが、上記した樹脂(必要により、硬化剤、硬化促進剤および溶媒)と、熱伝導性無機粒子とを、上記した割合で配合し、公知の方法により攪拌混合する。

[0085] 攪拌混合では、各成分を効率よく混合すべく、例えば、溶媒を上記した各成分とともに配合するか、または、例えば、加熱により樹脂(好ましくは、熱可塑性樹脂成分)を溶融させることができる。

[0086] 溶媒としては、上記と同様の有機溶媒が挙げられる。また、上記した硬化剤および/または硬化促進剤が溶媒溶液および/または溶媒分散液として調製されている場合には、攪拌混合において溶媒を追加することなく、溶媒溶液および/または溶媒分散液の溶媒をそのまま攪拌混合のための混合溶媒として供することができる。あるいは、攪拌混合において溶媒を混合溶媒とし

てさらに追加することもできる。

[0087] 溶媒を用いて攪拌混合する場合には、攪拌混合の後、溶媒を除去する。

[0088] 溶媒を除去するには、例えば、室温にて、1～48時間放置するか、例えば、40～100℃で、0.5～3時間加熱するか、または、例えば、0.001～50kPaの減圧雰囲気下で、20～60℃で、0.5～3時間加熱する。

[0089] 加熱により樹脂（好ましくは、熱可塑性樹脂成分）を溶融させる場合には、加熱温度が、例えば、樹脂の軟化温度付近またはそれを超過する温度であって、具体的には、40～200℃、好ましくは、70～140℃である。

[0090] これによって、樹脂組成物が調製される。

[0091] 本発明において、準備工程において準備される樹脂組成物は、室温（25℃）で固形状態または半固形状態である。

[0092] 次に、この方法では、得られた樹脂組成物を熱プレスし、樹脂組成物を溶融状態から半固形状態にした後、さらに、樹脂組成物の粘度を増加させることにより、シート化する（シート化工程）。

[0093] より具体的には、シート化工程では、まず、樹脂組成物を、樹脂が熱溶融する加熱および加圧条件において、例えば、2枚の離型フィルムを介して、熱プレスする（溶融工程）。

[0094] 熱プレスの条件は、樹脂が熱溶融すればよく、具体的には、温度が、例えば、50～150℃、好ましくは、60～140℃であり、圧力が、例えば、1～100MPa、好ましくは、5～50MPaである。

[0095] また、好ましくは、樹脂組成物を真空熱プレスする。真空熱プレスにおける真空度は、例えば、1～100Pa、好ましくは、5～50Paであり、温度、圧力および時間は、上記した熱プレスのそれらと同様である。

[0096] 熱プレスにおける温度、圧力および／または時間が、上記した範囲外にある場合には、熱伝導性シートの空隙率P（後述）を所望の値に調整できない場合がある。

[0097] また、このような溶融工程では、樹脂の粘度が、例えば、10000mP

a・s未満、好ましくは、5000mPa・s未満、通常、50mPa・s以上となるように、樹脂組成物を熱プレスする。

[0098] このような溶融工程において、樹脂が熱硬化性樹脂成分である場合には、樹脂は熱プレスによって一旦、溶融状態となるが、その後、加熱によって硬化が進行し、半固形状態（Bステージ）となる。

[0099] また、樹脂が熱可塑性樹脂成分である場合には、熱プレスによって溶融状態となる。

[0100] 次に、このシート化工程では、上記の溶融工程の後、樹脂がほぼ流動しない温度まで、温度を降下させるとともに、その温度に至るまで、加圧状態で保持する（保持工程）。

[0101] 具体的には、保持工程では、上記した圧力条件において、加圧状態で保持し、樹脂組成物を、樹脂がほぼ流動しない温度まで冷却することにより、樹脂組成物の粘度を増加させて（増粘工程）、固形状態にする（固形化工程）。

[0102] 例えば、樹脂として、熱硬化性樹脂成分が用いられる場合には、樹脂がほぼ流動しない温度としては、例えば、0～150℃、好ましくは、5～100℃である。

[0103] また、樹脂として、熱可塑性樹脂成分が用いられる場合には、樹脂がほぼ流動しない温度としては、例えば、0～150℃、好ましくは、5～100℃である。

[0104] そして、上記圧力条件下において、上記温度まで樹脂組成物を冷却することにより、樹脂組成物（プレスシート）の粘度が増加し、樹脂がほぼ流動なくなり、樹脂組成物がほぼ固形化したプレスシートが得られる。

[0105] 樹脂が熱硬化性樹脂成分である場合には、冷却により硬化の進行が抑制される一方、温度低下に伴う物理的な固化が進行し、その結果、樹脂組成物は、ほぼ固形化する。

[0106] また、樹脂が熱可塑性樹脂成分である場合には、冷却により、温度低下に伴う物理的な固化が進行し、樹脂組成物は、半固形状態を経て、ほぼ固形化

する。

[0107] このようにして、溶融工程において熱溶融された樹脂組成物が、保持工程において樹脂がほぼ流動しない温度まで、温度を降下させるとともに、当該温度に至るまで加圧状態で保持することにより、熱伝導性無機粒子の配向性を高めるとともに、シート中の空隙を低減することができる。

[0108] また、このような保持工程において、樹脂組成物を加圧状態で保持する保持時間は、例えば、5分～3時間、好ましくは、15分～1時間である。

[0109] また、増加後の樹脂の粘度（ほぼ流動しない状態における粘度）は、例えば、3000 mPa・s以上、好ましくは、5000 mPa・s以上、通常、30000 mPa・s未満、好ましくは、20000 mPa・s未満である。

[0110] 溶融工程において、樹脂の粘度が5000 mPa・s未満となるように熱プレスされたシートが、保持工程において5000 mPa・s以上になるまで保持されていれば、より熱伝導性無機粒子の配向性を高めるとともに、シート中の空隙を低減することができる。

[0111] そして、このような熱伝導性シートの製造方法によれば、樹脂組成物を熱プレスすることにより、熱伝導性無機粒子を所定方向に配向された形態で分散させることができるとともに、その状態において粘度が増加されるため、シート中の空隙を低減することができる。

[0112] その結果、このような熱伝導性シートの製造方法によれば、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートを製造することができる。

[0113] 加えて、このような熱伝導性シートの製造方法では、シート中の空隙を低減するため、脱泡などの工程を要しないので、手間およびコストを低減して熱伝導性シートを製造することができる。

[0114] そして、これにより得られる熱伝導性シート（プレスシート）の厚みは、例えば、50～1000 μm 、好ましくは、100～800 μm である。

[0115] また、熱伝導性シートにおける熱伝導性無機粒子の体積基準の含有割合（

固形分、つまり、樹脂および熱伝導性無機粒子の総体積に対する熱伝導性無機粒子の体積百分率）は、上記したように、35体積%以上、好ましくは、40体積%以上、好ましくは、65体積%以上、より好ましくは、75体積%以上、通常、例えば、95体積%以下である。

[0116] 熱伝導性無機粒子の含有割合が上記した範囲に満たない場合には、熱伝導性無機粒子を熱伝導性シートにおいて所定方向に配合させることできない場合がある。

[0117] そして、このようにして得られた熱伝導性シートにおいて、熱伝導性無機粒子の長手方向は、熱伝導性シートの厚み方向に交差（直交）する面方向に沿って配向している。

[0118] また、熱伝導性無機粒子の長手方向が熱伝導性シートの面方向に成す角度の算術平均（熱伝導性無機粒子の熱伝導性シートに対する配向角度）は、例えば、25度以下、好ましくは、20度以下であり、通常、0度以上である。

[0119] なお、熱伝導性無機粒子の熱伝導性シートに対する配向角度は、熱伝導性シートを厚み方向に沿ってクロスセクションポリッシャー（CP）により切断加工して、それにより現れる断面を走査型電子顕微鏡（SEM）で、200個以上の熱伝導性無機粒子を観察できる視野の倍率で写真撮影し、得られたSEM写真より、熱伝導性無機粒子の長手方向の、熱伝導性シートの面方向（厚み方向に直交する方向）に対する傾斜角を取得し、その平均値として算出される。

[0120] これにより、熱伝導性シートの面方向の熱伝導率は、 $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、好ましくは、 $20\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上であり、通常、 $200\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下である。

[0121] 熱伝導性シートの面方向の熱伝導率が上記範囲に満たないと、面方向の熱伝導性が十分でないため、そのような面方向SDの熱伝導性が要求される放熱用途に用いることができない。

[0122] なお、熱伝導性シートの面方向の熱伝導率は、パルス加熱法により測定す

る。パルス加熱法では、キセノンフラッシュアナライザー「L F A - 4 4 7 型」(N E T Z S C H 社製)が用いられる。

[0123] また、熱伝導性シートの厚み方向の熱伝導率は、例えば、 $0.5 \sim 15 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ 、好ましくは、 $1 \sim 10 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ である。

[0124] なお、熱伝導性シートの厚み方向の熱伝導率は、パルス加熱法、レーザーフラッシュ法またはTWA法により測定する。パルス加熱法では、上記と同様のものが用いられ、レーザーフラッシュ法では、「T C - 9 0 0 0」(アルバック理工社製)が用いられ、TWA法では、「a i - P h a s e m o b i l e」(アイフェイズ社製)が用いられる。

[0125] これにより、熱伝導性シートの面方向の熱伝導率の、熱伝導性シートの厚み方向の熱伝導率に対する比(面方向の熱伝導率/厚み方向の熱伝導率)は、例えば、1.5以上、好ましくは、3以上、さらに好ましくは、4以上であり、通常、20以下である。

[0126] また、熱伝導性シートには、例えば、空隙(隙間)が形成されている。

[0127] 熱伝導性シートにおける空隙の割合、すなわち、空隙率Pは、熱伝導性無機粒子の含有割合(体積基準)、さらには、熱伝導性無機粒子および樹脂を含む樹脂組成物熱プレスの温度、圧力および/または時間、さらには、その圧力条件における保持時間によって、調整することができ、具体的には、上記した熱プレスの温度、圧力および/または時間を上記範囲内に設定することにより、調整することができる。

[0128] 熱伝導性シートにおける空隙率Pは、例えば、30体積%以下であり、好ましくは、10体積%以下である。

[0129] 上記した空隙率Pは、例えば、まず、熱伝導性シートを厚み方向に沿ってクロスセクションポリッシャー(CP)により切断加工して、それにより現れる断面を、走査型電子顕微鏡(SEM)で、200倍で観察して、像を得、得られた像から、空隙部分と、それ以外の部分とを二値化処理し、次いで、熱伝導性シート全体の断面積に対する空隙部分の面積比を算出することにより測定される。

[0130] そして、このような熱伝導性シートは、上記の方法により得られ、また、空隙率が30体積%以下であるため、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる。

[0131] そのため、このような熱伝導性シートは、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートとして、種々の放熱用途に用いることができる。

[0132] なお、このような熱伝導性シートにおいて、樹脂が熱硬化性樹脂成分である場合には、使用時において、ほぼ固化しているの熱伝導性シートを、熱硬化させることができる。

[0133] 熱伝導性シートを熱硬化させるには、上記した熱プレスまたは乾燥機が用いられる。好ましくは、乾燥機が用いられる。かかる熱硬化の条件は、温度が、例えば、60～250℃、好ましくは、80～200℃である。熱プレスが用いられる場合には、圧力が、例えば、100MPa以下、好ましくは、50MPa以下である。

[0134] また、熱伝導性シートの面方向の熱伝導率は、樹脂が熱硬化性樹脂成分である場合に、熱硬化の前後において、実質的に同一である。

[0135] なお、熱伝導性シートにおいて、硬化後の空隙率P2は、硬化前の空隙率P1に対して、例えば、100%以下、好ましくは、50%以下である。

[0136] そして、このような熱伝導性シートは、厚み方向に直交する面方向の熱伝導性に優れるとともに、絶縁耐力（絶縁破壊電圧）などの各種電気特性に優れる熱伝導性シートとして、種々の放熱用途に用いることができる。

[0137] 具体的には、パワーエレクトロニクス技術に採用される熱伝導性シートとして、より詳しくは、例えば、LED放熱基板、電池用放熱材に適用される熱伝導性シートとして用いることができる。

実施例

[0138] 以下に実施例および比較例を示し、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は、何ら実施例および比較例に限定されない。

[0139] 実施例 1

熱硬化性樹脂成分として、エポキシモノマーである J E R 8 2 8（ジャパンエポキシレジン社製）1 g と、E P P N - 5 0 1 H Y（日本化薬製）2 g と、イミダゾール系エポキシ樹脂硬化剤であるキュアゾール 2 P 4 M H Z - P W（四国化成社製）の 5 質量%メチルエチルケトン溶液 3 g と、窒化ホウ素フィラーである P T - 1 1 0（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）12 g とを混合および攪拌し、樹脂組成物を準備した（準備工程）。

[0140] 次いで、得られた樹脂組成物を、室温（25℃）雰囲気下で一晩放置して、メチルエチルケトンを揮発させ、その後、樹脂組成物をシリコーン処理離型フィルムではさみ、真空加熱プレス機を用いて、110℃、10 Pa の真空条件下、5 t の荷重で 10 分間加圧した（溶融工程）。

[0141] その後、圧力（5 t）を保持したまま、プレス機の温度を 50℃まで低下させ、樹脂の粘度を増加させた（保持工程）。その後、プレス機からシートを取り出し、ほぼ固化した熱伝導性シートを得た（シート化工程）。

[0142] 得られた熱伝導性シートにおける窒化ホウ素の含有割合は、70 体積%であった。

[0143] 実施例 2

熱硬化性樹脂成分として、エポキシモノマーであるオグソール E G - 2 0 0（大阪ガスケミカル社製）1 g と、E P P N - 5 0 1 H Y（日本化薬製）2 g と、イミダゾール系エポキシ樹脂硬化剤であるキュアゾール 2 P 4 M H Z - P W（四国化成社製）の 5 質量%メチルエチルケトン溶液 3 g と、窒化ホウ素フィラーである P T - 1 1 0（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）12 g とを混合および攪拌し、樹脂組成物を準備した（準備工程）。

[0144] 次いで、得られた樹脂組成物を、室温（25℃）雰囲気下で一晩放置して、メチルエチルケトンを揮発させ、その後、樹脂組成物をシリコーン処理離型フィルムではさみ、真空加熱プレス機を用いて、110℃、10 Pa の真

空条件下、5 t の荷重で10分間加圧した（溶融工程）。

[0145] その後、圧力（5 t）を保持したまま、プレス機の温度を50℃まで降下させ、樹脂の粘度を増加させた（保持工程）。その後、プレス機からシートを取り出し、ほぼ固化した熱伝導性シートを得た（シート化工程）。

[0146] 得られた熱伝導性シートにおける窒化ホウ素の含有割合は、70体積%であった。

[0147] 実施例3

熱可塑性樹脂成分として、ポリエチレン（シグマアルドリッチジャパン社製）1 gを130℃にて熱溶融させた。この中に、窒化ホウ素フィラーであるPT-110（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）3 gを混合および攪拌し、樹脂組成物を準備した（準備工程）。

[0148] 次いで、得られた樹脂組成物を、シリコーン処理離型フィルムではさみ、真空加熱プレス機を用いて、110℃、10 Paの真空条件下、5 t の荷重で10分間加圧した（溶融工程）。

[0149] その後、圧力（5 t）を保持したまま、プレス機の温度を50℃まで降下させ、樹脂の粘度を増加させた（保持工程）。その後、プレス機からシートを取り出し、固化した熱伝導性シートを得た（シート化工程）。

[0150] 得られた熱伝導性シートにおける窒化ホウ素の含有割合は、70体積%であった。

[0151] 比較例1

熱硬化性樹脂成分として、エポキシモノマーであるJER828（ジャパンエポキシレジン社製）1 gと、EPPN-501HY（日本化薬製）2 gと、イミダソール系エポキシ樹脂硬化剤であるキュアゾール2P4MHZ-PW（四国化成社製）の5質量%メチルエチルケトン溶液3 gと、窒化ホウ素フィラーであるPT-110（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）12 gとを混合および攪拌し、樹脂組成物を準備した。

[0152] 次いで、得られた樹脂組成物を、室温（25℃）雰囲気下で一晩放置して

、メチルエチルケトンを揮発させ、その後、樹脂組成物をシリコーン処理離型フィルムではさみ、真空加熱プレス機を用いて、110℃、10Paの真空条件下、5tの荷重で10分間加圧した。その後、加圧状態を保持することなくプレス機からシートを取り出し、熱伝導性シートを得た。

[0153] 得られた熱伝導性シートにおける窒化ホウ素の含有割合は、70体積%であった。

[0154] 比較例2

熱可塑性樹脂成分として、ポリエチレン（シグマアルドリッチジャパン社製）1gを130℃にて熱熔融させた。この中に、窒化ホウ素フィラーであるPT-110（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製）3gを混合および攪拌し、樹脂組成物を準備した（準備工程）。

[0155] 次に、得られた樹脂組成物を、シリコーン処理離型フィルムではさみ、真空加熱プレス機を用いて、110℃、10Paの真空条件下、5tの荷重で10分間加圧した。その後、加圧状態を保持することなくプレス機からシートを取り出し、熱伝導性シートを得た。

[0156] 得られた熱伝導性シートにおける窒化ホウ素の含有割合は、70体積%であった。

[0157] （評価）

（1）熱伝導率

各実施例および各比較例により得られた熱伝導性シートについて、面方向における熱伝導率を、キセノンフラッシュアナライザー「LFA-447型」（NETZSCH社製）を用いるパルス加熱法により測定した。

[0158] その結果を、表1に示す。

（2）樹脂粘度

各実施例および各比較例において用いられた樹脂の、熱プレス時における粘度と、プレス機からの取り出し時における粘度とを、それぞれ、B型粘度計（型番：TV-20（東機産業社製））を用いて測定した。

[0159] その結果を、表1に示す。

[0160] なお、熱可塑性樹脂成分を用いた実施例3および比較例2では、熱プレス時において、樹脂組成物が液状になったため、粘度を測定することができず、また、熱プレス後には、熱伝導性シートが固化していたため、粘度を測定することができなかった。

[0161] [表1]

表1

実施例・比較例No.	樹脂粘度 (mPa・s)		熱伝導率 (W/m・K)
	熱プレス時	取り出し時	
実施例1	160	10000	40
実施例2	791	>100000	49
実施例3	測定不能	測定不能	63
比較例1	160	160	34
比較例2	測定不能	測定不能	18

(3) 空隙率

実施例1および比較例1において得られた熱伝導性シートを、クロスセクションポリッシャーによって厚み方向に沿って切断し、その切断面を、走査型電子顕微鏡 (SEM) で、200倍で観察した。

[0162] 実施例1の熱伝導性シートの画像処理図を図1に、比較例1の熱伝導性シートの画像処理図を図2に示す。

[0163] 図1および図2より、樹脂組成物を熱プレスし、熔融状態から半固形状態にした後、さらに、粘度を増加させることによりシート化した実施例1の熱伝導性シートは、粘度を増加させることなくシート化した比較例1の熱伝導性シートに比べ、シート中の空隙が低減されていることが確認された。

[0164] なお、上記発明は、本発明の例示の実施形態として提供したが、これは単なる例示にすぎず、限定的に解釈してはならない。当該技術分野の当業者によって明らかな本発明の変形例は、後記特許請求の範囲に含まれるものである。

産業上の利用可能性

[0165] 本発明の熱伝導性シートは、パワーエレクトロニクス技術が採用される分

野において、有効に用いられる。

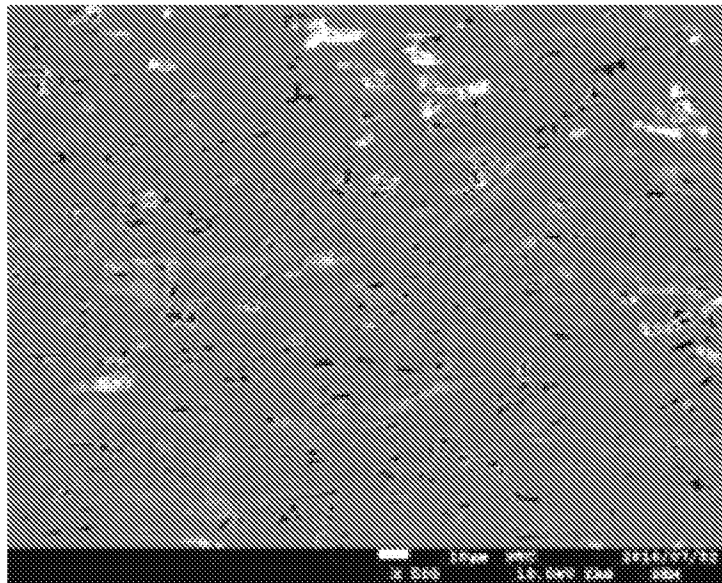
請求の範囲

- [請求項1] 厚み方向に対する直交方向の熱伝導率が $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の熱伝導性シートの製造方法であって、
- 樹脂および熱伝導性無機粒子を含有する樹脂組成物を準備する準備工程と、
- 前記樹脂組成物を熱プレスし、熔融状態から半固形状態にした後、さらに、粘度を増加させることによりシート化するシート化工程とを備えることを特徴とする、熱伝導性シートの製造方法。
- [請求項2] 前記シート化工程は、
- 前記樹脂組成物を、前記樹脂が熱熔融する加熱および加圧条件において熱プレスする熔融工程と、
- 前記熔融工程の後、前記樹脂がほぼ流動しない温度まで、温度を低下せるとともに、当該温度に至るまで、加圧状態で保持する保持工程と
- を備えることを特徴とする、請求項1に記載の熱伝導性シートの製造方法。
- [請求項3] 前記熔融工程において、
- 前記樹脂の粘度が $5000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 未満となるように熱プレスし、
- 前記保持工程において、
- 前記樹脂の粘度が $5000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上になるまで前記シートを保持することを特徴とする、請求項2に記載の熱伝導性シートの製造方法。
- [請求項4] 前記熱伝導性無機粒子が、平均1次粒子径 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上の鱗片状粒子であり、
- 前記樹脂組成物が、その総量に対して、前記熱伝導性粒子を40体積%以上の割合で含有することを特徴とする、請求項1に記載の熱伝導性シートの製造方法。

- [請求項5] 厚み方向に対する直交方向の熱伝導率が $10\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の熱伝導性シートの製造方法であって、
- 樹脂および熱伝導性無機粒子を含有する樹脂組成物を準備する準備工程と、
- 前記樹脂組成物を熱プレスし、溶融状態から半固形状態にした後、さらに、粘度を増加させることによりシート化するシート化工程とを備える熱伝導性シートの製造方法により得られ、
- 空隙率が 30 体積％以下であることを特徴とする、熱伝導性シート。

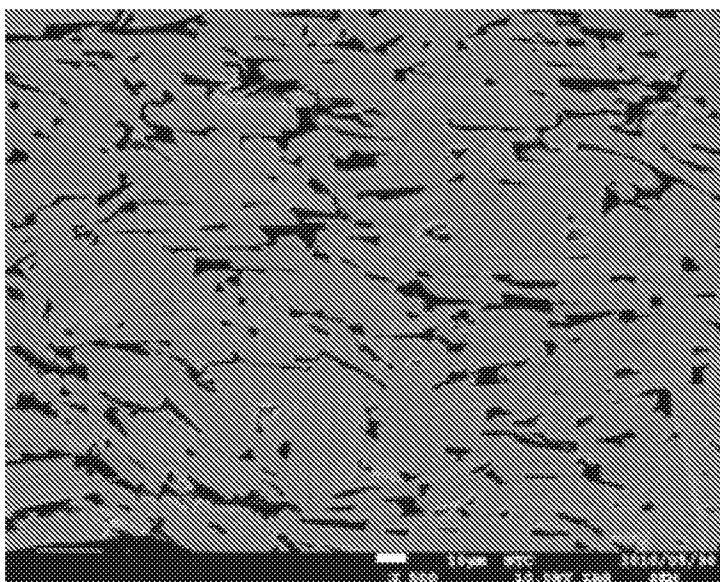
[図1]

図1



[図2]

図2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/056682

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05K7/20(2006.01)i, C09K5/08(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i

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)

H05K7/20, C09K5/08, H01L23/34-23/473

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-210597 A (Mitsubishi Electric Corp.), 10 August 2006 (10.08.2006), entire text; fig. 1 to 14 & US 2006/165978 A1 & DE 102006004015 A & CN 1819163 A	1-5
A	WO 2009/041300 A1 (Mitsubishi Electric Corp.), 02 April 2009 (02.04.2009), entire text; fig. 1 to 11 & US 2010/226095 A1 & DE 112008002566 T & CN 101809734 A	1-5
A	JP 2002-69392 A (Polymatech Co., Ltd.), 08 March 2002 (08.03.2002), entire text; fig. 1 to 8 & US 2002/050585 A1 & EP 1184899 A2	1-5

☒ 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
05 April, 2012 (05.04.12)

Date of mailing of the international search report
17 April, 2012 (17.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/056682

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-280436 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 20 November 2008 (20.11.2008), entire text (Family: none)	1-5
A	JP 2000-290613 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 17 October 2000 (17.10.2000), entire text (Family: none)	1-5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05K7/20(2006.01)i, C09K5/08(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05K7/20, C09K5/08, H01L23/34-23/473

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2006-210597 A (三菱電機株式会社) 2006.08.10, 全文, 第 1-14 図 & US 2006/165978 A1 & DE 102006004015 A & CN 1819163 A	1-5
A	WO 2009/041300 A1 (三菱電機株式会社) 2009.04.02, 全文, 第 1-11 図 & US 2010/226095 A1 & DE 112008002566 T & CN 101809734 A	1-5
A	JP 2002-69392 A (ポリマテック株式会社) 2002.03.08, 全文, 第 1-8 図 & US 2002/050585 A1 & EP 1184899 A2	1-5

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 5 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

1 7 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川内野 真介

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 3 9 1

3 S

3 0 2 2

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-280436 A (電気化学工業株式会社) 2008. 11. 20, 全文 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2000-290613 A (日立化成工業株式会社) 2000. 10. 17, 全文 (ファミリーなし)	1-5