(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0024921
(43) 공개일자 2025년02월20일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*C08L 83/04* (2006.01) *C08G 77/12* (2006.01)
*C08G 77/20* (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
*C08K 3/22* (2006.01)
(52) CPC특허분류
*C08L 83/04* (2013.01)
*C08G 77/12* (2013.01)
(21) 출원번호 10-2024-7040925
(22) 출원일자(국제) 2023년06월16일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년12월10일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2023/022400
(87) 국제공개번호 WO 2023/243711
국제공개일자 2023년12월21일
(30) 우선권주장
JP-P-2022-098435 2022년06월17일 일본(JP)
JP-P-2022-138189 2022년08월31일 일본(JP)

(71) 출원인
**세키스이가가쿠 고교가부시키가이샤**
일본 오사카후 오사카시 기타구 니시템마 2죠메 4-4
**세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤**
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8죠메 10반 1고
(72) 발명자
**스다 히로미**
일본 사이타마켄 사이타마시 사쿠라쿠 다지마 8죠메 10반 1고 세키수이 폴리머텍 가부시키가이샤 내
**이와모토 다쓰야**
일본 오사카후 미시마군 시마모토쵸 햐쿠야마 2-1 세키스이가가쿠 고교가부시키가이샤 내
(74) 대리인
**(유)한양특허법인**

전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 **열전도성 조성물 및 열전도성 부재**

## (57) 요 약

(A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하고, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은 것을 특징으로 하는 열전도성 조성물.

(52) CPC특허분류
***C08G 77/18*** (2013.01)
***C08G 77/20*** (2013.01)
***C08K 3/013*** (2018.01)
***C09K 5/14*** (2013.01)
*C08K 2003/2227* (2013.01)

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

(A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과,

(B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과,

(C) 열전도성 충전재와,

(D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과,

(E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하고,

상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 열전도성 조성물.

### 청구항 2

(A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과,

(B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과,

(C) 열전도성 충전재와,

(D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과,

(E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하고,

상기 (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나, 및, 상기 (E) 성분을 포함하며, 상기 (B) 성분을 포함하지 않는 제1 제(劑)와,

상기 (B) 성분을 포함하고, 상기 (E) 성분을 포함하지 않는 제2 제의 조합으로 이루어지며,

상기 (C) 성분이, 상기 제1 제 및 상기 제2 제 중 적어도 어느 한쪽에 포함되고,

상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 열전도성 조성물.

### 청구항 3

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$와 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$가, 하기 (1)식을 만족하는, 열전도성 조성물.

$M_{wd} \times 2.3 \leq M_{wa}$ ···(1)

### 청구항 4

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

메타크릴로일기 함유량(Me 함유량), 및 알케닐기 함유량(Vi 함유량)이, 몰 기준으로 하기 (2) 및 (3)식을 만족하는, 열전도성 조성물.

$0.10 \leq \alpha \leq 0.60$ ···(2)

$\alpha$=Me 함유량/(Me 함유량+Vi 함유량) ···(3)

### 청구항 5

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 및 알케닐기의 함유량 Vi가, 하기 (4)식을 만족하는, 열전도성 조성물.

$0.8 \leq H/Vi \leq 1.5$ ···(4)

**청구항 6**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 알케닐기의 함유량 Vi, 및 메타크릴로일기의 함유량 Me가, 하기 (5)식을 만족하는, 열전도성 조성물.

$0.4 \leq H/(Vi+Me) \leq 1.2$ ···(5)

**청구항 7**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 열전도성 조성물을 25℃에서 24시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E1)과, 상기 열전도성 조성물을 25℃에서 24시간 방치하고, 또한 150℃에서 250시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E2)의 관계가, 하기 (6)식을 만족하는, 열전도성 조성물.

$E2/E1 \leq 1.5$ ···(6)

**청구항 8**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

또한, (F) 부가 반응기를 갖지 않는 오르가노폴리실록산을 함유하는, 열전도성 조성물.

**청구항 9**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

온도 25℃, 전단 속도 3.16(1/s)의 조건하에 있어서의 점도가 10~1000Pa·s인, 열전도성 조성물.

**청구항 10**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 (C) 성분이 산화알루미늄을 포함하는, 열전도성 조성물.

**청구항 11**

제2 제와 혼합됨으로써,

(A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과,

(B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과,

(C) 열전도성 충전재와,

(D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과,

(E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하는 열전도성 조성물로서 사용할 수 있는 제1 제로서,

상기 (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나, 및, 상기 (E) 성분을 포함하고, 상기 (B) 성분을 포함하지 않으며,

상기 제2 제와 조합함으로써, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 제1 제.

**청구항 12**

제1 제와 혼합됨으로써,

(A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과,

(B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과,

(C) 열전도성 충전재와,

(D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과,

(E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하는 열전도성 조성물로서 사용할 수 있는 제2 제로서,

상기 (B) 성분을 포함하고, 상기 (E) 성분을 포함하지 않으며,

상기 제1 제와 조합함으로써, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 제2 제.

**청구항 13**

청구항 1 또는 청구항 2에 기재된 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는, 열전도성 부재.

**청구항 14**

청구항 1 또는 청구항 2에 기재된 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는 열전도성 부재가, 발열체와 방열체 사이에 개재하는, 전장 부품.

**청구항 15**

청구항 14에 있어서,

상기 발열체가, 엔진 룸 내 및 모터 근방 중 적어도 어느 한쪽에 배치되는 것인, 전장 부품.

**청구항 16**

청구항 14 또는 청구항 15에 있어서,

150℃ 이상의 환경하에 노출되는, 전장 부품.

## *발명의 설명*

### *기 술 분 야*

[0001] 본 발명은, 열전도성 조성물 및 열전도성 부재에 관한 것이다.

### *배 경 기 술*

[0002] 열전도성 조성물은, 경화 가능하고 액상의 것이 널리 알려져 있으며, 예를 들어, 발열체와 방열체 사이에 충전되고, 그 후, 경화됨으로써 경화물을 형성하고, 발열체가 발하는 열을 방열체에게 전달하는 방열 갭 필러 등의 열전도성 부재로서 사용된다. 종래, 열전도성 조성물로는, 오르가노폴리실록산과 열전도성 충전재를 포함하는, 실리콘 열전도성 조성물이 널리 사용되고 있다.

[0003] 근년, 전기 자동차의 생산량이 순조롭게 성장해 가는 시장 배경 안에서, 연비 향상이나 안전성 향상을 목적으로 전장화가 진전되고 있다. 차재 전장 부품에서는, 자동 실장 요구가 높아지고 있고, 액상이며 복잡한 형상의 개소에도 사용할 수 있는 방열 갭 필러의 수요가 증가하고 있다.

[0004] 또, 근년의 자동차에서는 연비가 중요한 차별화 요소 중 하나로 되어 있으며, 가능한 한 차체 중량을 가볍게 하는 것이 요구되고 있다. 차재 전장 부품도 그 예외가 아니며, 경량 소형화의 개발이 진행되고 있다. 그러나, 전장 부품을 소형화하면, 단위 체적 당의 발열량 즉 발열 밀도가 증가한다. 그로 인해, 방열 갭 필러는, 장기간에 걸쳐서 열전도성 등의 성능을 저하시키는 일 없이 사용할 수 있는 신뢰성이 요구되고 있다.

[0005] 열전도성 조성물은, 종래, 신뢰성에 대해 다양한 검토가 이루어지고 있다. 예를 들어, 특허문헌 1에서는, (A) 1분자 중에 2개의 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산, (B) 1분자 중에 2개의 Si-H기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산, (C) 1분자 중에 Si-H기를 3개 이상 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산, (D) 하기 (D1) 및 (D2)로부터 선택되는 적어도 하나의 화합물, (D1) 1분자 중에 1개의 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산, (D2) 1분자 중에 1개의 Si-H기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산, (E) 백금 촉매, (F) 열전도성 충전제를 상기

(A)~(E) 전량 100체적%로 했을 때에 100~600체적%를 포함하는 성분을 경화시킨 것을 특징으로 하는 열전도성 실리콘 겔 조성물이 개시되어 있다.

[0006] 특허문헌 1에는, (D) 성분으로 분자량이 커지지 않도록 조정하는 것이 기재되어 있으며, 겔상 경화물이면서, 저오일 브리드인 열전도성 실리콘 겔 조성물을 제공할 수 있는 것이 개시되어 있다. 단, 특허문헌 1에 있어서, IC 패키지 등의 발열성 전자 부품의 표면 온도는 80℃ 정도의 온도인 것이 상정되어 있으며, 그 이상의 고온하에 있어서의 신뢰성에 대해서는 언급되어 있지 않다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0007] (특허문헌 0001) 국제 공개 제2021/140694호

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0008] 그런데, 최근 자동차에서는, 차 실내의 거주성을 향상시키기 위해서, 실내 공간을 넓게 하는 것이 요구되고 있다. 차체 부품의 레이아웃 검토에서는, 엔진이나 모터 등의 크고 무거운 기간(基幹) 부품이 우선되는 경우가 많아, 전장 부품과 같이 비교적 작고 가벼운 부품은, 남겨진 스페이스에 배치하지 않을 수 없게 되는 경우가 있다. 결과적으로, 전장 부품 중에는 엔진 룸 내나 모터 근방 등에 있어서, 150℃ 이상의 고온 환경하에 노출되는 경우가 있고, 그에 수반하여 방열 갭 필러도 고온하에서 사용되는 경우가 있다. 그러나, 종래의 열전도성 실리콘 열전도성 조성물에 의해 형성된 방열 갭 필러는, 150℃ 이상의 고온 환경하에서 장기간 사용되면 경도가 상승하고, 발열체나 방열체에 대해서 박리가 발생하기 때문에, 열저항이 상승하는 것을 억제하는 것이 어렵다.

[0009] 또한, 종래의 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산, 및 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산을 실리콘 수지의 주성분으로 하는 열전도성 조성물에서는, 유연성을 높이기 위해서, 가교간의 분자쇄를 길게 하고, 관능기 농도를 내려 가교점을 성기게 하는 것도 생각된다.

[0010] 그러나, 가교간의 분자쇄를 길게 하면, 실리콘 수지의 분자량이 커져 고점도가 된다. 분자량이 큰 실리콘 수지는 반응성이 낮고, 경화 반응이 진행되어 열전도성 조성물이 액상으로부터 고체로 변화하여 갔을 때에, 고체 중에서 확산되기 어렵기 때문에, 실리콘 수지의 반응이 진행될수록 반응기들의 접촉 가능성이 저하하여 가, 최종적으로는 미반응의 성분이 장시간에 걸쳐서 잔존하게 된다. 미반응의 성분이 남으면, 예를 들어 150℃ 이상의 고온 환경하에 있어서의 내열성이 저하하는 문제가 있다. 이 경우, 예를 들어 하이드로실릴기들의 가교 반응 등, 미반응 관능기에 유래하는 반응이 일어남으로써, 경화물의 경도가 상승하는 경우가 있다.

[0011] 본 발명은, 이상의 문제점을 감안하여 이루어진 것이며, 150℃ 이상의 고온 환경하에서도, 경도 상승이 억제된 열전도성 부재를 얻을 수 있는 열전도성 조성물을 제공하는 것을 과제로 한다.

### 과제의 해결 수단

[0012] 본 발명자들은, 열심히 검토한 결과, 메타크릴로일기를 갖는 실리콘 화합물은, 주제인 알케닐기를 갖는 실리콘 화합물보다 분자량이 낮은 경우에도, 부가 반응 속도가 느린 것을 밝혀내어, 상기 과제를 해결할 수 있는 것을 찾아냈다.

[0013] 즉, 본 발명은, 이하의 [1]~[19]를 제공한다.

[0014] [1] (A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하고, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 열전도성 조성물.

[0015] [2] (A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하고, 상기 (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나, 및, 상기 (E) 성분을 포함하며, 상기 (B) 성분을

포함하지 않는 제1 제(劑)와, 상기 (B) 성분을 포함하고, 상기 (E) 성분을 포함하지 않는 제2 제의 조합으로 이루어지며, 상기 (C) 성분이, 상기 제1 제 및 상기 제2 제 중 적어도 어느 한쪽에 포함되고, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 열전도성 조성물.

[0016] [3] 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$와 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$가, 하기 (1)식을 만족하는, [1] 또는 [2]에 기재된 열전도성 조성물.

[0017] $M_{wd} \times 2.3 \leq M_{wa}$ ···(1)

[0018] [4] 메타크릴로일기 함유량(Me 함유량)과, 알케닐기 함유량(Vi 함유량)이, 몰 기준으로 하기 (2) 및 (3)식을 만족하는, [1]~[3] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0019] $0.10 \leq \alpha \leq 0.60$ ···(2)

[0020] $\alpha$=Me 함유량/(Me 함유량+Vi 함유량) ···(3)

[0021] [5] 몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 알케닐기의 함유량 Vi, 및 메타크릴로일기의 함유량 Me가, 하기 (4)식을 만족하는, [1]~[4] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0022] $0.8 \leq H/Vi \leq 1.5$ ···(4)

[0023] [6] 몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 알케닐기의 함유량 Vi, 및 메타크릴로일기의 함유량 Me가, 하기 (5)식을 만족하는, [1]~[5] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0024] $0.4 \leq H/(Vi+Me) \leq 1.2$ ···(5)

[0025] [7] 상기 열전도성 조성물을 25℃에서 24시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E1)과, 상기 열전도성 조성물을 25℃에서 24시간 방치하고, 또한 150℃에서 250시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E2)의 관계가, 하기 (6)식을 만족하는, [1]~[6] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0026] $E2/E1 \leq 1.5$ ···(6)

[0027] [8] 또한, (F) 부가 반응기를 갖지 않는 오르가노폴리실록산을 함유하는, [1]~[7] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0028] [9] 온도 25℃, 전단 속도 3.16(1/s)의 조건하에 있어서의 점도가 10~1000Pa·s인, [1]~[8] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0029] [10] 상기 열전도성 산화제가 산화알루미늄을 포함하는, [1]~[9] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물.

[0030] [11] 제2 제와 혼합됨으로써, (A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하는 열전도성 조성물로서 사용할 수 있는 제1 제로서, 상기 (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나, 및, 상기 (E) 성분을 포함하고, 상기 (B) 성분을 포함하지 않으며, 상기 제2 제와 조합함으로써, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 제1 제.

[0031] [12] 제1 제와 혼합됨으로써, (A) 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산과, (B) 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산과, (C) 열전도성 충전재와, (D) 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하는 열전도성 조성물로서 사용할 수 있는 제2 제로서, 상기 (B) 성분을 포함하고, 상기 (E) 성분을 포함하지 않으며, 상기 제1 제와 조합함으로써, 상기 (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, 상기 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은, 제2 제.

[0032] [13] [1]~[10] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는, 열전도성 부재.

[0033] [14] [1]~[10] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는 열전도성 부재가, 발열체와 방열체 사이에 개재하는, 전장 부품.

[0034] [15] 상기 발열체가, 엔진 룸 내 및 모터 근방 중 적어도 어느 한쪽에 배치되는 것인, [14]에 기재된 전장 부품.

[0035] [16] 150℃ 이상의 환경하에 노출되는, [14] 또는 [15]에 기재된 전장 부품.

[0036] [17] [1]~[10] 중 어느 한쪽에 기재된 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는 열전도성 부재를, 발열체와 방열체 사이에 개재시키는, 사용 방법.

[0037] [18] 상기 발열체가 반도체 소자인, [17]에 기재된 사용 방법.

[0038] [19] 상기 발열체가 150℃ 이상으로 발열하는, [17] 또는 [18]에 기재된 사용 방법.

## 발명의 효과

[0039] 본 발명에 의하면, 150℃ 이상의 고온 환경하에서도, 경도 상승이 억제된 열전도성 부재를 얻을 수 있는 열전도성 조성물을 제공할 수 있다.

## 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0040] [열전도성 조성물]

[0041] 이하, 본 발명의 열전도성 조성물에 대해 상세하게 설명한다.

[0042] 본 발명의 열전도성 조성물은, 이하의 (A)~(E) 성분을 갖는 것이다. 이하, (A)~(E) 성분에 대해 상세하게 설명한다.

[0043] <(A) 성분>

[0044] (A) 성분은, 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산이다. 열전도성 조성물은, (A) 성분을 함유함으로써, 후술하는 오르가노하이드로젠폴리실록산과 부가 반응하여, 적당한 경도를 갖는 경화물을 형성할 수 있다. (A) 성분은, 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산을 복수 혼합하여 이루어지는 혼합물로 할 수도 있다. 또, (A) 성분으로서 사용되는 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산은, 직쇄상이어도 분기상이어도 되고, 직쇄상과 분기상의 혼합물이어도 되나, 직쇄상인 것이 바람직하다.

[0045] (A) 성분에 있어서의 알케닐기는, (A) 성분의 폴리실록산 구조의 분자쇄의 말단 또는 도중 어느 하나에 함유시켜도 되고, 말단 및 도중 양쪽 모두에 함유시켜도 되나, 적어도 말단에 함유시키는 것이 바람직하고, 폴리실록산 구조에 의해 이루어지는 분자쇄의 양말단에 함유시키는 것이 더 바람직하며, 양말단에만 함유시키는 것이 보다 더 바람직하다.

[0046] 알케닐기로는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 탄소수 2~8의 것을 들 수 있고, 비닐기, 알릴기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기 등을 들 수 있으며, 이들 중에서는 합성의 용이성, 반응성의 관점 등에서, 비닐기가 바람직하다. 또, 알케닐기는, 규소 원자에 직접 결합한 알케닐기이면 된다.

[0047] (A) 성분에 있어서의 1분자 중의 알케닐기의 수는, 1개 이상이면 되는데, 바람직하게는 2개 이상, 보다 바람직하게는 2~4개, 더 바람직하게는 2~3개, 보다 더 바람직하게는 2개이다.

[0048] 또한, (A) 성분에는, 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산에서의 알케닐기의 수가 상이한 복수의 성분을 포함해도 되나, 열전도성 조성물에 일정한 경화성을 부여하는 관점에서, 주성분으로서 포함되는 오르가노폴리실록산은 알케닐기의 수가, 2개 이상인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 2~4개, 더 바람직하게는 2~3개, 보다 더 바람직하게는 2개이다. 또한, 주성분이란, (A) 성분에 있어서의 오르가노폴리실록산 중, 가장 함유 비율이 높은 성분을 의미한다. 또, 2개 이상의 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산은, (A) 성분 중, 예를 들어 50~100질량%, 바람직하게는 70~100질량%의 비율을 차지하면 된다.

[0049] 또, 본 명세서에 있어서, 「~」로 나타내는 범위는, 「~」의 전후에 기재되어 있는 소정의 수치 이상부터 소정의 수치 이하까지의 범위인 것을 의미한다.

[0050] 케닐기 이외의 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 헥실기, 도데실기 등의 알킬기, 페닐기 등의 아릴기, 2-페닐에틸기, 2-페닐프로필기 등의 아랄킬기가 예시되고, 추가로 클로로메틸기, 3,3,3-트리플루오로프로필기 등의 치환 탄화수소기 등도 구체예로서 들 수 있다. 이들 중, 합성의 용이 등의 관점에서 메틸기가 바람직하다. 또, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기 중, 80몰% 이상이 메틸기인 것이 바람직하고, 90몰% 이상이 메틸기인 것이 보다 바람직하며, 100몰%가 메틸기인 것이 더 바람직하다. 또한, (A) 성분은, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로서, 수소 원자를 갖지 않고, 즉, (A) 성분은, 하이드로실릴기를 함유하

지 않으면 된다.

[0051] (A) 성분의 오르가노폴리실록산은, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0052] 본 발명의 열전도성 조성물에 있어서, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$는, 후술하는 바와 같이, (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$보다 큰 것이면 되나, 경화물의 경도 상승을 억제하기 쉽게 하거나, 경화물에 있어서 가교 밀도가 너무 높아지는 것 를 방지하고, 경화 후의 유연성을 유지하기 쉽게 하는 관점에서, 12000 이상인 것이 바람직하고, 15000 이상인 것이 보다 바람직하며, 18000 이상인 것이 더 바람직하다. 또, $M_{wa}$는, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지하거나, 일정한 반응성을 부여하는 관점에서, 35000 이하인 것이 바람직하고, 32000 이하인 것이 보다 바람직하며, 27000 이하인 것이 더 바람직하다.

[0053] 또, 경화물의 경도 상승을 억제하기 쉽게 하거나, 경화물에 있어서 가교 밀도가 너무 높아지는 것을 방지하고, 경화 후의 유연성을 유지하는 것과, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지하거나, 일정한 반응성을 부여하는 양립이라고 하는 관점에서, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$는, 12000~35000인 것이 바람직하고, 15000~32000인 것이 보다 바람직하며, 18000~27000인 것이 더 바람직하다.

[0054] 여기서, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$는, 열전도성 조성물에 함유되는 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량을 말한다. 후술하는 (D) 성분에 대해서도 동일하다.

[0055] (A) 성분의 25℃에 있어서의 점도는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 80~5000mPa·s, 바람직하게는 150~2500mPa·s, 보다 바람직하게는 200~1500mPa·s, 더 바람직하게는 250~800mPa·s이다.

[0056] 또, (A) 성분은, 후술하는 (B) 성분과의 혼합물로서 배합되는 경우가 있는데, (A) 성분과 (B) 성분의 혼합물의 25℃에 있어서의 점도는, 예를 들어 80~5000mPa·s, 바람직하게는 150~2500mPa·s, 보다 바람직하게는 200~1500mPa·s, 더 바람직하게는 250~800mPa·s이다.

[0057] (A) 성분, 또는 (A) 및 (B) 성분의 혼합물의 점도를 상기 하한값 이상으로 함으로써, 경화물에 있어서, 가교 밀도가 너무 높아지는 것을 방지하여, 경화 후의 유연성을 유지하기 쉬워진다. 또, 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지할 수 있다. 또한, 점도를 상기 범위 내로 함으로써, (A) 성분, 또는 (A) 및 (B) 성분의 반응성을 적절히 하기 쉬워진다.

[0058] 또한, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, (A) 성분은, 제1 제에 배합되는 (A) 성분의 25℃에 있어서의 점도가, 상기 점도 범위로 조정되고, 또, 제2 제에 배합되는 (A) 성분과 (B) 성분의 혼합물의 25℃에 있어서의 점도가, 상기 점도 범위로 조정되어도 된다.

[0059] (A) 성분의 함유량은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 대해서, 예를 들어 20~70질량%, 바람직하게는 25~60질량%, 보다 바람직하게는 30~50질량%이다. 또한, 상기 오르가노폴리실록산 전량에 포함되는 오르가노폴리실록산은, 부가 반응에 기여하는 (A) 성분, (B) 성분, (D) 성분에 더해, 부가 반응하지 않는 (F) 성분의 합계이다.

[0060] <(B) 성분>

[0061] (B) 성분은, 하이드로실릴기를 갖는 오르가노하이드로젠폴리실록산이다. 열전도성 조성물은, (B) 성분을 함유함으로써, (B) 성분이 (A) 성분 및 (D) 성분과 부가 반응하여, 적당한 경도를 갖는 경화물을 형성할 수 있다.

[0062] (B) 성분은, 직쇄상 또는 분기상이어도 되고, 직쇄상과 분기상의 혼합물이어도 되나, 직쇄상인 것이 바람직하다. (B) 성분에 있어서, 하이드로실릴기는, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 말단, 또는 분자쇄의 도중 중 어느 하나에 함유시켜도 되고, 말단 및 도중의 양쪽 모두에 함유시켜도 되나, 적어도 말단에 함유시키는 것이 바람직하고, 하이드로실릴기를, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 양말단 각각에 함유시키는 것이 더 바람직하다.

[0063] (B) 성분에 있어서의 1분자 중의 하이드로실릴기의 수는, 특별히 한정되지 않으며, 1개 이상이면 되나, 2개 이상이 바람직하고, 보다 바람직하게는 2~25개, 더 바람직하게는 2~20개이다.

[0064] (B) 성분으로는, 2개의 하이드로실릴기를 갖는 성분 (B-1)과, 3개 이상의 하이드로실릴기를 갖는 성분 (B-2)를 병용해도 된다. 2개의 하이드로실릴기를 갖는 성분은, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어, 직쇄상이고, 또한 하이드로실릴기를 폴리실록산 구조의 분자쇄의 양 말단 각각에 함유시키는 것이 바람직하다. 또, 3개 이상의 하이드로실릴기를 갖는 성분은, 1분자 중의 하이드로실릴기의 수가 3~25개인 것이 바람직하고, 3~20개인 것이

보다 바람직하다.

[0065] (B) 성분에 있어서, 하이드로실릴기 이외의 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 헥실기, 도데실기 등의 알킬기, 페닐기 등의 아릴기, 2-페닐에틸기, 2-페닐프로필기 등의 아랄킬기가 예시되며, 추가로 클로로메틸기, 3,3,3-트리플루오로프로필기 등의 치환 탄화수소기도 구체예로서 들 수 있다. 이들 중, 합성의 용이 등의 관점에서 메틸기가 바람직하다. 또, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기 중, 80몰% 이상이 메틸기인 것이 바람직하고, 90몰% 이상이 메틸기인 것이 보다 바람직하며, 100몰%가 메틸기인 것이 더 바람직하다. 또한, (B) 성분은, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로서, 알케닐기를 갖지 않고, 즉, (B) 성분은, 알케닐기를 함유하지 않는 것이면 된다.

[0066] (B) 성분의 오르가노폴리실록산은, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0067] (B) 성분의 25℃에 있어서의 점도의 하한은, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 10mPa·s 이상이고, 바람직하게는 40mPa·s 이상이며, 보다 바람직하게는 80mPa·s 이상이다.

[0068] (B) 성분의 25℃에 있어서의 점도의 상한은, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 2000mPa·s 이하, 바람직하게는 1500mPa·s 이하, 보다 바람직하게는 1200mPa·s 이하이다.

[0069] 또, (B) 성분의 25℃에 있어서의 점도는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 10~2000mPa·s, 바람직하게는 40~1500mPa·s, 보다 바람직하게는 80~1200mPa·s이다. (B) 성분의 점도를 상기 하한값 이상으로 함으로써, 가교 밀도가 높아지는 것을 방지하고 경화 후의 유연성을 양호하게 하기 쉬워진다. 또, 반응성이 너무 빨라지는 것을 방지하고, 부가 반응을 적절히 진행시키기 쉬워진다. 또, (B) 성분의 점도를 상한값 이하로 함으로써, 반응성이 저하하거나, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지할 수 있다. 또한, 점도를 상기 범위 내로 함으로써, (B) 성분의 반응성을 적절히 하기 쉬워진다.

[0070] (B) 성분의 함유량은, 후술하는 함유량비 H/Vi 등을 소정의 범위 내로 조정할 수 있도록 적절히 선택하면 되고, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 대해서, 예를 들어, 3~35질량%, 바람직하게는 5~30질량%, 보다 바람직하게는 8~25질량%이다.

[0071] <(C) 성분>

[0072] (C) 성분은, 열전도성 충전재이다. 본 발명의 열전도성 조성물은, 열전도성 충전재를 함유함으로써, 열전도성 조성물, 및 이 열전도성 조성물을 경화하여 이루어지는 경화물(열전도성 부재)의 열전도성이 향상된다.

[0073] 열전도성 충전재로는, 예를 들어, 금속, 금속 산화물, 금속 질화물, 금속 수산화물, 탄소 재료, 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물 등을 들 수 있다. 또, 열전도성 충전재의 형상은, 구상, 부정형의 분말 등을 들 수 있다.

[0074] 열전도성 충전재에 있어서, 금속으로는, 알루미늄, 구리, 니켈 등을 들 수 있다. 금속 산화물로는, 알루미나로 대표되는 산화알루미늄, 산화마그네슘, 산화아연 등을 들 수 있다. 금속 질화물로는 질화알루미늄 등을 예시할 수 있다. 금속 수산화물로는, 수산화알루미늄을 들 수 있다. 또한, 탄소 재료로는 구상 흑연, 다이아몬드 등을 들 수 있다. 금속 이외의 산화물, 질화물, 탄화물로는, 석영, 질화붕소, 탄화규소 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 열전도성 충전재로는, 열전도성 향상의 관점에서, 금속 산화물, 금속 질화물, 탄소 재료가 바람직하고, 이들 중에서는 금속 산화물이 보다 바람직하다. 또, 구체적으로는, 산화알루미늄, 질화알루미늄, 다이아몬드가 바람직하고, 산화알루미늄이 더 바람직하다.

[0075] 이들 열전도성 충전재는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다. 예를 들어, 열전도율을 높이는 관점에서는, 다이아몬드, 산화마그네슘 또는 질화알루미늄 중 적어도 어느 하나와, 산화알루미늄을 병용하는 것이 바람직하다. 또, 열전도율과 난연성의 밸런스의 관점에서는, 산화알루미늄과 수산화알루미늄을 병용하는 것이 바람직하다.

[0076] 열전도성 충전재의 평균 입경의 하한은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성을 높이는 관점에서 0.1㎛ 이상인 것이 바람직하고, 0.3㎛ 이상인 것이 보다 바람직하며, 0.5㎛ 이상인 것이 더 바람직하다. 열전도성 충전재의 평균 입경의 상한은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물의 유동성을 높이는 관점에서 200㎛ 이하인 것이 바람직하고, 100㎛ 이하인 것이 보다 바람직하며, 70㎛ 이하인 것이 더 바람직하다.

[0077] 또, 열전도성 충전재의 평균 입경은, 특별히 한정되지 않으나, 상기 관점을 양립하기 위해서, 0.1~200㎛인 것이 바람직하고, 0.3~100㎛인 것이 보다 바람직하며, 0.5~70㎛인 것이 더 바람직하다.

[0078] 열전도성 충전재는, 평균 입경이 0.1㎛ 이상 5㎛ 이하의 소입경 열전도성 충전재와, 평균 입경이 5㎛ 초과 200㎛ 이하의 대입경 열전도성 충전재를 병용하는 것이 바람직하다. 평균 입경이 상이한 열전도성 충전재를 사용함으로써, 충전율을 높일 수 있다. 또한, 평균 입경은, 레이저 회절·산란법에 따라 구한 열전도성 충전재의 입도 분포에 있어서, 체적 적산이 50%에서의 입경(D50)을 의미한다.

[0079] 열전도성 조성물에 있어서의 열전도성 충전재의 함유량의 하한은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 100질량부에 대해서, 바람직하게는 150질량부 이상, 보다 바람직하게는 500질량부 이상, 더 바람직하게는 1000질량부 이상, 보다 더 바람직하게는 1500질량부 이상이다.

[0080] 한편, 열전도성 조성물에 있어서의 열전도성 충전재의 함유량의 상한은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 100질량부에 대해서, 바람직하게는 4000질량부 이하, 보다 바람직하게는 3500질량부 이하, 더 바람직하게는 3200질량부 이하, 보다 더 바람직하게는 3000질량부 이하이다.

[0081] 열전도성 조성물에 있어서의 열전도성 충전재의 함유량은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 100질량부에 대해서, 바람직하게는 150~4000질량부, 보다 바람직하게는 500~3500질량부, 더 바람직하게는 1000~3200질량부, 보다 더 바람직하게는 1500~3000질량부이다.

[0082] 또, 열전도성 충전재의 체적 기준의 함유량의 하한은, 열전도성 조성물 전량을 100체적%로 한 경우에, 바람직하게는 50체적% 이상, 보다 바람직하게는 70체적% 이상, 더 바람직하게는 75체적% 이상, 보다 더 바람직하게는 80체적% 이상이다.

[0083] 또, 열전도성 충전재의 체적 기준의 함유량의 상한은, 열전도성 조성물 전량을 100체적%로 한 경우에, 바람직하게는 95체적% 이하, 보다 바람직하게는 93체적% 이하, 더 바람직하게는 92체적% 이하, 보다 더 바람직하게는 90체적% 이하이다.

[0084] 또, 열전도성 충전재의 체적 기준의 함유량은, 열전도성 조성물 전량을 100체적%로 한 경우에, 바람직하게는 50~95체적%, 보다 바람직하게는 70~93체적%, 더 바람직하게는 75~92체적%, 보다 더 바람직하게는 80~90체적%이다.

[0085] 열전도성 충전재의 함유량을 상기 하한값 이상으로 함으로써, 일정한 열전도성을 열전도성 조성물 및 그 경화물에 부여할 수 있다. 열전도성 충전재의 함유량을 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 충전재를 적절히 분산할 수 있다. 또, 열전도성 조성물의 점도가 필요 이상으로 높아지는 것도 방지할 수 있다. 또, 추가로 열전도성 충전재의 함유량을 상기 하한값~상한값의 범위로 함으로써, 일정한 열전도성을 열전도성 조성물 및 그 경화물에 부여할 수 있는 관점과, 열전도성 충전재를 적절히 분산할 수 있고, 열전도성 조성물의 점도가 필요 이상으로 높아지는 것도 방지할 수 있는 관점을 양립할 수 있다.

[0086] <(D) 성분>

[0087] (D) 성분은, 메타크릴로일기를 갖는 폴리실록산 화합물이다. 본 발명의 열전도성 조성물에 있어서, (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$는, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작다. 본 발명에서는, 열전도성 조성물이, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가 작은(D) 성분을 함유함으로써, 150℃ 이상의 고온 환경하에서도 경도 상승을 억제할 수 있다. 고온 환경하에서의 경도 상승이 억제되면, 장기 내열성이 양호해지고, 유연성이 유지되며, 예를 들어, 발열체나 방열체에 대한 박리가 발생하기 어려워져, 이들에 장기에 걸쳐 고정된 상태로 유지하기 쉬워진다. 또, (D) 성분은, 경화시에 (B) 성분에 부가 반응하므로, 경화 후에 브리드 아웃하는 것도 방지할 수 있다.

[0088] 또한, 고온 환경하에서 경도 상승이 억제되는 원리는, 확실하지 않으나, 이하와 같이 추정된다.

[0089] 본 발명의 열전도성 조성물은, 그 경화 과정에 있어서, 해당 과정의 전반에서는, 알케닐기는 메타크릴로일기보다 부가 반응 속도가 빠르기 때문에, (B) 성분 중의 하이드로실릴기와, (A) 성분 중의 알케닐기가 우선적으로 반응한다. 그리고, 부가 반응에 의해 (A) 성분과 (B) 성분에 의해 가교 구조가 형성되어 오면, (A) 성분과 (B) 성분은, 조성물 내에서 확산 또는 이동하기 어려워져, 결과적으로 완전히 반응할 수 없는 (A) 성분 중의 알케닐기와, (B) 성분 중의 하이드로실릴기(이하, 「미반응의 하이드로실릴기」라고 한다)가 잔존해 버린다. 그 후, 해당 과정의 후반에서는, (D) 성분의 메타크릴로일기는, (A) 성분 중의 알케닐기와 완전히 반응할 수 없었던, (B) 성분 중의 하이드로실릴기(이하, 「미반응의 하이드로실릴기」라고 한다)와 반응한다. 본 발명의 열전도성 조성물은, (A) 성분보다 중량 평균 분자량이 작은 (D) 성분을 함유함으로써, (A) 성분과 (B) 성분에 의해 가교

구조가 형성되고 있는 경화 과정의 후반에 있어서도, (D) 성분은 중량 평균 분자량이 작기 때문에, 가교 구조 내를 확산 또는 이동하기 쉽기 때문에, (D) 성분의 메타크릴로일기와, 미반응의 하이드로실릴기가 반응하기 쉬워진다. 따라서, 열전도성 조성물 중의 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 해당 조성물의 경화 후에는, 150℃ 이상의 환경에서 사용되어도, 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다.

[0090] 또, 이상의 경화 과정에 있어서 형성된 경화물의 경도는, 실질적으로, (A) 성분 중의 알케닐기와, (B) 성분 중의 하이드로실릴기의 반응으로 형성되는 가교 구조에 의해 확정된다. 그로 인해, (D) 성분 중의 메타크릴로일기, (B) 성분 중의 하이드로실릴기의 반응에 의한, 경화물의 경도에 대한 영향은 한정적이다. 따라서, (D) 성분의 함유량이 증감해도, 그 증감율과 비교하여, 경화물의 경도는 크게 변화하기 어려운 이점이 있다.

[0091] $M_{wa}$ 및 $M_{wd}$는, 이하 (1)에 나타내는 식을 만족하는 것이 바람직하다.

[0092] $M_{wd} \times 2.3 \leq M_{wa}$ ・・・(1)

[0093] $M_{wa}$ 및 $M_{wd}$가, 상기 (1)에 나타내는 식을 만족함으로써, (D) 성분의, 미반응의 하이드로실릴기와의 반응성을 높일 수 있고, 150℃ 이상의 고온 환경하에 있어서, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다. $M_{wa}$ 및 $M_{wd}$는, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 보다 효과적으로 억제하는 관점에서, 이하에 나타내는, 식 (1-A)를 만족하는 것이 보다 바람직하며, 식 (1-B)를 만족하는 것이 더 바람직하다.

[0094] $M_{wd} \times 2.5 \leq M_{wa}$ ・・・(1-A)

[0095] $M_{wd} \times 3.0 \leq M_{wa}$ ・・・(1-B)

[0096] 또, $M_{wa}$ 및 $M_{wd}$의 차의 상한은, 특별히 한정되지 않으나, 그들의 차를 일정 이하로 하고, (A) 성분 및 (D) 성분의 중량 평균 분자량을 각각 조정함으로써, (B) 성분 중의 하이드로실릴기와의 반응성을 적절히 하는 관점에서, 이하에 나타내는 식 (1-C)에 있어서, t가 30인 것이 바람직하고, t가 10인 것이 보다 바람직하다.

[0097] $M_{wa} \leq M_{wd} \times t$ ・・・(1-C)

[0098] 또한, 상기 열전도성 조성물이, 후술의 제1 제와 제2 제의 조합으로 이루어지는 2액형의 열전도성 조성물인 경우에는, 제1 제와 제2 제를 혼합한 전체에 있어서의 $M_{wa}$와 $M_{wd}$ 비율이 상기 관계식을 갖는 것으로 한다.

[0099] (D) 성분으로서 사용되는 폴리실록산 화합물로는, 오르가노폴리실록산이 사용된다. (D) 성분의 오르가노폴리실록산은, 직쇄상이어도 분기상이어도 되고, 직쇄상과 분기상의 혼합물이어도 되나, 직쇄상인 것이 바람직하다.

[0100] 메타크릴로일기는, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 말단, 또는 분자쇄의 도중 중 어느 하나에 함유시켜도 되나, 말단에 함유시키는 것이 보다 바람직하고, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 편말단에 함유시키는 것이 보다 바람직하다. (D) 성분은, 분자 중에 메타크릴로일기를 1개 이상 가지면 되나, 내열성이 우수한 경화물이 얻어진다고 하는 관점에서, 바람직하게는 메타크릴로일기를 1개 갖는다.

[0101] 메타크릴로일기는, 규소 원자에 직접 결합한 메타크릴로일기여도 되나, 임의의 2가의 기(예를 들어, 2가의 포화 지방족 탄화수소기, -XO-로 나타내어지는 기(단, X는 2가의 포화 지방족 탄화수소기, 또한, 2가의 포화 지방족 탄화수소기는, 예를 들어 탄소 원자수 1~18, 바람직하게는 1~6, 보다 바람직하게는 2~4이다. 또, -XO-는, 바람직하게 산소 원자가 메타크리로일기와 결합한다))나 산소 원자를 통해, 규소 원자에 결합해도 된다.

[0102] (D) 성분에 있어서, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로는, (A) 성분에서 열거한 것과 동일하나, 합성의 용이 등의 관점에서 메틸기가 바람직하다. 또, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기 중, 80몰% 이상이 메틸기인 것이 바람직하고, 90몰% 이상이 메틸기인 것이 보다 바람직하며, 100몰%가 메틸기인 것이 더 바람직하다. 또한, (D) 성분은, 규소 원자에 결합하는 잔여의 기로서, 수소 원자를 갖지 않고, 즉, (D) 성분은, 하이드로실릴기를 함유하지 않는 것이면 된다.

[0103] (D) 성분의 오르가노폴리실록산은, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0104] (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$는, 상기한 (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 작은 것이고, 상기한 (1)에 개시하는 식을 만족하는 것이 바람직하다. $M_{wd}$는, 15000 이하인 것이 바람직하고, 12000 이하인 것이 보다 바람직하며, 7000 이하인 것이 더 바람직하다. $M_{wd}$가 상기 상한값 이하임으로써, 열전도성 조성물 중에 잔존한 하이

드로실릴기와의 반응이 촉진되어, 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다. 또, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지할 수 있다.

[0105] 한편, $M_{wd}$의 하한은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물의 점도를 저감하는 관점에서, 800 이상이 바람직하고, 1500 이상이 보다 바람직하며, 3000 이상이 더 바람직하다.

[0106] 또, 열전도성 조성물 중에 잔존한 하이드로실릴기와의 반응이 촉진되어, 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있는 관점과, 열전도성 조성물의 점도를 저감하는 관점에서, $M_{wd}$는, 800~15000인 것이 바람직하고, 1500~12000인 것이 바람직하며, 3000~7000인 것이 바람직하다.

[0107] (D) 성분의 25℃에 있어서의 점도는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 예 10~2000mPa·s, 바람직하게는 50~1000mPa·s, 보다 바람직하게는 80~600mPa·s이다.

[0108] (D) 성분의 점도를 상기 하한값 이상으로 함으로써, 경화물에 있어서의 가교 밀도를 저하시키기 쉬워지고, 경화 후의 유연성을 높이기 쉬워진다. 또, 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 조성물이 고점도가 되는 것을 방지할 수 있다. 또 (D) 성분의 점도를 상기 범위 내로 조정함으로써, (D) 성분의 반응성을 적당한 것으로 조정할 수 있다.

[0109] (D) 성분의 함유량은, 후술하는 함유량비 H/Vi 등을 원하는 범위 내로 조정할 수 있도록 적절히 선택하면 되고, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 대해서, 예를 들어, 1질량% 이상, 바람직하게는 2질량% 이상, 보다 바람직하게는 3질량% 이상, 더 바람직하게는 4질량% 이상이다. 또, 예를 들어, 55질량% 이하, 바람직하게는 50질량% 이하, 보다 바람직하게는 45질량% 이하, 더 바람직하게는 30질량% 이하이다.

[0110] 또, 추가로 (D) 성분의 함유량은, 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 대해서, 예를 들어, 1~55질량%, 바람직하게는 2~50질량%, 보다 바람직하게는 3~45질량%, 더 바람직하게는 4~30질량%이다.

[0111] <(E) 성분>

[0112] 본 발명의 열전도성 조성물은, (E) 성분으로서 하이드로실릴화 촉매를 포함한다. 본 발명의 열전도성 조성물은, 하이드로실릴화 촉매를 함유함으로써, 알케닐기를 함유하는 오르가노폴리실록산과, 오르가노하이드로젠폴리실록산의 부가 반응을 촉진하여, 열전도성 조성물을 적절히 경화시킬 수 있다. 하이드로실릴화 촉매로는, 특별히 한정되지 않으나, 염화백금산, 염화백금산과 올레핀류, 비닐 실록산 또는 아세틸렌 화합물의 착화합물 등을 들 수 있다. 백금족계 경화 촉매의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량은, 부가 반응을 촉진할 수 있는 함유량이면 되고 특별히 한정되지 않으나, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 100질량부에 대해서, 예를 들어 0.001~1질량부, 바람직하게는 0.005~0.5질량부이다.

[0113] <(F) 성분>

[0114] 본 발명의 열전도성 조성물은, 추가로 (F) 성분으로서, 부가 반응기를 갖지 않는 오르가노폴리실록산을 함유하는 것이 바람직하다. 본 발명의 열전도성 조성물은, (F) 성분을 함유함으로써, 경화물에 있어서, 일정량 이상의 성분이 가교 구조에 편입되지 않아, 유연성을 향상시키기 쉬워진다. 또, 열전도성 조성물의 점도를 저하시키기 쉬워지고, 취급성을 향상시키기 쉬워진다. 또한, 부가 반응기는, 부가 반응에 의해 반응하는 관능기를 의미하고, 대표적으로는, 알케닐기, 메타크릴로일기, 아크릴로일기, 하이드로실릴기 등을 들 수 있다.

[0115] (F) 성분으로는, (F-1) 실리콘 오일, 및 (F-2) 적어도 하나의 알콕시기를 갖는 오르가노폴리실록산을 들 수 있다. (F) 성분은, (F-1) 성분 또는 (F-2) 성분 중 어느 1종을 함유하면 되나, 적어도 (F-2) 성분을 함유하는 것이 바람직하다. (F-2) 성분을 함유함으로써, 열전도성 조성물의 점도를 보다 한층 저하시키기 쉬워진다. 열전도성 조성물은, (F-2) 성분을 함유하는 경우에는, 추가로 (F-1) 성분을 함유해도 된다.

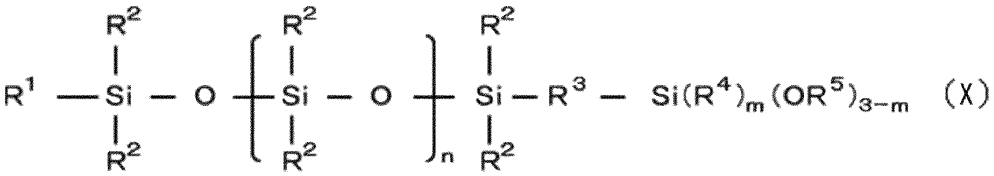
[0116] (F-1) 실리콘 오일로는, 디메틸 실리콘 오일, 페닐메틸 실리콘 오일 등의 스트레이트 실리콘 오일 외, 폴리실록산 구조를 갖는 주쇄, 주쇄에 결합하는 측쇄, 또는 주쇄의 말단에 비반응성의 유기기를 도입한, 비반응성의 변성 실리콘 오일 등을 들 수 있다. 비반응성의 유기기란, 부가 반응기를 갖지 않는 유기기이다. 비반응성의 변성 실리콘 오일로는, 예를 들어, 폴리에테르 변성 실리콘 오일, 아랄킬 변성 실리콘 오일, 플로로알킬 변성 실리콘 오일, 장쇄 알킬 변성 실리콘 오일, 고급 지방산 에스테르 변성 실리콘 오일, 고급 지방산 아미드 변성 실리콘 오일, 및 페닐 변성 실리콘 오일을 들 수 있다. 상기 중에서도, 실리콘 오일로는 스트레이트 실리콘 오일

이 바람직하고, 스트레이트 실리콘 오일 중에서도, 디메틸 실리콘 오일이 보다 바람직하다.

[0117] (F-1) 실리콘 오일은, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다.

[0118] (F-2) 성분은, 직쇄상이어도 분기상이어도 되고, 직쇄상과 분기상의 혼합물이어도 되나, 직쇄상인 것이 바람직하다. 또, (F-2) 성분으로는, 적어도 하나의 알콕시기를 갖는 오르가노폴리실록산이면 되나, 폴리실록산 구조의 분자쇄 말단에 적어도 하나의 알콕시기를 갖는 오르가노폴리실록산이 바람직하고, 편말단에만 적어도 하나의 알콕시기를 갖는 오르가노폴리실록산이 보다 바람직하다. (F-2) 성분은, 알콕시기, 특히, 말단에 알콕시기를 가짐으로써, 열전도성 충전재의 표면에 존재하는 관능기 등과 반응 내지 상호 작용하기 쉽고, 또한 폴리실록산 구조를 구비함과 더불어, 충전재의 마찰을 저감시키고, 열전도성 조성물의 점도를 저하시키기 쉬워진다고 추정된다.

[0119] (F-2) 성분은, 구체적으로는, 하기 식 (X)로 표시되는 구조를 갖는 것이 바람직하다.

[0120] 

[0121] (식 (X) 중, $R^1$, $R^2$, $R^4$, $R^5$는 각각 독립적으로 포화 탄화수소기이고, $R^3$은 산소 원자 또는 2가 탄화수소기이며, n은 15~315의 정수이고, m은 0~2의 정수이다)

[0122] 식 (X)로 표시되는 구조의 (F-2) 성분을 이용함으로써, 열전도성 조성물의 점도 저감 효과가 보다 높아진다.

[0123] 식 (X)에 있어서, $R^1$, $R^2$, $R^4$, $R^5$는 각각 독립적으로 포화 탄화수소기이다. 포화 탄화수소기로는, 예를 들어, 직쇄상 알킬기, 분기 쇄상 알킬기, 환상 알킬기 등의 알킬기, 아릴기, 아랄킬기, 할로겐화알킬기 등을 들 수 있다.

[0124] 직쇄상 알킬기로는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기, 운데실기, 도데실기, 트리데실기, 테트라데실기, 펜타데실기, 헥사데실기, 헵타데실기, 옥타데실기, 노나데실기, 에이코실기 등을 들 수 있다. 분기 쇄상 알킬기로는, 이소프로필기, tertiary butyl기, 이소부틸기, 2-메틸운데실기, 1-헥실헵틸기 등을 들 수 있다. 환상 알킬기로는, 시클로펜틸기, 시클로헥실기, 시클로도데실기 등을 들 수 있다.

[0125] 아릴기로는, 페닐기, 톨릴기, 크실릴기 등을 들 수 있다. 아랄킬기로는, 벤질기, 페네틸기, 2-(2,4,6-트리메틸페닐)프로필기 등을 들 수 있다. 할로겐화알킬기로는, 3,3,3-트리플루오로프로필기, 3-클로로프로필기 등을 들 수 있다.

[0126] 식 (X)에 있어서의 $R^1$~$R^5$, m, n은, 점도 저감 효과를 높이는 관점에서 이하와 같은 것이 바람직하다.

[0127] 식 (X)에 있어서의 $R^1$은, 바람직하게는 탄소수 1~8의 알킬기이고, 보다 바람직하게는 탄소수 2~6의 알킬기이며, 특히 바람직하게는 부틸기이다.

[0128] 식 (X)에 있어서의 $R^2$, $R^4$, $R^5$는, 각각 독립적으로, 바람직하게는 탄소수 1~8의 알킬기이고, 보다 바람직하게는 탄소수 1~4의 알킬기이며, 특히 바람직하게는 메틸기이다.

[0129] 식 (X)에 있어서의 $R^3$은 산소 원자 또는 2가 탄화수소기이고, 2가 탄화수소기인 것이 바람직하다. 2가 탄화수소기로는, 예를 들어, 메틸렌기, 에틸렌기, 프로필렌기, 부틸렌기, 메틸에틸렌기 등을 들 수 있고, 그 중에서도 에틸렌기가 바람직하다.

[0130] 식 (X)에 있어서의 n은 15~315의 정수이고, 바람직하게는 18~280의 정수이며, 보다 바람직하게는 20~220의 정수이다. 식 (X)에 있어서의 m은 0~2의 정수이고, 바람직하게는 0 또는 1이며, 보다 바람직하게는 0이다. 따라서, (F-2) 성분은, 편말단에 트리알콕시실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산인 것이 바람직하다.

[0131] (F-2) 성분은, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0132] (F) 성분의 25℃에 있어서의 점도의 하한은, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 1mPa·s 이상, 바람직하게는

5mPa·s 이상, 보다 바람직하게는 10mPa·s 이상이다.

[0133] 한편, (F) 성분의 25℃에 있어서의 점도의 상한은, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 800mPa·s 이하, 바람직하게는 250mPa·s 이하, 보다 바람직하게는 150mPa·s 이하이다.

[0134] 또, (F) 성분의 25℃에 있어서의 점도는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 1~800mPa·s, 바람직하게는 5~250mPa·s, 보다 바람직하게는 10~150mPa·s이다. (F) 성분의 점도를 상기 하한값 이상으로 함으로써, 경화 후의 브리드 아웃도 방지하기 쉬워진다. 한편, (F) 성분의 점도를 상기 상한값 이하로 함으로써, (F) 성분 자체의 점도가 너무 높아지는 일이 없고 열전도성 조성물의 점도를 저감시키면서, 경화물도 형성하기 쉬워진다. 또, (F) 성분의 점도를 상기 범위 내로 함으로써, 경화 후의 브리드 아웃도 방지하기 쉬워지고, (F) 성분에 의해서 열전도성 조성물의 점도를 효과적으로 저감시키면서, 경화물도 형성하기 쉬워진다.

[0135] (F) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량 기준으로, 예를 들어 3질량% 이상이며, 예를 들어 63질량% 이하이다. (F) 성분의 함유량을 상기 하한값 이상으로 함으로써, 열전도성 조성물로부터 얻어지는 경화물의 유연성을 높이기 쉬워지고, (F) 성분에 의해서 열전도성 조성물의 점도도 저감시키기 쉬워진다. 또, (F) 성분의 함유량을 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 조성물에 일정한 경화성을 부여할 수 있고 원하는 물성의 경화물을 얻기 쉬워지며, 경화 후의 브리드 아웃도 방지하기 쉬워진다. (F) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량의 하한은, 5질량% 이상이 바람직하고, 10질량% 이상이 보다 바람직하며, 15질량% 이상이 더 바람직하다. 한편, (F) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량의 상한은, 50질량% 이하가 바람직하고, 40질량% 이하가 보다 바람직하며, 35질량% 이하가 더 바람직하다. 또, (F) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량의 상한은, 3~63질량%인 것이 바람직하고, 5~50질량%가 보다 바람직하며, 10~40질량%가 더 바람직하고, 15~35질량%가 보다 더 바람직하다.

[0136] (F) 성분은, 상기한 바와 같이, (F-2) 성분을 함유하는 것이 바람직하다. (F-2) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량 기준으로, 2질량% 이상인 것이 바람직하고, 4질량% 이상이 보다 바람직하며, 8질량% 이상이 더 바람직하다. 한편, (F-2) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량의 상한은, 40질량% 이하인 것이 바람직하고, 30질량% 이하가 보다 바람직하며, 20질량% 이하가 더 바람직하다. 또, (F-2) 성분의 열전도성 조성물에 있어서의 함유량은, 2~40질량%인 것이 바람직하고, 4~30질량%가 보다 바람직하며, 8~20질량%가 더 바람직하다.

[0137] (F-2) 성분을 상기 하한값 이상 함유하는 열전도성 조성물은, (F) 성분 중에서도, (F-2) 성분을 일정량 이상으로 함유함으로써, 열전도성 조성물의 점도를 보다 한층 저감하기 쉬워진다. 또, (F) 성분을 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 조성물에 일정한 경화성을 부여할 수 있고 원하는 물성의 경화물을 얻기 쉬워지며, 경화 후의 브리드 아웃도 방지하기 쉬워진다.

[0138] 본 발명의 열전도성 조성물에 있어서, (A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계 함유량의 하한은, 열전도성 조성물 전량에 대해서, 바람직하게는 2질량% 이상이다. 또, 본 발명의 열전도성 조성물에 있어서, (A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계 함유량의 상한은, 열전도성 조성물 전량에 대해서, 바람직하게는 40질량% 이하이다. (A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계량을 일정량 이상으로 함으로써, 이들 성분이 바인더 수지로서의 기능을 적절히 발휘할 수 있고, 이들 성분에 의해서 열전도성 충전재를 적절히 유지할 수 있다. 또, 상기 합계 함유량을 일정량 이하로 함으로써, 열전도성 충전재를 다량으로 함유시켜 열전도성을 높이는 것이 가능해진다. 상기 관점에서(A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계 함유량의 하한은, 열전도성 조성물 전량에 대해서, 보다 바람직하게는 3질량% 이상, 더 바람직하게는 3.5질량% 이상, 보다 더 바람직하게는 4질량% 이상이다. 한편, (A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계 함유량의 상한은, 열전도성 조성물 전량에 대해서, 보다 바람직하게는 20질량% 이하, 더 바람직하게는 15질량% 이하, 보다 더 바람직하게는 10질량% 이하이다. 또, (A), (B), (D), 및 (F) 성분의 합계 함유량은, 열전도성 조성물 전량에 대해서, 보다 바람직하게는 3~20질량%, 더 바람직하게는 3.5~15질량%, 보다 더 바람직하게는 4~10질량%이다.

[0139] 본 발명의 열전도성 조성물에 있어서의 오르가노폴리실록산은, (A), (B), (D) 성분 또는 (A), (B), (D), 및 (F) 성분으로 이루어져도 되나, 본 발명의 효과를 해치지 않는 범위에서 (A), (B), (D), 및 (F) 성분 이외의 오르가노폴리실록산을 함유해도 된다. (A), (B), (D), 및 (F) 성분 이외의 오르가노폴리실록산의 함유량은, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 대해서, 예를 들어 30질량% 이하, 바람직하게는 20질량% 이하, 보다 바람직하게는 10질량% 이하, 더 바람직하게는 5질량% 이하, 가장 바람직하게는 0질량%이다.

[0140] 본 발명의 열전도성 조성물 중에는, 여러 가지의 첨가제를 함유시킬 수 있다. 첨가제로는, 예를 들어, 반응 제

어제, 분산제, 난연제, 가소제, 산화 방지제, 착색제 등을 들 수 있다. 또한, 각 첨가제는, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서는, 제1 제 및 제2 제 중 어느 한쪽에 함유시키면 되나, 양쪽 모두에 함유시켜도 된다. 첨가제는, 이들로부터 1종 또는 2종 이상을 적절히 선택하여 사용하면 된다.

[0141] <알케닐기 및 메타크릴로일기의 함유량>

[0142] 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 있어서의 알케닐기 및 메타크릴로일기의 합계 함유량(이하, 「합계 Vi+Me 함유량 1」이라고 한다)은, 0.30mmol/g 이하인 것이 바람직하다. 합계 Vi+Me 함유량 1을 0.30mmol/g 이하로 함으로써, 경화물에 있어서의 가교 밀도를 낮게 하고, 유연성을 양호하게 하기 쉬워진다. 합계 Vi+Me 함유량 1은, 보다 바람직하게는 0.25mmol/g 이하, 더 바람직하게는 0.15mmol/g 이하, 보다 더 바람직하게는 0.12mmol/g 이하이다.

[0143] 합계 Vi+Me 함유량 1은, 열전도성 조성물에 일정한 경화성 및 적당한 가교 밀도를 부여하는 관점에서, 0.02mmol/g 이상이 바람직하고, 0.04mmol/g 이상이 더 바람직하며, 0.06mmol/g 이상이 더 바람직하고, 0.08mmol/g 이상이 보다 더 바람직하다.

[0144] 또, 경화물에 있어서의 가교 밀도를 적당한 것으로 하고, 적당한 유연성으로 한다고 하는 관점에서, 합계 Vi+Me 함유량은, 0.02~0.30mmol/g가 바람직하고, 0.04~0.25mmol/g가 더 바람직하며, 0.06~0.15mmol/g가 더 바람직하고, 0.08~0.12mmol/g가 보다 더 바람직하다.

[0145] 또한, 2액형의 열전도성 조성물일 때 제1 제 및 제2 제 각각에 대해 합계 Vi+Me 함유량 1을 측정할 수 있는데, 상기한 합계 Vi+Me 함유량 1의 바람직한 범위는, 제1 제 및 제2 제를 합친 값이다.

[0146] 열전도성 조성물에 있어서의 알케닐기 및 메타크릴로일기의 합계 함유량(이하, 「합계 Vi+Me 함유량 2」라고 한다)은, 8.0μmol/g 이하인 것이 바람직하다. 합계 Vi+Me 함유량 2를 8.0μmol/g 이하로 함으로써, 경화물에 있어서의 가교 밀도를 낮게 하고, 유연성을 양호하게 하기 쉬워진다. 합계 Vi+Me 함유량 2는, 보다 바람직하게는 7.0μmol/g 이하, 더 바람직하게는 6.5μmol/g 이하, 보다 더 바람직하게는 6.0μmol/g 이하이다.

[0147] 합계 Vi+Me 함유량 2는, 열전도성 조성물에 일정한 경화성 및 적당한 가교 밀도를 부여하는 관점에서, 0.5μmol/g 이상이 바람직하고, 1.0μmol/g 이상이 더 바람직하며, 2.0μmol/g 이상이 더 바람직하고, 3.0μmol/g 이상이 보다 더 바람직하다.

[0148] 또, 경화물에 있어서의 가교 밀도를 적당한 것으로 하고, 경화물에 적당한 유연성을 부여한다고 하는 관점에서, 합계 Vi+Me 함유량 2는, 0.5~8.0μmol/g가 바람직하고, 1.0~7.0μmol/g가 더 바람직하며, 2.0~6.5μmol/g가 더 바람직하고, 3.0~6.0μmol/g가 보다 더 바람직하다.

[0149] 또한, 상기 알케닐기 및 후술하는 메타크릴로일기의 함유량은, NMR 측정 장치를 이용하여 측정되는 $^{1}$H-NMR 스펙트럼의 적분비로부터 산출한 값으로 할 수 있다.

[0150] 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 있어서의 메타크릴로일기의 함유량(이하, 「Me 함유량 1」이라고 한다)은, 0.15mmol/g 이하인 것이 바람직하다. Me 함유량 1을 0.15mmol/g 이하로 함으로써, 메타크릴로일기를 필요 이상으로 함유하는 일 없이, 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하기 쉬워진다. Me 함유량 1은, 보다 바람직하게는 0.12mmol/g 이하, 더 바람직하게는 0.08mmol/g 이하, 보다 더 바람직하게는 0.05mmol/g 이하이다.

[0151] Me 함유량 1은, 열전도성 조성물 중의 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 충분히 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하는 관점에서, 0.002mmol/g 이상이 바람직하고, 0.004mmol/g 이상이 더 바람직하며, 0.006mmol/g 이상이 더 바람직하고, 0.008mmol/g 이상이 보다 더 바람직하다.

[0152] 또, 메타크릴로일기를 필요 이상으로 함유하는 일 없이, 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하기 쉬워지는 관점에서, 합계 Me 함유량 1은, 0.002~0.15mmol/g가 바람직하고, 0.004~0.12mmol/g가 더 바람직하며, 0.006~0.08mmol/g가 더 바람직하고, 0.008~0.05mmol/g가 보다 더 바람직하다.

[0153] 또한, 2액형의 열전도성 조성물의 경우에는, 제1 제 및 제2 제 각각에 대해 합계 Me 함유량 1을 측정할 수 있는데, 상기한 합계 Me 함유량 1의 바람직한 범위는, 제1 제 및 제2 제를 합친 값이다.

[0154] 열전도성 조성물에 있어서의 메타크릴로일기의 함유량(이하, 「Me 함유량 2」이라고 한다)은, 4.0μmol/g 이하인 것이 바람직하다. Me 함유량 2를 4.0μmol/g 이하로 함으로써, 메타크릴로일기를 필요 이상으로 함유하는

일 없이, 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하기 쉬워진다. Me 함유량 2는, 보다 바람직하게는 3.5μmol/g 이하, 더 바람직하게는 3.0μmol/g 이하, 보다 더 바람직하게는 2.5μmol/g 이하이다.

[0155] Me 함유량 2는, 열전도성 조성물 중의 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 충분히 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하는 관점에서, 0.05μmol/g 이상이 바람직하고, 0.1μmol/g 이상이 더 바람직하며, 0.2μmol/g 이상이 더 바람직하고, 0.3μmol/g 이상이 보다 더 바람직하다.

[0156] 또, 메타크릴로일기를 필요 이상으로 함유하는 일 없이, 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하기 쉬워지는 관점에서, 합계 Me 함유량 2는, 0.05~4.0μmol/g가 바람직하고, 0.1~3.5μmol/g가 더 바람직하며, 0.2~3.0μmol/g가 더 바람직하고, 0.3~2.5μmol/g가 보다 더 바람직하다.

[0157] 또한, 열전도성 조성물에 함유되는 오르가노폴리실록산 전량에 있어서의 알케닐기의 합계 함유량(이하, 「합계 Vi 함유량 1」이라고 하고, 열전도성 조성물에 있어서의 알케닐기의 합계 함유량(이하, 「합계 Vi 함유량 2」라고도 한다)으로 했을 때, 「Me 함유량 1」과 「합계 Vi 함유량 1」의 합계가 「합계 Vi+Me 함유량 1」이며, 「Me 함유량 2」와 「합계 Vi 함유량 2」의 합계가 「합계 Vi+Me 함유량 2」이다.

[0158] Me 함유량 2, 및 합계 Vi 함유량 2는, 몰 기준으로 하기 (2) 및 (3)식을 만족하는 것이 바람직하다.

[0159] $0.10 \leq \alpha \leq 0.60$ ···(2)

[0160] α=Me 함유량 2/(합계 Vi+Me 함유량 2) ···(3)

[0161] 상기 (2) 및 (3) 식에 나타내는 바와 같이, 합계 Vi+Me 함유량에서 차지하는 Me 함유량의 비율을 일정량 이상으로 함으로써, 열전도성 조성물 중의 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 가교점이 너무 조밀해지는 것을 방지하면서, 고온 환경하에 있어서, 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다. Me 함유량은, 합계 Vi+Me 함유량에 대해서, 0.15 이상이 보다 바람직하며, 0. 19이상이 더 바람직하다. 또, 메타크릴로일기를 필요 이상으로 함유하는 일 없이, 미반응의 하이드로실릴기의 잔량을 감소시키고, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하는 관점에서, Me 함유량은, 합계 Vi+Me 함유량에 대해서, 0.55 이하가 보다 바람직하며, 0.50 이하가 더 바람직하다.

[0162] 또, Me 함유량은, 합계 Vi+Me 함유량에 대해서, 0.15~0.55인 것이 보다 바람직하며, 0.19~0.50 이상이 더 바람직하다.

[0163] 또, 열전도성 조성물에 있어서, (A) 성분(즉, 알케닐기를 갖는 오르가노폴리실록산)의 편말단에만 알케닐기를 갖는 (A) 성분에 함유되는 알케닐기의 함유량(이하, 「DVi 함유량」이라고 한다)은, 열전도성 조성물에 일정한 경화성을 부여하는 관점에서, 합계 Vi+Me 함유량에 대해서, 0.17 이하가 바람직하고, 0.15 이하가 보다 바람직하며, 0.10 이하가 더 바람직하고, 0.05 이하가 보다 더 바람직하다. 합계 Vi+Me 함유량에 대한 DVi 함유량은, 경화물에 적절한 가교 구조를 부여하는 관점에서는, 낮으면 낮을수록 좋고, 0 이상이면 된다.

[0164] <함유량비 H/Vi>

[0165] 열전도성 조성물에 있어서의, 몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 및 알케닐기의 함유량 Vi는, 이하의 식 (4)의 관계를 만족하는 것이 바람직하다.

[0166] $0.8 \leq H/Vi \leq 1.5$ ····(4)

[0167] 본 발명의 열전도성 조성물은, (D) 성분을 포함하기 때문에, 이상의 식 (4)의 관계를 만족함으로써, 열전도성 조성물의 경화성을 양호하게 할 수 있고, 예를 들어 열전도성 조성물을 상온에서도 적당히 경화시킬 수 있다. 또, 150℃ 이상의 고온 환경에 있어서도, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제하는 효과가 높아진다. 미반응의 알케닐기의 양을 줄인다고 하는 관점에서는, 상기 H/Vi는, 0.95 이상인 것이 보다 바람직하며, 1.05 이상인 것이 더 바람직하다. 한편, 미반응의 하이드로실릴기의 양을 줄인다고 하는 관점에서는, 상기 H/Vi는, 1.40 이하인 것이 보다 바람직하며, 1.20 이하인 것이 더 바람직하다. 또, 미반응의 부가 반응기를 줄여 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제하는 관점에서, H/Vi는, 0.95~1.40인 것이 보다 바람직하며, 1.05~1.20이 더 바람직하다.

[0168] 또한, H/Vi의 값에 상관없이, 경화 과정의 전반에서는, 미반응의 알케닐기와 미반응의 하이드로실릴기가 잔존해 버리기 때문에, H/Vi가 1 이하인 경우에도, 경화 과정의 후반에 있어서 미반응의 하이드로실릴기와 (D) 성분을

반응시킴으로써, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다. 한편, 미반응의 알케닐기의 잔존량이 문제가 되는 경우는, 알케닐기의 함유량 Vi보다 하이드로실릴기의 함유량 H량을 많게 함으로써, 미반응의 알케닐기의 양을 줄이고, 추가로 미반응의 하이드로실릴기를, 경화 과정의 후반에 있어서 (D) 성분과 반응시키고 있음으로써, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다.

[0169] <함유량비 H/(Vi+Me)>

[0170] 열전도성 조성물에 있어서의, 몰 기준의 하이드로실릴기의 함유량 H, 알케닐기의 함유량 Vi, 및 메타크릴로일기의 함유량 Me는, 이하의 식 (5)의 관계를 만족하는 것이 바람직하다.

[0171] $0.4 \leq H/(Vi+Me) \leq 1.2$ ····(5)

[0172] 본 발명의 열전도성 조성물은, 이상의 식 (5)의 관계를 만족함으로써, 열전도성 조성물의 경화성을 양호하게 할 수 있고, 예를 들어 열전도성 조성물을 상온에서도 적당히 경화시킬 수 있다. 또, 150℃ 이상의 고온 환경에 있어서도, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제하는 효과가 높아진다.

[0173] 또, 경화성의 관점에서, H/(Vi+Me)는, 0.50 이상인 것이 보다 바람직하며, 0.55 이상이 더 바람직하다. 또, 경도 상승을 억제하는 관점에서, H/(Vi+Me)는, 1.05 이하인 것이 보다 바람직하며, 0.95 이하인 것이 더 바람직하다.

[0174] 또한 추가로, 경화성 및 경도 상승 억제의 관점에서, H/(Vi+Me)는, 0.50~1.05인 것이 보다 바람직하며, 0.55~0.95가 더 바람직하다.

[0175] 또한, 함유량비 H/Vi, 및 함유량비 H/(Vi+Me)는, 배합되는 각 성분의 관능기량과, 각 성분의 함유량으로부터 산출할 수 있다. 배합되는 각 성분의 관능기량은, 상기한 바와 같이 $^{1}$H-NMR 스펙트럼의 적분비로부터 산출할 수 있다.

[0176] 또, 하기 식 (5-2)의 관계를 만족함으로써, 열전도성 조성물 중에 메타크릴로일기가 함유되게 되어, 고온 환경하에 있어서, 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제할 수 있다.

[0177] $H/(Vi+Me) < H/Vi$ ···(5-2)

[0178] <타입 E 경도>

[0179] 본 발명의 열전도성 조성물은, 25℃에서 24시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E1)과, 25℃에서 24시간 방치하고, 또한 150℃에서 250시간 방치한 후의 타입 E 경도 (E2)의 관계가, 하기 (6)식을 만족하는 것이 바람직하다.

[0180] $E2/E1 \leq 1.5$ ···(6)

[0181] E2/E1이 1.5 이하이면, 경화 후의 경도의 변화가 너무 커지지 않기 때문에, 내열성이 양호해지고, 예를 들어, 발열체나 방열체 등에 대한 박리를 발생시키기 어려워져, 안정된 고정이 가능해진다. 이러한 관점에서, E2/E1은, 1.45 이하인 것이 보다 바람직하다. 한편, E2/E1의 하한은, 특별히 한정되지 않으나, 실용적으로는 예를 들어 1 이상, 바람직하게는 1.15 이상이다.

[0182] 또한, 본 발명에 있어서의 타입 E 경도는 일본 공업 규격인 JIS K 6253의 타입 E의 경도계에 의해서 측정되는 값이다.

[0183] 열전도성 조성물은, 타입 E 경도 (E1)이, 40 이상인 것이 바람직하고, 45 이상인 것이 보다 바람직하며, 50 이상인 것이 더 바람직하다. 열전도성 조성물은, 타입 E 경도 (E1)을 일정값 이상으로 함으로써, 상온에 방치하는 것만으로 일정 경도를 갖는 경화물을 얻을 수 있다. 그로 인해, 예를 들어, 상온 경화 후의 상태에서, 경화물의 상부에 설치한 부재의 중량을 충분히 지지할 수 있고, 사용시에 두께 방향으로 압축하는 것을 방지할 수 있다. 또, 열전도성 조성물의 타입 E 경도 (E1)은, 65 이하인 것이 바람직하고, 62 이하가 보다 바람직하며, 60 이하가 더 바람직하다. 타입 E 경도 (E1)을 상기 상한값 이하로 함으로써, 열전도성 조성물의 경화물의 유연성을 향상시킬 수 있다.

[0184] 열전도성 조성물은, 타입 E 경도 (E2)가, 하기 (7-2)식을 만족하는 것임이 바람직하다.

[0185] $E2 < 80$ ···(7-2)

[0186] 또한, 열전도성 조성물은, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서는, 제1 제와 제2 제를 혼합한 후에 25℃에서 24시간 방치하면 된다. 다른 경도의 측정에 있어서도 동일하다.

[0187] 상기의 타입 E 경도 (E2)가, 80 미만이 되면, 150℃ 이상의 환경하에 있어서 경화물의 유연성을 유지하기 쉽고, 진동 등의 응력을 완화하기 쉽기 때문에 발열체나 방열체로부터 박리가 발생하기 어려워진다. 그로 인해, 열전도성 조성물의 경화물을 150℃ 이상의 환경하에서 방열 갭 필러(열전도성 부재)로서 사용하면, 발열체나 방열체 등에 대한 박리의 발생, 열저항의 상승을 방지할 수 있어, 신뢰성을 유지할 수 있다. 타입 E 경도 (E2)는, 유연성 및 신뢰성의 관점에서, 75 이하가 바람직하고, 73 이하가 보다 바람직하며, 70 이하가 더 바람직하다. 또한, 유연성이 높아지면, 완충성을 발휘하기 쉬워지고, 진동이 발생하는 환경하에 있어서 적절하게 이용할 수 있다.

[0188] 또, 타입 E 경도 (E2)는, 특별히 한정되지 않으나, 예를 들어 30 이상, 바람직하게는 40 이상, 보다 바람직하게는 50 이상이다. 타입 E 경도 (E2)를 일정값 이상으로 함으로써, 150℃ 이상의 환경하에 있어서 경화물의 유연성을 유지하기 쉽게 할 수 있고, 추가로 예를 들어 경화물의 상부에 설치한 부재의 중량을 충분히 지지할 수 있으며, 사용시에 경화물이 두께 방향으로 너무 압축되는 것을 방지할 수 있다.

[0189] 25℃에서 24시간 방치하고, 추가로 150℃에서 1000시간 방치한 후의 타입 E 경도를 E3으로 하면, E3-E2의 값으로 나타내어지는 경도 변화는, 장기간 150℃에서 가열되었을 때의 경도 변화를 나타낸다. E3-E2의 값은, 낮으면 낮을수록 150℃ 이상의 온도에서 장기간 사용해도 성능 변화가 적고, 장기 내열성이 양호한 것을 의미한다. E3-E2의 값으로 나타내어지는 경도 변화는, 장기 내열성의 관점에서, 6 이하인 것이 바람직하고, 4 이하인 것이 보다 바람직하며, 2 이하인 것이 바람직하다. 또한, E3-E2의 값으로 나타내어지는 경도 변화는, 특별히 한정되지 않으나, 통상은 0 이상이다.

[0190] <하이드로실릴기의 농도비>

[0191] 본 발명의 일실시 형태에 따르는 열전도성 조성물에 있어서, (B) 성분에 포함되는 (B-1) 성분 및 (B-2) 성분은, 하기 (1-2)식의 관계를 만족하도록 함유되는 것이 바람직하다.

[0192] $b1/(b1+b2)>0.45$ ···(1-2)

[0193] 식 (1-2)에 있어서, b1은 (B-1) 성분이 갖는 하이드로실릴기의 농도, b2는 (B-2) 성분이 갖는 하이드로실릴기의 농도이다. 또한, 여기서 말하는 하이드로실릴기의 농도란, 열전도성 조성물에 있어서의 하이드로실릴기의 농도이다. 단, 후술하는 2액형의 열전도성 조성물에 있어서는, 오르가노하이드로젠폴리실록산은, 제1 제에 함유되지 않고, 제2 제에만 함유된다. 따라서, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서는, 제2 제에 있어서의 하이드로실릴기의 농도를 의미하는 것이라고도 할 수 있다. 즉, (B-1) 성분 및 (B-2) 성분은, (1-2)식의 관계를 만족하도록 제2 제에 함유되면 된다.

[0194] 본 조성물에 있어서, $b1/(b1+b2)$가 0.45보다 커지면, 가교점이 성기게 되기 쉽고, 150℃ 이상의 환경하에 있어서 경화물의 유연성을 양호하게 유지하기 쉬워진다. 그로 인해, 열전도성 조성물의 경화물을 150℃ 이상의 환경하에서 방열 갭 필러로서 사용하면, 발열체나 방열체 등에 대한 박리가 발생하기 어려워져, 열저항이 상승하는 문제점이 발생하기 어려워져, 신뢰성이 향상된다. 또, 유연성이 높아짐으로써, 예를 들어 두껍게 한 경우 등에는, 완충성을 발휘할 수 있으며, 진동이 발생하는 환경하에 있어서 적절하게 이용할 수 있다.

[0195] 가교점을 성기게 하여 신뢰성이나 유연성을 보다 한층 양호하게 하는 관점에서 $b1/(b+c)$는, 0.48 이상이 바람직하고, 0.50 이상이 보다 바람직하며, 0.52 이상이 더 바람직하다.

[0196] $b1/(b1+b2)$는, 0.85 미만인 것이 바람직하다. $b1/(b1+b2)$를 0.85 미만으로 함으로써, 경화물에 적당한 가교 밀도로 가교 구조를 도입하기 쉬워진다. 그로 인해, 장기간에 걸쳐 고온에서 가열되어도 경도를 일정한 값에 유지하기 쉬워지고, 장기 내열성 등을 양호하게 하기 쉬워진다. 이상의 관점에서, $b1/(b1+b2)$는, 0.75 이하인 것이 보다 바람직하며, 0.70 이하인 것이 더 바람직하고, 0.63 이하인 것이 보다 더 바람직하다.

[0197] 본 발명에서는, 상기 식 (1-1)의 요건 및 식 (1-2)의 요건 중 어느 한쪽을 만족하면 되나, 양쪽 모두를 만족해도 된다.

[0198] 또한, (B-1) 성분 및 (B-2) 성분의 하이드로실릴기의 농도는, NMR 측정 장치를 이용하여 측정되는 $^{1}$H-NMR 스펙트럼의 적분비로부터 산출한 값으로 할 수 있다.

[0199] <라만 강도비 p2/p1>

[0200] 본 발명의 일실시 형태에 있어서 열전도성 조성물은, 라만 분광 스펙트럼에 있어서의 2160$cm^{-1}$의 라만 강도

p1과, 2130$cm^{-1}$의 라만 강도 p2가, 하기 (1-1)식의 관계를 만족하는 것이 바람직하다.

[0201] $p2/p1 > 3.00 \quad \cdots (1\text{-}1)$

[0202] 라만 분광 스펙트럼에 있어서의 2160$cm^{-1}$의 라만 강도 p1은, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 도중에 함유되는 하이드로실릴기에 유래하는 피크 파장의 라만 강도이다. 라만 분광 스펙트럼에 있어서의 2130$cm^{-1}$의 라만 강도 p2는, 폴리실록산 구조의 분자쇄의 말단에 함유되는 하이드로실릴기에 유래하는 피크 파장의 라만 강도이다. 따라서, p2/p1은, 분자쇄의 도중에 함유되는 하이드로실릴기에 대한, 말단 하이드로실릴기의 양을 나타내는 지표라고 할 수 있다.

[0203] p2/p1을 3.0보다 크게 함으로써, 분자쇄의 말단에 함유되는 하이드로실릴기의 양이 많아지는 한편, 분자쇄의 도중에 함유되는 하이드로실릴기의 양이 적어져, 가교점이 성기게 되기 쉽고, 150℃ 이상의 환경하에서도 경화물의 경도 상승을 억제하기 쉬워진다.

[0204] 가교점을 성기게 하여 신뢰성, 유연성을 보다 한층 양호하게 하는 관점에서, p2/p1은, 3.10 이상이 바람직하고, 3.20 이상이 보다 바람직하며, 3.30 이상이 더 바람직하다.

[0205] 또, p2/p1은, 5.5 미만인 것이 바람직하다. p2/p1을 5.5 미만으로 함으로써, 경화물에 적당한 가교 밀도로 3차원 가교 구조를 도입하기 쉬워진다. 그로 인해, 장기간에 걸쳐 고온에서 가열되어도 경도를 일정한 값으로 유지하기 쉬워지고, 장기 내열성 등을 양호하게 하기 쉬워진다. 이상의 관점에서, p2/p1은, 4.5 미만인 것이 보다 바람직하고, 4.2 이하인 것이 더 바람직하며, 4.0 이하인 것이 보다 더 바람직하다.

[0206] ＜라만 강도비 H/(Vi＋Me)

[0207] 라만 분광 스펙트럼에 있어서의, 알케닐기 및 메타크릴로일기 유래의 피크의 강도에 대한, 하이드로실릴기 유래의 피크의 강도의 비(「라만 강도비 H/(Vi＋Me)」라고 한다)는, 경화성의 관점에서, 3.00 이상인 것이 바람직하고, 4.00 이상인 것이 보다 바람직하며, 5.00 이상인 것이 더 바람직하다. 한편, 경도 상승을 억제하는 관점에서, 상기 라만 강도비 H/(Vi＋Me)는, 12.00 이하인 것이 바람직하고, 10.00 이하인 것이 보다 바람직하며, 9.00 이하인 것이 더 바람직하다.

[0208] 또, 라만 강도비 H/(Vi＋Me)는, 3.00~12.00인 것이 바람직하고, 4.00~10.00인 것이 보다 바람직하며, 5.00~9.00인 것이 더 바람직하다. 라만 강도비 H/(Vi＋Me)를 상기 범위 내로 함으로써, 하이드로실릴기의 수와, 알케닐기 및 메타크릴로일기의 합계 수가 서로 비슷하고, (A), (B), 및 (D) 성분을 적절히 경화시키기 쉬워지며, 예를 들어, 상온하에서도 적절히 경화가 진행되기 쉬워진다. 또, 경화 후의 고온 환경하에 있어서의 경도 상승을 억제하기 쉬워진다.

[0209] ＜라만 강도비 H/Vi＞

[0210] 라만 분광 스펙트럼에 있어서의, 알케닐기 유래의 피크의 강도에 대한, 하이드로실릴기 유래의 피크의 강도의 비(「라만 강도비 H/Vi」라고도 한다)는, 미반응의 알케닐기의 양을 줄인다고 하는 관점에서는, 7.00 이상인 것이 바람직하고, 8.00 이상인 것이 보다 바람직하며, 9.50 이상인 것이 더 바람직하다. 한편, 미반응의 하이드로실릴기의 양을 줄인다고 하는 관점에서는, 상기 라만 강도비 H/Vi는, 14.00 이하인 것이 바람직하고, 12.50 이하인 것이 보다 바람직하며, 11.00 이하인 것이 더 바람직하다.

[0211] 또, 미반응의 부가 반응기를 줄여 열전도성 조성물의 경화물의 경도 상승을 억제하는 관점에서, 라만 강도비 H/Vi는, 7.00~14.00인 것이 바람직하고, 8.00~12.50인 것이 보다 바람직하며, 9.50~11.00인 것이 더 바람직하다.

[0212] 또한, 상기 라만 강도비 H/Vi는 라만 강도비 H/(Vi＋Me)보다 큰 값이 된다.

[0213] 또한, 라만 분광 스펙트럼의 측정은, 열전도성 조성물에 대해서, 적어도 오르가노폴리실록산과 열전도성 충전재를 분리하고, 오르가노폴리실록산에 대해서 라만 측정을 하면 된다. 이 때, 오르가노폴리실록산에는, 측정에 영향을 미치지 않는 범위이면, 오르가노폴리실록산 이외의 성분이 혼합되어 있어도 된다. 따라서, 통상은, 원심 분리기 등에 의해, 액상 성분과 고체 성분을 분리시키고, 액상 성분에 대해 라만 분광 스펙트럼을 측정하면 된다.

[0214] 또, 2액형의 열전도성 조성물에 대해서는, 제1 제 및 제2 제에 대해 별도로 라만 측정을 행하여, 라만 강도비 p2/p1, H/Vi, H/(Vi＋Me)를 산출하면 되나, 라만 강도비 p2/p1은, 제2 제의 라만 분광 스펙트럼으로부터 산출하

면 된다. 오르가노하이드로젠폴리실록산은, 제1 제에 함유되지 않고, 제2 제에만 함유되기 때문이다. 라만 측정의 측정 조건은, 이하에 서술하는 바와 같다. 또한, 알케닐기는 대표적으로는 비닐기이며, 상기한 라만 강도비 H/Vi는, 전형적으로는, 후술하는 바와 같이, 하이드로실릴기/비닐기비의 지표를 산출함으로써 구할 수 있고, 상기한 라만 강도비 H/Vi는, 전형적으로는, 후술하는 바와 같이, 하이드로실릴기/(비닐기＋메타크릴로일기)비의 지표를 산출함으로써 구할 수 있다.

[0215] 이하에 열전도성 조성물이 2액형이고, 또한 알케닐기가 비닐기인 경우의 라만 측정의 구체적인 예에 대해 서술하는데, 라만 측정법은, 이하의 방법에 한정되지 않는다.

[0216] 제1 제 및 제2 제에 대해, 각각 원심 분리기를 이용하여, 액체 성분과 고체 성분(열전도성 충전재)을 분리한다. 그리고 분리한 액체 성분에 대해서, 각각의 라만 스펙트럼을 측정한다. 라만 스펙트럼의 측정 조건은, 예를 들어, 이하를 채용한다.

[0217] 장치 : RENISHAW사 제조 inVia 라만 마이크로스코프 QONTOR

[0218] 스펙트럼 범위: 300~2500$cm^{-1}$

[0219] 레이저광 파장 : 532nm, 100mW(10%로 감광)

[0220] 그레이팅 : 1800line/mm

[0221] 조사 시간 : 1.0s

[0222] 적산 : 100

[0223] 대물렌즈 : 50배

[0224] 라만 강도비 p2/p1은, 하이드로실릴기를 포함하는 제2 제로부터 얻어진 라만 분광 스펙트럼에 대해서, 파수 2130$cm^{-1}$의 라만 강도 p2와 파수 2160$cm^{-1}$의 라만 강도 p1로부터 어림잡는다.

[0225] 라만 강도비 H/Vi(알케닐기 유래의 피크의 강도에 대한, 하이드로실릴기 유래의 피크의 강도의 비)는, 이하와 같이 산출한다. 즉 제1 제의 라만 스펙트럼과 제2 제의 라만 스펙트럼에 대해서, 우선, 파수 490$cm^{-1}$에 나타나는 Si-O-Si의 피크의 면적 C, 파수 1600$cm^{-1}$에 나타나는 비닐기의 피크의 면적 D, 및, 파수 2130~2160$cm^{-1}$에 나타나는 하이드로실릴기의 피크의 면적 F를 산출한다. 이어서 면적 C를 기준으로 이하의 계산을 행하여, 측정 마다의 강도의 오차를 보정하여 규격화한다.

[0226] 면적 D/면적 C=면적 비율 D1

[0227] 면적 F/면적 C=면적 비율 F1

[0228] 계속해서, 제1 제의 면적 비율 D1에 제1 제에 포함되는 액체 성분의 질량 비율을 곱한 값과, 제2 제의 면적 비율 D1, F1에 제2 제의 액체 성분에 포함되는 질량 비율을 곱한 값을 합계하여 열전도성 조성물에 있어서의 D1, F1을 어림잡는다.

[0229] 그리고, 하기 식에 의해, 하이드로실릴기/비닐기비의 지표를 산출함으로써 구한다.

[0230] 라만 강도비 H/Vi=면적 비율 F1/면적 비율 D1

[0231] 또, 라만 강도비 H/(Vi+Me)(알케닐기 및 메타크릴로일기 유래의 피크의 강도에 대한, 하이드로실릴기 유래의 피크의 강도의 비)는, 이하와 같이 산출한다. 즉 제1 제의 라만 스펙트럼과 제2 제의 라만 스펙트럼에 대해서, 우선, 파수 490$cm^{-1}$에 나타나는 Si-O-Si의 피크의 면적 C, 파수 1600$cm^{-1}$에 나타나는 비닐기의 피크의 면적 D, 파수 1640$cm^{-1}$에 나타나는 메타크릴로일기의 피크의 면적 E, 및, 파수 2130~2160$cm^{-1}$에 나타나는 하이드로실릴기의 피크의 면적 F를 산출한다. 이어서 면적 C를 기준으로 이하의 계산을 행하여, 측정 마다의 강도의 오차를 보정하여 규격화한다.

[0232] 면적 D/면적 C=면적 비율 D1

[0233] 면적 E/면적 C=면적 비율 E1

[0234] 면적 F/면적 C=면적 비율 F1

[0235] 계속해서, 제1 제의 면적 비율 D1, E1에 제1 제에 포함되는 액체 성분의 질량 비율을 곱한 값과, 제2 제의 면적 비율 D1, E1, F1에 제2 제의 액체 성분에 포함되는 질량 비율을 곱한 값을 합계하여 열전도성 조성물에 있어서의 D1, E1, F1을 어림잡는다.

[0236] 그리고, 하기 식에 의해, 하이드로실릴기/(비닐기+메타크릴로일기)비의 지표를 산출함으로써 구한다. 또한, 비닐기와 메타크릴로일기는 라만 산란 강도의 차이가 있기 때문에, 보정 계수로서 0.5를 곱해 계산하는 것으로 한다.

[0237] 라만 강도비 H/(Vi+Me)=면적 비율 F1/[면적 비율 D1+(면적 비율 E1×0.5)]

[0238] 또한, 열전도성 조성물에 있어서, 비닐기 이외의 알케닐기를 갖는 경우에도, 비닐기 이외의 알케닐기 유래의 피크 강도를 동일하게 산출하고, 라만 강도비 H/Vi 및 라만 강도비 H/(Vi+Me)를 산출하면 된다.

[0239] <2액형의 열전도성 조성물>

[0240] 본 발명의 열전도성 조성물은, 1액형이어도 되고, 제1 제와 제2 제를 조합하여 이루어지는 2액형이어도 되나, 보존 안정성의 관점에서, 2액형이 바람직하다. 2액형은, 사용시에 제1 제와 제2 제를 혼합시켜 열전도성 조성물을 얻는 것이다.

[0241] 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1 제와 제2 제의 질량비(제2 제/제1 제)는, 1 또는 1에 가까운 값인 것이 바람직하고, 0.8~1.2가 바람직하며, 0.9~1.1이 보다 바람직하고, 0.95~1.05가 보다 바람직하다. 이와 같이, 제1 제와 제2 제의 질량비를 1 또는 1에 가까운 값으로 함으로써, 열전도성 조성물의 조제가 용이해진다.

[0242] 또한, 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1 제와 제2 제는 혼합시켜 열전도성 조성물을 얻는 방법은 한정되지 않으나, 예를 들어 스태틱 믹서, 교반 날개를 갖는 믹서, 진동 교반기나 자전 공전 믹서 등을 이용할 수 있다.

[0243] 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1 제는, 알케닐기 또는 메타크릴로일기 중 어느 한쪽을 갖는 오르가노폴리실록산(알케닐기 함유 오르가노폴리실록산)과, (E) 하이드로실릴화 촉매를 포함하는데, 오르가노하이드로젠폴리실록산을 함유하지 않는다. 또, 제2 제는, 오르가노하이드로젠폴리실록산을 함유하는데, (E) 하이드로실릴화 촉매를 함유하지 않는다. 또한, 제1 제 및 제2 제 중 적어도 한쪽에 (C) 열전도성 충전재가 함유된다. 또, 제1 제 및 제2 제 중 어느 것에도 (C) 열전도성 충전재가 함유되는 것이 바람직하다.

[0244] 보다 구체적으로는, 제1 제는, (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나와, (E) 성분을 포함하는데, (B) 성분을 함유하지 않는다. 한편, 제2 제는, (B) 성분을 포함하는데, (E) 성분을 함유하지 않는다. 또, 제1 제 또는 제2 제 중 어느 한쪽에 (C) 성분을 포함한다.

[0245] 또, 제1 제는, (A) 성분 및 (D) 성분 중 적어도 어느 하나와, (C) 성분과, (E) 성분을 포함하는데, (B) 성분을 함유하지 않는다. 한편, 제2 제는, (B) 성분과, (C) 성분을 포함하는데, (E) 성분을 함유하지 않는 것이 보다 바람직하다.

[0246] 이상의 구성을 갖는 제1 제는, 부가 반응을 촉진하는 (E) 하이드로실릴화 촉매를 함유하는데, 오르가노하이드로젠폴리실록산을 함유하지 않으므로, 제2 제와 혼합하기 전에 부가 반응이 진행되는 것을 방지할 수 있다. 제2 제는, 오르가노하이드로젠폴리실록산을 함유하는데, 부가 반응을 촉진하는 (E) 하이드로실릴화 촉매를 함유하지 않으므로, 제1 제와 혼합하기 전에 부가 반응이 진행되는 것을 방지할 수 있다.

[0247] 열전도성 조성물을 구성하는 알케닐기 또는 메타크릴로일기 중 어느 하나를 함유하는 오르가노폴리실록산은, 모두가, 제1 제에 함유되어도 되나, 일부가 제1 제에 함유되고, 나머지가 제2 제에 함유되는 것이 바람직하다. 보다 구체적으로는, 열전도성 조성물에 있어서의 (A) 및 (D) 성분은, 모두가 제1 제에 함유되어도 되나, (A) 및 (D) 성분의 일부가 제1 제에 함유되고, (A) 및 (D) 성분의 나머지가 제2 제에 함유되는 것이 바람직하다.

[0248] 이와 같이, 알케닐기 또는 메타크릴로일기 중 어느 하나를 함유하는 오르가노폴리실록산을 제1 제와, 제2 제로 분할하여 함유시킴으로써, 제1 제 및 제2 제의 점도를 원하는 범위로 조정하기 쉬워지고, 또, 제1 제와 제2 제의 질량비를 1 또는 1에 가까운 값으로 하기 쉬워진다. 또한, 제2 제는, 오르가노하이드로젠폴리실록산도 함유하는데, (E) 백금족계 경화 촉매를 함유하지 않으므로, 알케닐기 또는 메타크릴로일기 중 어느 하나를 함유하는 오르가노폴리실록산을 함유해도, 보관시 등에 있어서, 부가 반응을 실질적으로 진행시키지 않도록 할 수 있다. 또한, 제2 제에는, 반응 제어제를 함유시켜, 제2 제에 있어서 반응이 진행되는 것을 방지해도 된다.

[0249] 또한, 알케닐기 또는 메타크릴로일기 중 어느 하나를 함유하는 오르가노폴리실록산은, 제2 제에 함유되는 경우

에는, 오르가노하이드로젠폴리실록산과의 혼합물로서 제2 제에 배합되어도 되고, 예를 들어, (A) 성분은 (B) 성분과의 혼합물로서, 제2 제에 배합되어도 된다.

[0250] 열전도성 조성물을 구성하는 오르가노하이드로젠폴리실록산은, 모두가 제2 제에 함유되고, 제1 제에는 함유되지 않는다.

[0251] (C) 열전도성 충전재는, 열전도성 조성물을 형성하기 위한 제 1 제와 제2 제 중 어느 한쪽에 함유되면 되는데, 상기한 바와 같이 제1 제와 제2 제 양쪽 모두에 함유되는 것이 바람직하고, 그 중에서도 대체로 균등하게 함유되는 것이 보다 바람직하다. 구체적으로는, 제1 제에 있어서의 (C) 열전도성 충전재의 함유량에 대한, 제2 제에 있어서의 (E) 열전도성 충전재의 함유량의 비(질량비)는, 0.67~1.5가 바람직하고, 0.83~1.2가 보다 바람직하며, 0.91~1.1이 더 바람직하다. (C) 열전도성 충전재를 제1 제와 제2 제에 대체로 균등하게 배분함으로써, 제1 제와 제2 제의 점도차를 작게 하기 쉬워지고, 또, 제1 제와 제2 제의 질량비도 1에 가깝게 하기 쉬워진다.

[0252] 열전도성 조성물은, (F) 성분을 함유하는 것이 바람직하나, (F) 성분은, 제1 제 및 제2 제 중 적어도 어느 한쪽에 함유시키면 된다. 단, (F) 성분은, 적어도 제1 제에 함유시키는 것이 바람직하고, 제1 제 및 제2 제 양쪽 모두에 함유시키는 것이 보다 바람직하다. 제1 제 및 제2 제 양쪽 모두에 (F) 성분을 함유시키면, 제1 제 및 제2 제의 점도를 (F) 성분에 의해서 조정할 수 있고, 제1 제 및 제2 제 양쪽 모두를 비교적 낮은 점도로 하는 것도 가능하다. 또한, (F) 성분은, (F-2) 성분을 함유하는 경우에, (F-2) 성분을 제1 제 및 제2 제 양쪽 모두에 함유시키는 것이 보다 효과적이며 바람직하다.

[0253] <점도>

[0254] 열전도성 조성물에 함유되는 바인더 수지의 25℃에 있어서의 점도 VB는, 특별히 한정되지 않으나, 바람직하게는 50~800mPa·s, 보다 바람직하게는 80~600mPa·s, 더 바람직하게는 100~400mPa·s이다. 또한, 바인더 수지의 점도 VB는, 열전도성 조성물에 포함되는 오르가노폴리실록산의 점도이며, 통상은, (A)~(D) 성분, 또는 (A)~(D) 성분 및 (F) 성분의 혼합물의 점도인데, 이들 이외의 오르가노폴리실록산이 함유되는 경우에는, 그 오르가노폴리실록산도 추가로 포함시킨 혼합물의 점도이다. 후술하는 제1 제 및 제2 제의 바인더 수지의 점도 VB1, VB2에 대해서도, 마찬가지로 제1 제 및 제2 제 각각에 포함되는 오르가노폴리실록산의 점도이다.

[0255] 2액형의 열전도성 조성물에서는, 제1 제 및 제2 제 각각에 함유되는 바인더 수지의 25℃에 있어서의 점도 VB1, VB2는 각각, 바람직하게는 50~800mPa·s, 보다 바람직하게는 80~600mPa·s, 더 바람직하게는 100~400mPa·s이면 된다.

[0256] 또한, 제1 제 및 제2 제 각각에 있어서의 바인더 수지의 점도 VB1, VB2는, 제1 제 및 제2 제 각각에 함유되는 오르가노폴리실록산을 혼합하고, 혼합하여 얻은 오르가노폴리실록산에 대해 점도를 측정하면 된다. 열전도성 조성물에 있어서의 바인더 수지의 점도 VB도 동일하게 측정 가능하나, 2액형의 열전도성 조성물의 경우에는, 제1 제 및 제2 제 각각에 있어서의 바인더 수지의 점도 VB1, VB2로부터 대략의 점도 VB를 어림잡는 것도 가능하다.

[0257] 각 오르가노폴리실록산의 25℃에 있어서의 점도, 제1 제, 및 제2 제에 함유되는 바인더 수지의 점도 VB1, VB2는, 이하와 같이 측정할 수 있다.

[0258] 레오 미터(예를 들어, Anton Paar GmbH 제조의 레오 미터 「MCR-302e」)를 이용하여, 샘플의 온도를 펠티에 플레이트에서 25℃로 조정하며, φ50mm로 1° 각도의 콘 플레이트를 이용하여, 전단 속도 10~100(1/sec)의 범위에서 연속적으로 전단 속도를 변화시키면서 점도 측정을 행했다. 점도의 값은, 전단 속도 10(1/s)에 있어서의 점도를 채용한다.

[0259] 2액형의 열전도성 조성물에 있어서, 제1 제 및 제2 제 각각의 온도 25℃, 전단 속도 3.16(1/s)의 조건하에 있어서의 점도 V1, V2는 각각, 10~1000Pa·s인 것이 바람직하고, 50~700Pa·s인 것이 보다 바람직하며, 200~450Pa·s인 것이 더 바람직하다. 제1 제 및 제2 제가 상기와 같은 점도를 가짐으로써, 취급성이 향상되기 쉬워진다.

[0260] 또, 본 발명의 열전도성 조성물의 온도 25℃, 전단 속도 3.16(1/s)의 조건하에 있어서의 점도 V는, 10~1000Pa·s 이하인 것이 바람직하고, 50~700Pa·s 이하인 것이 보다 바람직하며, 200~450Pa·s 이하인 것이 더 바람직하다. 열전도성 조성물이 상기와 같은 점도를 가짐으로써, 경화 전에 있어서는 소정의 유동성을 갖고, 좁은 간극이나 복잡한 형상에 대해서도 대응할 수 있다.

[0261] 열전도성 조성물의 점도 V는, 2액형인 경우에는, 제1 제 및 제2 제를 혼합하여, 바로 측정함으로써 구할 수 있

는데, 제1 제 및 제2 제의 점도 V1, V2로부터 대략의 점도의 값을 어림잡을 수도 있다.

[0262] 상기한 제1 제의 점도 V1과, 제2 제의 점도 V2의 차(｜V1-V2｜)는, 열전도성 조성물을 균일하게 혼합하기 쉽게 하는 관점에서 작은 편이 바람직하다. 구체적으로는, 제1 제와 제2 제의 점도차(｜V1-V2｜)는, 예를 들어 130Pa·s 이하이면 되고, 100Pa·s 이하인 것이 바람직하며, 30Pa·s 이하인 것이 보다 바람직하다. 또, 제1 제와 제2 제의 점도차(｜V1-V2｜)는, 0Pa·s 이상이면 된다.

[0263] 제1 제 및 제2 제의 점도 V1, V2는, 이하의 방법에 의해 측정할 수 있다.

[0264] 레오 미터(예를 들어, Anton Paar 제조의 레오 미터 「MCR-302e」)를 이용하여, 샘플의 온도를 펠티에 플레이트에서 25℃로 조정하며, φ25㎜의 패럴렐 플레이트를 이용하여, 전단 속도 0.0001~100(1/s)의 범위에서 연속적으로 전단 속도를 변화시키면서 점도 측정을 행했다. 그리고, 상기 전단 속도에 있어서의 점도를 읽어내면 된다.

[0265] [열전도성 부재]

[0266] 본 발명의 열전도성 조성물은, 방열 갭 필러 등의 열전도성 부재로서 사용되는 것이 바람직하다. 열전도성 부재는, 열전도성 조성물을 경화시켜 이루어지는, 경화물이다.

[0267] 열전도성 부재는, 전자기기 내부 등에 있어서 사용된다. 구체적으로는, 열전도성 부재는, 발열체와 방열체 사이에 개재되고, 발열체에서 발한 열을 열전도 하여 방열체로 이동시켜, 방열체로부터 방열시킨다. 여기서, 발열체로는, 전자기기 내부에서 사용되는 CPU, 파워업, 전원 등의 각종의 전자 부품을 들 수 있다. 또, 방열체는, 히트 싱크, 히트 펌프, 전자기기의 금속 하우징 등을 들 수 있다.

[0268] 또, 열전도성 부재는, 예를 들어 전장 부품에 사용되면 되고, 전장 부품에 있어서, 상기 발열체는, 엔진 룸 내나 모터 근방 등에 배치되면 되며, 본 발명은 특히 150℃ 이상의 고온 환경하에 노출되는 전장 부품의 용도에 적절하다. 또, 150℃ 이상에서 발열하는 발열체의 방열에도 적합하다.

[0269] 열전도성 부재는, 예를 들어 발열체 및 방열체 사이의 간극에 열전도성 조성물을 충전하고, 경화하여 형성하면 된다. 경화는, 가열하여 행해도 되나, 상온 부근(예를 들어, 0~40℃ 정도, 바람직하게는 15~35℃ 정도)에서 행하는 것이 바람직하다. 상온 부근에서 경화함으로써, 전자 부품에 열이력을 가하지 않고, 열전도성 부재를 전자 기기 내부에 배치할 수 있다. 열전도성 조성물은, 2액형인 경우에는, 제1 제와 제2 제를 혼합시킨 후에 발열체 및 방열체 사이의 간극 등에 충전시켜 경화시키면 된다.

[0270] 열전도성 부재의 형상은, 특별히 한정되지 않으며, 시트상이어도 되고, 다른 형상으로 사용되어도 된다. 열전도성 부재의 두께는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 0.3~5㎜, 바람직하게는 0.5~4㎜로 사용할 수 있다. 본 발명에서는, 열전도성 부재가 유연성을 갖기 때문에, 그 두께를 크게 하면(예를 들어, 0.5㎜ 이상), 완충성을 발휘할 수 있고, 진동이 발생하는 환경하에 있어서 적절하게 이용할 수 있다.

[0271] **실시예**

[0272] 이하, 본 발명을 실시예에 의해 더 상세하게 설명하는데, 본 발명은 이들 예에 의해서 어떤 한정도 되지 않는다.

[0273] <열전도성 조성물의 경화물의 경도>

[0274] 제1 제 및 제2 제를 50cc의 2액 병렬 카트리지(MIXPAC사 제조의 1:1 혼합용 카트리지 「CDA050-01-PP」)에 충전하고, 스태틱 믹서(2액 혼합용 스태틱 믹서 「MA6.3-12S」, 엘리먼트수 6.3㎜×12, 토출구 내경 1.5㎜)를 사용하고 혼합하여 얻은 열전도성 조성물(질량비 1:1)을, 샘플의 두께가 2㎜가 되도록, 이형 처리된 PET 필름(PANAC CO.,LTD. 제조 「SG2」)의 이형면에 도포하고, 그 샘플 위로부터 다른 한 장의 PET 필름(PANAC CO.,LTD. 제조 「SG2」)을 이형면이 샘플에 접촉하도록 하여 눌러 고정했다. 온도 25℃, 습도 50%RH에서 24시간 방치하고, 샘플 1A를 얻었다. 얻어진 샘플 1A에서 30㎜각의 시트를 5장 펀칭하여 겹친 것을 이용하여 타입 E 경도를 측정하고, 경도 E1로 했다.

[0275] 상기와 동일한 방법으로 얻어진 샘플 2A를, 150℃로 설정된 항온조 내부에 투입하고, 항온조 내부에서 250시간 방치했다. 250시간 방치 후의 샘플 2A를, 항온조로부터 취출하여 25℃까지 냉각한 후에, 샘플 2A의 타입 E 경도를 측정하여, 경도 E2로 했다. 얻어진 경도 E1, E2로부터 E2/E1도 구했다.

[0276] <(A) 성분 및 (D) 성분의 중량 평균 분자량>

[0277] (A) 성분 및 (D) 성분을 포함하는 제1 제 및 제2 제(이하, 「시료」라고도 한다)에 대해서, 고속 액체 크로마토

그래프(HPLC)-라만 현미경 복합 장치(LC-Raman 시스템 : SHIMADZU CORPORATION 제조, 컬럼 : Shodex HK-404L(150㎜×4.6㎜I.D., 3.5㎛))를 이용하여, 각 성분의 중량 평균 분자량을 구했다. 구체적으로는, 각 시료를 테트라하이드로푸란에 용해시켜, 0.2중량%의 용액을 조정하고, 이 용액을 0.2㎛의 필터로 여과하고 나서, 측정에 이용했다. GPC 측정은 컬럼 온도 40℃에서 행하고, 용출액으로서 테트라하이드로푸란을 사용하며, 컬럼의 이동상의 유속은 0.2mL/min로 했다. 인젝션 볼륨은 10μL로, split ratio는 9 : 1로 했다. 스포팅 타임은 20초로, 스포팅 플레이트는 Hudson PL-PC-000040-P를 사용했다. 분자량순으로 용출하는 크로마토그램 상의 상이한 용출 위치, 즉 상이한 분자량의 용출액을 스포팅 플레이트에 스포팅하고, 라만 측정하여 얻어진 라만 스펙트럼을 확인함으로써 (A) 성분인지 (D) 성분인지를 식별하고, 각각의 성분의 중량 평균 분자량을 어림잡았다. 또한, 라만 스펙트럼에 있어서, 비닐기는 1600$cm^{-1}$, 메타크릴로일기는 1640$cm^{-1}$의 피크에서 식별했다. 이어서, 제1 제와 제2 제의 혼합비에 의거하여, 열전도성 조성물에 포함되는 (A) 성분과 (D) 성분의 중량 평균 분자량을 어림잡았다.

[0278] 또한, 상기는 제1 제와 제2 제에 대해서 별도로 분석했는데, 혼합물이어도 동일하게 분석할 수 있다. 또, 각 원료를 분리할 수 있는 경우는, 각각의 성분에 대해 중량 평균 분자량을 측정해도 된다.

[0279] 실시예 및 비교예에서 사용한 각 원료는, 이하와 같다.

[0280] <오르가노폴리실록산>

[0281] 오르가노폴리실록산 1((A) 성분) : 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산(비닐기 함유량 0.17㎜ol/g, 점도 410mPa·s, 중량 평균 분자량 25400)

[0282] 오르가노폴리실록산 2((A) 성분 및 (B) 성분) : 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산((A) 성분)과, 3개 이상의 하이드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산((B) 성분)의 혼합물(비닐기 함유량 0.15㎜ol/g, 하이드로실릴기 함유량 0.19㎜ol/g, 점도 336mPa·s, 중량 평균 분자량 25000, 질량비((A) 성분 : (B) 성분)=90 : 10)

[0283] 오르가노폴리실록산 3((A) 성분) : 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산(비닐기 함유량 0.314㎜ol/g, 점도 100mPa·s, 중량 평균 분자량 11300)

[0284] (오르가노폴리실록산 2에 있어서, (A) 성분은 하이드로실릴기를 갖지 않고, (B) 성분은, 비닐기(알케닐기)를 갖지 않는다.)

[0285] 오르가노폴리실록산 4((B) 성분) : 분자쇄의 양말단에 하이드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산(하이드로실릴기 함유량 0.329㎜ol/g, 점도 128mPa·s, 중량 평균 분자량 6000)

[0286] 오르가노폴리실록산 5((D) 성분) : 분자쇄의 편말단에 메타크릴로일기를 갖는 오르가노폴리실록산(메타크릴로일기 함유량 0.20㎜ol/g, 점도 65mPa·s, 중량 평균 분자량 5000)

[0287] 오르가노폴리실록산 6((D) 성분) : 분자쇄의 편말단에 메타크릴로일기를 갖는 오르가노폴리실록산(메타크릴로일기 함유량 0.10㎜ol/g, 점도 177mPa·s, 중량 평균 분자량 10000)

[0288] 오르가노폴리실록산 7 : 분자쇄의 편말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산((A) 성분, 50질량%)과, 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산((A) 성분, 25질량%)과, 비닐기를 갖지 않는 오르가노폴리실록산((F) 성분, 25질량%)의 혼합물(비닐기 함유량 0.22㎜ol/g, 점도 110mPa·s, 중량 평균 분자량 5000)

[0289] 오르가노폴리실록산 8((F-1) 성분) : 하이드로실릴화 부가 반응기를 갖지 않는 디메틸 실리콘 오일(점도 101mPa·s)

[0290] 오르가노폴리실록산 9((F-2) 성분) : 하이드로실릴화 부가 반응기를 갖지 않고, 말단에 트리알콕시실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산(점도 26mPa·s)

[0291] 오르가노폴리실록산 10((A) 성분)) : 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산(비닐기 함유량 0.34㎜ol/g, 점도 110mPa·s, 중량 평균 분자량 9200)

[0292] 오르가노폴리실록산 11((A) 성분 및 (B) 성분)) : 분자쇄의 양말단에 비닐기를 갖는 오르가노폴리실록산((A) 성분)과, 3개 이상의 하이드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산((B) 성분)의 혼합물(비닐기 함유량 0.30㎜ol/g, 하이드로실릴기 함유량 0.19㎜ol/g, 점도 90mPa·s, 중량 평균 분자량 9200, 질량비((A) 성분 : (B) 성분)=90 : 10)

[0293] <열전도성 충전재>

[0294] 산화알류미늄 1((C) 성분) : 구상 알루미나(D50 : 0.5㎛)

[0295] 산화알류미늄 2((C) 성분) : 구상 알루미나(D50 : 3㎛)

[0296] 산화알류미늄 3((C) 성분) : 구상 알루미나(D50 : 18㎛)

[0297] 산화알류미늄 4((C) 성분) : 구상 알루미나(D50 : 45㎛)

[0298] 산화알류미늄 5((C) 성분) : 구상 알루미나(D50 : 70㎛)

[0299] <하이드로실릴화 촉매>

[0300] 백금 촉매((E) 성분)

[0301] [실시예 1~9, 비교예 1~4]

[0302] 이하의 표 1~3에 기재하는 배합에 따라서 제1 제와 제2 제를 준비했다. 제1 제와 제2 제를 혼합하여 얻은 열전도성 조성물을 이용하여, 각종 물성의 측정 및 각종 평가를 행했다.

[0303] [표 1]

| | | | 실시예 1 | | 실시예 2 | | 실시예 3 | | 실시예 4 | | 실시예 5 | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 |
| 배합 (질량부) | 오르가노폴리실록산1(A) | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | |
| | 오르가노폴리실록산2(A,B) | | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 |
| | 오르가노폴리실록산3(A) | | 7.0 | 7.0 | 5.3 | 5.3 | 3.5 | 3.5 | 7.0 | 7.0 | 5.3 | 5.3 |
| | 오르가노폴리실록산4(B) | | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 |
| | 오르가노폴리실록산5(D) | | 11.0 | 11.0 | 8.3 | 8.3 | 5.5 | 5.5 | | | | |
| | 오르가노폴리실록산6(D) | | | | | | | | 22.0 | 22.0 | 16.5 | 16.5 |
| | 오르가노폴리실록산7(A,F) | | | | | | | | | | | |
| | 오르가노폴리실록산8(F) | | 37.0 | 7.0 | 41.5 | 11.5 | 46.0 | 16.0 | 22.0 | | 33.3 | 3.3 |
| | 오르가노폴리실록산9(F) | | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 21.5 | 13.5 | 17.5 | 17.5 |
| | 백금 촉매(E) | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | |
| | 산화 알루미늄1(C) | | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 |
| | 산화 알루미늄2(C) | | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 |
| | 산화 알루미늄3(C) | | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 |
| | 산화 알루미늄4(C) | | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 |
| | 산화 알루미늄5(C) | | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 |
| | (C) 열전도성 충전재의 합계량 | | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 |
| 관능기량·함유량 | 합계 Vi+Me 함유량1 | mmol/g | 0.10 | 0.09 | 0.09 | 0.09 | 0.08 | 0.08 | 0.10 | 0.09 | 0.09 | 0.09 |
| | 합계 Vi+Me 함유량2 | μmol/g | 4.7 | | 4.3 | | 3.8 | | 4.7 | | 4.3 | |
| | 합계 Me 함유량1 | mmol/g | 0.019 | 0.019 | 0.014 | 0.014 | 0.009 | 0.009 | 0.019 | 0.019 | 0.014 | 0.014 |
| | 합계 Me 함유량2 | μmol/g | 0.9 | | 0.7 | | 0.4 | | 0.9 | | 0.7 | |
| | 하이드로실릴기량1 | mmol/g | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 |
| | 하이드로실릴기량2 | μmol/g | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | |
| | 함유량비 H/(Vi+Me) | | 0.80 | | 0.88 | | 0.99 | | 0.80 | | 0.88 | |
| | 함유량비 H/Vi | | 0.99 | | 1.05 | | 1.12 | | 0.99 | | 1.05 | |
| | 함유량비(H/Vi)-(H/(Vi+Me)) | | 0.19 | | 0.16 | | 0.13 | | 0.19 | | 0.16 | |
| | 하이드로실릴기 농도비[b1/(b1+b2)] | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | |
| | DVi 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0 | | 0 | | 0 | | 0 | | 0 | |
| | Me 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0.19 | | 0.16 | | 0.12 | | 0.19 | | 0.16 | |
| | (F) 성분의 합계 함유량(질량%) (오르가노폴리실록산 전량 기준) | | 34% | | 37% | | 41% | | 24% | | 30% | |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 (제1 제와 제2 제) | | 23500 | 23000 | 23900 | 23400 | 24400 | 23900 | 23500 | 23000 | 23900 | 23400 |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 | | 23300 | | 23700 | | 24200 | | 23300 | | 23700 | |
| | 라만 강도 p2/p1 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | |
| | 라만 강도비 H/(Vi+Me) | | 7.26 | | 8.02 | | 8.96 | | 7.26 | | 8.02 | |
| | 라만 강도비 H/Vi | | 8.96 | | 9.52 | | 10.15 | | 8.96 | | 9.52 | |
| 경화물의 물성 | 25℃ 24시간 후의 E 경도(E1) | | 50 | | 57 | | 51 | | 54 | | 58 | |
| | 150℃ 250시간 후의 E 경도(E2) | | 70 | | 72 | | 73 | | 73 | | 69 | |
| | E2/E1 | | 1.40 | | 1.26 | | 1.43 | | 1.35 | | 1.19 | |

[0304]

[0305] [표 2]

| | | | 실시예 6 | | 실시예 7 | | 실시예 8 | | 실시예 9 | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 |
| 배합 (질량부) | 오르가노폴리실록산1(A) | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | |
| | 오르가노폴리실록산2(A,B) | | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 |
| | 오르가노폴리실록산3(A) | | 3.5 | 3.5 | 5.3 | 5.3 | 5.3 | 5.3 | 5.3 | 5.3 |
| | 오르가노폴리실록산4(B) | | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 |
| | 오르가노폴리실록산5(D) | | | | 26.4 | 18.0 | 31.4 | 18.0 | 36.4 | 18.0 |
| | 오르가노폴리실록산6(D) | | 11.0 | 11.0 | | | | | | |
| | 오르가노폴리실록산7(A,F) | | | | | | | | | |
| | 오르가노폴리실록산8(F) | | 40.5 | 10.5 | 23.4 | 1.8 | 18.4 | 1.8 | 13.4 | 1.8 |
| | 오르가노폴리실록산9(F) | | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 |
| | 백금 촉매(E) | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | |
| | 산화 알루미늄1(C) | | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 |
| | 산화 알루미늄2(C) | | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 |
| | 산화 알루미늄3(C) | | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 |
| | 산화 알루미늄4(C) | | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 |
| | 산화 알루미늄5(C) | | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 |
| | (C) 열전도성 충전재의 합계량 | | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 |
| 관능기량·함유량 | 합계 Vi+Me 함유량1 | mmol/g | 0.08 | 0.08 | 0.12 | 0.10 | 0.13 | 0.10 | 0.14 | 0.10 |
| | 합계 Vi+Me 함유량2 | μmol/g | 3.8 | | 5.4 | | 5.6 | | 5.8 | |
| | 합계 Me 함유량1 | mmol/g | 0.009 | 0.009 | 0.045 | 0.031 | 0.053 | 0.031 | 0.062 | 0.031 |
| | 합계 Me 함유량2 | μmol/g | 0.4 | | 1.8 | | 2.0 | | 2.2 | |
| | 하이드로실릴기량1 | mmol/g | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 |
| | 하이드로실릴기량2 | μmol/g | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | |
| | 함유량비 H/(Vi+Me) | | 0.99 | | 0.70 | | 0.67 | | 0.65 | |
| | 함유량비 H/Vi | | 1.12 | | 1.05 | | 1.05 | | 1.05 | |
| | 함유량비(H/Vi)-(H/(Vi+Me)) | | 0.13 | | 0.35 | | 0.38 | | 0.40 | |
| | 하이드로실릴기 농도비[b1/(b1+b2)] | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | |
| | DVi 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0 | | 0 | | 0 | | 0 | |
| | Me 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0.12 | | 0.33 | | 0.36 | | 0.38 | |
| | (F) 성분의 합계 함유량(질량%) (오르가노폴리실록산 전량 기준) | | 37% | | 26% | | 23% | | 21% | |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 (제1 제와 제2 제) | | 24400 | 23900 | 23900 | 23400 | 23900 | 23400 | 23900 | 23400 |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 | | 24200 | | 23700 | | 23700 | | 23700 | |
| | 라만 강도 p2/p1 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | |
| | 라만 강도비 H/(Vi+Me) | | 8.96 | | 6.34 | | 6.11 | | 5.90 | |
| | 라만 강도비 H/Vi | | 10.15 | | 9.52 | | 9.52 | | 9.52 | |
| 경화물의 물성 | 25℃ 24시간 후의 E 경도(E1) | | 55 | | 52 | | 50 | | 51 | |
| | 150℃ 250시간 후의 E 경도(E2) | | 68 | | 72 | | 68 | | 69 | |
| | E2/E1 | | 1.24 | | 1.38 | | 1.36 | | 1.35 | |

[0306]

[0307] [표 3]

| | | | 비교예 1 | | 비교예 2 | | 비교예 3 | | 비교예 4 | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 | 제1 제 | 제2 제 |
| 배합 (질량부) | 오르가노폴리실록산1(A) | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | | |
| | 오르가노폴리실록산2(A,B) | | | 45.0 | | 45.0 | | 45.0 | | |
| | 오르가노폴리실록산3(A) | | | | | | | | 5.3 | 5.3 |
| | 오르가노폴리실록산4(B) | | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 | | 30.0 |
| | 오르가노폴리실록산5(D) | | | | | | | | | |
| | 오르가노폴리실록산6(D) | | | | | | | | 16.5 | 16.5 |
| | 오르가노폴리실록산7(A,F) | | 20.0 | 20.0 | 15.0 | 15.0 | 10.0 | 10.0 | | |
| | 오르가노폴리실록산8(F) | | 35.0 | 5.0 | 40.0 | 10.0 | 45.0 | 15.0 | 33.3 | 3.3 |
| | 오르가노폴리실록산9(F) | | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 | 17.5 |
| | 오르가노폴리실록산10(A) | | | | | | | | 45.0 | |
| | 오르가노폴리실록산11(A,B) | | | | | | | | | 45.0 |
| | 백금 촉매(E) | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | | 0.10 | |
| | 산화 알루미늄1(C) | | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 | 228 |
| | 산화 알루미늄2(C) | | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 | 551 |
| | 산화 알루미늄3(C) | | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 | 163 |
| | 산화 알루미늄4(C) | | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 | 305 |
| | 산화 알루미늄5(C) | | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 | 1096 |
| | (C) 열전도성 충전재의 합계량 | | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 | 2343 |
| 관능기량·함유량 | 합계 Vi+Me 함유량1 | mmol/g | 0.10 | 0.09 | 0.09 | 0.09 | 0.08 | 0.08 | 0.16 | 0.14 |
| | 합계 Vi+Me 함유량2 | μmol/g | 4.7 | | 4.3 | | 3.8 | | 7.2 | |
| | 합계 Me 함유량1 | mmol/g | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0.014 | 0.014 |
| | 합계 Me 함유량2 | μmol/g | 0 | | 0 | | 0 | | 0.7 | |
| | 하이드로실릴기량1 | mmol/g | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 | 0 | 0.16 |
| | 하이드로실릴기량2 | μmol/g | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | | 3.8 | |
| | 함유량비 H/(Vi+Me) | | 0.80 | | 0.88 | | 0.99 | | 0.52 | |
| | 함유량비 H/Vi | | 0.80 | | 0.88 | | 0.99 | | 0.58 | |
| | 함유량비(H/Vi)-(H/(Vi+Me)) | | 0 | | 0 | | 0 | | 0.06 | |
| | 하이드로실릴기 농도비[b1/(b1+b2)] | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | | 0.53 | |
| | DVi 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0.19 | | 0.16 | | 0.12 | | 0.00 | |
| | Me 함유량/ 합계 Vi+Me 함유량 | | 0 | | 0 | | 0 | | 0.09 | |
| | (F) 성분의 합계 함유량(질량%) (오르가노폴리실록산 전량 기준) | | 32% | | 36% | | 40% | | 30% | |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 (제1 제와 제2 제) | | 21700 | 25000 | 22500 | 25000 | 23400 | 25000 | 9200 | 9200 |
| | 전체 (A) 성분의 중량 평균 분자량 | | 25200 | | 25200 | | 25200 | | 9200 | |
| | 라만 강도 p2/p1 | | 3.55 | | 3.55 | | 3.55 | | 4.05 | |
| | 라만 강도비 H/(Vi+Me) | | 7.26 | | 8.02 | | 8.96 | | 3.04 | |
| | 라만 강도비 H/Vi | | 7.26 | | 8.02 | | 8.96 | | 3.73 | |
| 경화물의 물성 | 25℃ 24시간 후의 E 경도(E1) | | 미경화 | | 14 | | 45 | | 55 | |
| | 150℃ 250시간 후의 E 경도(E2) | | 미경화 | | 52 | | 71 | | 85 | |
| | E2/E1 | | — | | 3.71 | | 1.58 | | 1.55 | |

[0308]

[0309] ※ 합계 Vi+Me 함유량 1은, 제1 제 및 제2 제 각각에 있어서의 오르가노폴리실록산 1~9의 합계량에 대한, 알케닐기 및 메타크릴로일기의 합계 함유량이다.

[0310] ※ 합계 Vi+Me 함유량 2는, 열전도성 조성물(제1 제와 제2 제)의 합계량에 대한, 알케닐기와 메타크릴로일기의 합계 함유량이다.

[0311] ※ 합계 Me 함유량 1은, 제1 제 및 제2 제 각각에 있어서의 오르가노폴리실록산 1~9의 합계량에 대한, 메타크릴로일기의 합계 함유량이다.

[0312] ※ 합계 Me 함유량 2는, 열전도성 조성물(제1 제와 제2 제)의 합계량에 대한, 메타크릴로일기의 합계 함유량이다.

[0313] ※ 하이드로실릴기량 1은, 제1 제 및 제2 제 각각에 있어서의 오르가노폴리실록산 1~9의 합계량에 대한, 하이드로실릴기의 합계 함유량이다.

[0314] ※ 하이드로실릴기량 2는, 열전도성 조성물(제1 제와 제2 제)의 합계량에 대한, 하이드로실릴기의 합계 함유량이다.

[0315] 이상의 실시예로부터 명백하듯이, 본 발명의 요건을 만족하는 열전도성 조성물로 형성된 열전도성 부재는, 고온 환경하에 놓여진 경우에도 경도 상승이 억제되어 있었다.

[0316] 이에 비해, 비교예 2 및 3의 열전도성 조성물로 형성된 열전도성 부재는, 모두 (D) 성분을 함유하고 있지 않고, 고온 환경하에 있어서, 경도 상승을 억제할 수 없었다. 또, 비교예 1의 열전도성 조성물은, 경화 불가였기 때문에, 열전도성 부재를 형성하지 못해, 경도 상승의 억제의 유무를 평가할 수 없었다. 또한, (D) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wd}$가, (A) 성분의 중량 평균 분자량 $M_{wa}$보다 컸던 비교예 4에 대해서도, 고온 환경하에 있어서, 경도 상승을 억제할 수 없었다.