(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2025년06월05일
(11) 등록번호 10-2817630
(24) 등록일자 2025년06월02일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 21/064 (2006.01) *C08K 3/38* (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C01B 21/064 (2013.01)
C08K 3/38 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-7005819
(22) 출원일자(국제) 2021년08월19일
심사청구일자 2023년06월01일
(85) 번역문제출일자 2023년02월20일
(65) 공개번호 10-2023-0051673
(43) 공개일자 2023년04월18일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2021/030445
(87) 국제공개번호 WO 2022/039234
국제공개일자 2022년02월24일
(30) 우선권주장
JP-P-2020-139471 2020년08월20일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
JP10053405 A*
JP2015110266 A*
KR1020180115673 A*
US20190276310 A1*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
덴카 주식회사
일본국, 도쿄, 추오-구, 니혼바시-무로마치 2초메, 1-1
(72) 발명자
사사키 유스케
일본 도쿄도 주오쿠 니혼바시무로마치 2초메 1반 1고 덴카 주식회사 내
미야타 겐지
일본 도쿄도 주오쿠 니혼바시무로마치 2초메 1반 1고 덴카 주식회사 내
나카시마 미치하루
일본 도쿄도 주오쿠 니혼바시무로마치 2초메 1반 1고 덴카 주식회사 내
(74) 대리인
제일특허법인(유)

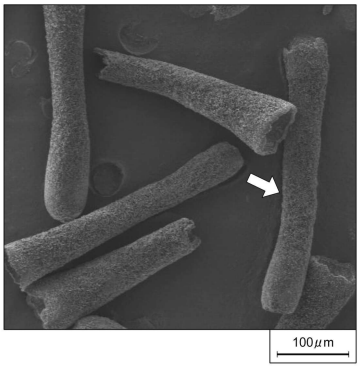
전체 청구항 수 : 총 6 항 심사관 : 김예훈

(54) 발명의 명칭 **질화 붕소 입자, 질화 붕소 입자의 제조 방법, 수지 조성물, 및 수지 조성물의 제조 방법**

(57) 요 약

본 발명의 주된 목적은, 신규한 질화 붕소 입자 및 그의 제조 방법을 제공하는 것이다. 본 발명의 일 측면은, 탄소 재료로 형성된 용기 내에, 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물과, 탄소 재료로 형성된 기재를 배치하는 공정과, 용기 내를 질소 분위기로 한 상태에서 가열 및 가압하는 것에 의해, 기재 상에 질화 붕소 입자를 생성시키는 공정을 구비하는, 질화 붕소 입자의 제조 방법이다. 본 발명의 다른 일 측면은, 최대 길이가 80㎛ 이상이고, 어스펙트비가 1.5 이상인, 질화 붕소 입자이다.

대 표 도 - 도3



(52) CPC특허분류
C08L 101/00 (2013.01)
C01P 2004/54 (2013.01)
C01P 2004/61 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

탄소 재료로 형성된 용기 내에, 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물과, 탄소 재료로 형성된 기재를 배치하는 공정과,

상기 용기 내를 질소 분위기로 한 상태에서 가열 및 가압하는 것에 의해, 상기 기재 상에 질화 붕소 입자를 생성시키는 공정을 구비하고,

상기 혼합물 중의 상기 붕산의 함유량이 8질량부 이상 20질량부 이하이고,

상기 가열할 때의 가열 온도가 1800℃ 이상 2200℃ 이하이고,

상기 가압할 때의 압력이 0.3MPa 이상 0.9MPa 이하이고,

상기 가열 및 가압을 행하는 시간이 5시간 이상 30시간 이하인, 질화 붕소 입자의 제조 방법.

청구항 2

복수의 질화 붕소편으로 구성되어 있는 질화 붕소 입자로서,

최대 길이가 80㎛ 이상이고, 어스펙트비가 1.5 이상이고,

질화 붕소에 의해 형성되는 외각(外殼)부와, 상기 외각부에 둘러싸인 중공부를 갖고,

상기 중공부와 연통하는 개구단을 갖는, 질화 붕소 입자.

청구항 3

제 2 항에 있어서,

상기 최대 길이가 150㎛ 이상인, 질화 붕소 입자.

청구항 4

제 2 항 또는 제 3 항에 기재된 질화 붕소 입자와, 수지를 함유하는 수지 조성물.

청구항 5

제 2 항 또는 제 3 항에 기재된 질화 붕소 입자를 준비하는 공정과,

상기 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하는 공정을 구비하는, 수지 조성물의 제조 방법.

청구항 6

제 5 항에 있어서,

상기 질화 붕소 입자를 분쇄하는 공정을 추가로 구비하는, 수지 조성물의 제조 방법.

청구항 7

삭제

청구항 8

삭제

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 개시는 질화 붕소 입자, 질화 붕소 입자의 제조 방법, 수지 조성물, 및 수지 조성물의 제조 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 질화 붕소는, 윤활성, 고열전도성, 및 절연성을 갖고 있어, 고체 윤활재, 이형재, 화장료의 원료, 방열(放熱)재, 및 내열성 및 절연성을 갖는 소결체 등의 여러 가지 용도에 이용되고 있다.

[0003] 예를 들면, 특허문헌 1에는, 수지에 충전하여 얻어지는 수지 조성물에 높은 열전도성과 높은 절연 내력을 부여하는 것이 가능한 육방정 질화 붕소 분말로서, 육방정 질화 붕소의 1차 입자로 이루어지는 응집 입자를 포함하고, BET 비표면적이 0.7~1.3m^2/g이고, 또한 JIS K 5101-13-1에 기초하여 측정되는 흡유량이 80g/100g 이하인 것을 특징으로 하는 육방정 질화 붕소 분말이 개시되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0004] (특허문헌 0001) 일본 특허공개 2016-160134호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 상기의 특허문헌 1에 개시되어 있는 바와 같이, 질화 붕소 입자를 예를 들면 방열재에 이용하는 경우, 열전도성을 높이기 위해서는, 질화 붕소 입자를 가능한 한 크게 하는 것이 바람직하다. 또한, 특정 방향의 열전도성을 높이고 싶은 경우에는, 질화 붕소 입자의 어스펙트비를 크게 하는 것이 바람직하다. 그러나, 종래의 제조 방법에 의해 얻어지는 질화 붕소 입자의 크기 및 어스펙트비에는 한도가 있다.

[0006] 본 발명의 주된 목적은, 신규한 질화 붕소 입자 및 그의 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0007] 본 발명의 일 측면은, 탄소 재료로 형성된 용기 내에, 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물과, 탄소 재료로 형성된 기재를 배치하는 공정과, 용기 내를 질소 분위기로 한 상태에서 가열 및 가압하는 것에 의해, 기재 상에 질화 붕소 입자를 생성시키는 공정을 구비하는, 질화 붕소 입자의 제조 방법이다.

[0008] 상기의 가압은, 0.3MPa 이상에서의 가압이어도 된다.

[0009] 이상과 같은 제조 방법에 의하면, 종래의 제조 방법에서는 얻어지지 않았던 크기 및 어스펙트비를 갖는 질화 붕소 입자가 얻어진다. 즉, 본 발명의 다른 일 측면은, 최대 길이가 80㎛ 이상이고, 어스펙트비가 1.5 이상인, 질화 붕소 입자이다.

[0010] 상기의 최대 길이는, 150㎛ 이상이어도 된다.

[0011] 질화 붕소 입자는, 질화 붕소에 의해 형성되는 외각(外殻)부와, 상기 외각부에 둘러싸인 중공부를 가져도 된다.

[0012] 본 발명의 다른 일 측면은, 상기 질화 붕소 입자와, 수지를 함유하는 수지 조성물이다.

[0013] 본 발명의 다른 일 측면은, 상기 질화 붕소 입자를 준비하는 공정과, 상기 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하는 공정을 구비하는, 수지 조성물의 제조 방법이다. 이 수지 조성물의 제조 방법은, 상기 질화 붕소 입자를 분쇄하는 공정을 추가로 구비해도 된다.

발명의 효과

[0014] 본 발명의 일 측면에 의하면, 신규한 질화 붕소 입자 및 그의 제조 방법을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0015] [도 1] 분쇄된 질화 붕소 입자(질화 붕소 분쇄 입자)의 일 실시형태를 나타내는 모식도이다.

[도 2] 실시예 1의 질화 붕소 입자의 X선 회절 측정 결과의 그래프이다.

[도 3] 실시예 1의 질화 붕소 입자의 SEM 화상이다.

[도 4] 실시예 2의 질화 붕소 입자의 SEM 화상이다.

[도 5] 실시예 3의 질화 붕소 입자의 SEM 화상이다.

[도 6] 실시예 4의 질화 붕소 입자의 SEM 화상이다.

[도 7] 실시예 5의 질화 붕소 입자의 SEM 화상이다.

[도 8] 실시예 1의 질화 붕소 입자의 분쇄 후의 SEM 화상이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0016] 이하, 본 발명의 실시형태에 대하여 상세히 설명한다. 본 발명의 일 실시형태는, 최대 길이가 80 μm 이상이고, 어스펙트비가 1.5 이상인, 질화 붕소 입자이다.

[0017] 일 실시형태에 따른 질화 붕소 입자는, 그 최대 길이 및 어스펙트비의 크기에 기인하여, 우수한 열전도성(특히 질화 붕소 입자의 긴 방향에서의 열전도성)을 갖는다. 따라서, 이 질화 붕소 입자는, 방열재(방열 시트)로서 적합하게 이용할 수 있다. 한편, 질화 붕소 입자의 용도로서 방열재를 예시했지만, 질화 붕소 입자는, 방열재에 한하지 않고 여러 가지 용도에 이용할 수 있다.

[0018] 일 실시형태에 있어서, 질화 붕소 입자는, 복수의 질화 붕소편으로 구성되어 있어도 된다. 질화 붕소편은, 질화 붕소에 의해 형성되어 있고, 예를 들면 인편(鱗片)상의 형상을 갖는 것이어도 된다. 이 경우, 질화 붕소편의 긴 방향의 길이는, 예를 들면, 1 μm 이상이어도 되고, 10 μm 이하여도 된다. 질화 붕소 입자를 구성하는 복수의 질화 붕소편끼리는, 물리적으로 접촉하고 있어도 되고, 화학적으로 결합하고 있어도 된다.

[0019] 질화 붕소 입자의 최대 길이는, 100 μm 이상, 125 μm 이상, 150 μm 이상, 175 μm 이상, 200 μm 이상, 225 μm 이상, 250 μm 이상, 300 μm 이상, 또는 350 μm 이상이어도 되고, 500 μm 이하여도 된다.

[0020] 질화 붕소 입자의 최대 길이란, 질화 붕소 입자를 주사형 전자 현미경(SEM)으로 관찰했을 때에, 1개의 질화 붕소 입자 상의 임의의 2점간의 직선 거리 중 최대가 되는 길이를 의미한다. 최대 길이의 측정은, SEM 화상을 화상 해석 소프트웨어(예를 들면, 주식회사 마운테크제의 「Mac-view」)에 도입하여 행해도 된다.

[0021] 질화 붕소 입자의 최대 길이가 큼으로써, 예를 들면, 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하여 방열재로 했을 때에, 방열재의 두께 방향으로 나열되는 질화 붕소 입자의 수가 적어져, 질화 붕소 입자간에서의 전열 로스가 적어지기 때문에, 방열재의 열전도성이 보다 우수하다고 생각된다.

[0022] 질화 붕소 입자의 어스펙트비는, 1.7 이상, 2.0 이상, 3.0 이상, 5.0 이상, 또는 7.0 이상이어도 되고, 12.0 이하, 10.0 이하, 9.5 이하, 9.0 이하, 또는 8.0 이하여도 된다.

[0023] 질화 붕소 입자의 어스펙트비는, 전술한 질화 붕소 입자의 최대 길이(긴 방향의 최대 길이) L_A와, 당해 최대 길이 L_A를 갖는 방향(긴 방향)에 대해서 수직한 방향(짧은 방향)에 있어서의 질화 붕소 입자의 최대 길이(짧은 방향의 최대 길이) L_B의 비(L_A/L_B)로서 정의된다. 짧은 방향의 최대 길이 L_B는, 긴 방향의 최대 길이 L_A와 마찬가지의 방법으로 측정할 수 있다.

[0024] 질화 붕소 입자의 어스펙트비가 클수록, 질화 붕소 입자는 보다 가늘고 긴 형상을 갖는다. 그 때문에, 예를 들면, 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하여 방열재로 했을 때에, 질화 붕소 입자끼리가 겹치기 쉬워진다. 또, 질화 붕소 입자가 다른 질화 붕소 입자와 겹칠 때에, 가늘고 긴 형상을 갖는 질화 붕소 입자가 비스듬히 겹친다고 생각된다. 따라서, 방열재의 두께 방향으로 나열되는 질화 붕소 입자의 수가 적어져, 질화 붕소 입자간에서의 전열 로스가 적어지기 때문에, 방열재의 열전도성이 보다 우수하다고 생각된다.

[0025] 질화 붕소 입자는, 중실 또는 중공이어도 된다. 질화 붕소 입자가 중공인 경우, 질화 붕소 입자는, 질화 붕소에 의해 형성되는 외각부와, 외각부에 둘러싸인 중공부를 가져도 된다. 중공부는, 질화 붕소 입자의 긴 방향을 따라 형성되어 있어도 되고, 질화 붕소 입자의 외관 형상과 대략 상사형의 가늘고 긴 형상이어도 된다. 또한, 질화 붕소 입자가 중공인 경우, 질화 붕소 입자의 긴 방향에 있어서의 양단 중 적어도 한쪽이 개구단이어도 되

고, 양단이 모두 개구단이어도 된다. 당해 개구단은, 전술한 중공부와 연통하고 있어도 된다. 질화 붕소 입자가 중공이고, 질화 붕소 입자의 최대 길이를 갖는 방향에 있어서의 양단 중 적어도 한쪽이 개구단인 것에 의해, 예를 들면, 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하여 방열재로서 이용했을 때에, 질화 붕소 입자보다도 가벼운 수지가 중공부에 충전됨으로써, 방열재의 열전도율의 향상이 도모되면서, 방열재의 경량화도 기대할 수 있다.

[0026] 질화 붕소 입자는, 외각부 및 중공부의 합계 면적에서 차지하는 중공부의 면적 비율이 5% 이상인 단면을 가져도 된다. 질화 붕소 입자의 중공부의 면적 비율은, 질화 붕소 입자의 단면 화상(SEM 화상)을 화상 해석 소프트웨어(예를 들면, 주식회사 마운테크제의 「Mac-view」)에 도입하여 계산하는 것에 의해 구할 수 있다. 질화 붕소 입자는, 방열재에 이용되었을 때의 당해 방열재의 경량화의 관점에서, 상기 면적 비율이, 10% 이상, 20% 이상, 30% 이상, 40% 이상, 또는 50% 이상인 단면을 가져도 되고, 당해 면적 비율이, 90% 이하 또는 80% 이하인 단면을 가져도 된다.

[0027] 외각부의 두께는, 50㎛ 이하여도 되고, 질화 붕소 입자의 경량화가 더 도모되는 관점에서, 바람직하게는 30㎛ 이하이며, 보다 바람직하게는 15㎛ 이하이다. 외각부의 두께는, 질화 붕소 입자의 형상을 유지하기 쉬운 관점에서, 1㎛ 이상 또는 3㎛ 이상이어도 된다. 외각부의 두께는, 질화 붕소 입자의 긴 방향에 대해서 수직한 방향의 단면을 SEM으로 관찰했을 때의 관찰 화상에 있어서, 질화 붕소 입자의 단면 상에 임의의 2점간의 직선 거리가 최대가 되는 직선을 작도했을 때에, 당해 직선의 각 외각부 상에 작도한 부분의 길이의 평균치로 정의된다.

[0028] 질화 붕소 입자는, 정형이어도 부정형이어도 된다. 질화 붕소 입자의 외관 형상으로서는, 회전 타원체상, 기둥상(봉상), 판상(평판상, 곡판상 등), 덤벨상 등을 들 수 있다. 질화 붕소 입자는, 예를 들면, 2 이상의 방향으로 분기하는 분기 구조를 갖고 있어도 된다.

[0029] 질화 붕소 입자는, 실질적으로 질화 붕소만으로 이루어져도 된다. 질화 붕소 입자가 실질적으로 질화 붕소만으로 이루어지는 것은, X선 회절 측정에 있어서, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되는 것에 의해 확인할 수 있다.

[0030] 계속해서, 전술한 질화 붕소 입자의 제조 방법에 대하여 이하에 설명한다. 질화 붕소 입자는, 예를 들면, 탄소 재료로 형성된 용기 내에, 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물과, 탄소 재료로 형성된 기재를 배치하는 공정(배치 공정)과, 용기 내를 질소 분위기로 한 상태에서 가열 및 가압하는 것에 의해, 기재 상에 질화 붕소 입자를 생성시키는 공정(생성 공정)을 구비하는 질화 붕소 입자의 제조 방법에 의해 제조할 수 있다. 본 발명의 다른 일 실시형태는, 이와 같은 질화 붕소 입자의 제조 방법이다.

[0031] 탄소 재료로 형성된 용기는, 상기 혼합물 및 기재를 수용할 수 있는 용기이다. 당해 용기는, 예를 들면 카본 도가니여도 된다. 용기는, 바람직하게는, 개구부에 덮개를 하는 것에 의해, 기밀성을 높일 수 있는 용기이다. 배치 공정에서는, 예를 들면, 혼합물을 용기 내의 저부에 배치하고, 기재를 용기 내의 측벽면이나 덮개의 내측에 고정하도록 배치해도 된다. 탄소 재료로 형성된 기재는, 예를 들면, 시트상, 판상, 또는 봉상이어도 된다. 탄소 재료로 형성된 기재는, 예를 들면, 카본 시트(그래파이트 시트), 카본판, 또는 카본봉이어도 된다.

[0032] 혼합물 중의 탄화 붕소는, 예를 들면 분말상(탄화 붕소 분말)이어도 된다. 혼합물 중의 붕산은, 예를 들면 분말상(붕산 분말)이어도 된다. 혼합물은, 예를 들면, 탄화 붕소 분말과 붕산 분말을 공지된 방법으로 혼합하는 것에 의해 얻어진다.

[0033] 탄화 붕소 분말은, 공지된 제조 방법에 의해 제조할 수 있다. 탄화 붕소 분말의 제조 방법으로서는, 예를 들면, 붕산과 아세틸렌 블랙을 혼합한 후, 불활성 가스(예를 들면 질소 가스) 분위기 중에서, 1800~2400℃에서, 1~10시간 가열하여, 괴상의 탄화 붕소 입자를 얻는 방법을 들 수 있다. 이 방법에 의해 얻어진 괴상의 탄화 붕소 입자를, 분쇄, 체분리, 세정, 불순물 제거, 건조 등을 적절히 행함으로써 탄화 붕소 분말을 얻을 수 있다.

[0034] 괴상의 탄소 붕소 입자의 분쇄 시간을 조정하는 것에 의해, 탄화 붕소 분말의 평균 입자경을 조정할 수 있다. 탄화 붕소 분말의 평균 입자경은, 5㎛ 이상, 7㎛ 이상, 또는 10㎛ 이상이어도 되고, 100㎛ 이하, 90㎛ 이하, 80㎛ 이하, 또는 70㎛ 이하여도 된다. 탄화 붕소 분말의 평균 입자경은, 레이저 회절 산란법에 의해 측정할 수 있다.

[0035] 탄화 붕소와 붕산의 혼합 비율은, 적절히 선택할 수 있다. 혼합물 중의 붕산의 함유량은, 질화 붕소 입자가 커지기 쉬운 관점에서, 탄화 붕소 100질량부에 대해서, 바람직하게는 2질량부 이상이고, 보다 바람직하게는 5질량부 이상이고, 더 바람직하게는 8질량부 이상이며, 100질량부 이하, 90질량부 이하, 또는 80질량부 이하여도 된

다.

[0036] 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물은, 다른 성분을 추가로 함유해도 된다. 다른 성분으로서는, 탄화 규소, 탄소, 산화 철 등을 들 수 있다. 탄화 붕소 및 붕산을 함유하는 혼합물이 탄화 규소를 추가로 포함함으로써, 개구단을 갖지 않는 질화 붕소 입자를 얻기 쉬워진다.

[0037] 용기 내는, 예를 들면 95체적% 이상의 질소 가스를 포함하는 질소 분위기로 되어 있다. 질소 분위기 중의 질소 가스의 함유량은, 바람직하게는 95체적% 이상이고, 보다 바람직하게는 99.9체적% 이상이며, 실질적으로 100체적%여도 된다. 질소 분위기 중에, 질소 가스에 더하여, 암모니아 가스 등이 포함되어도 된다.

[0038] 가열 온도는, 질화 붕소 입자가 커지기 쉬운 관점에서, 바람직하게는 1450℃ 이상이고, 보다 바람직하게는 1600℃ 이상이며, 더 바람직하게는 1800℃ 이상이다. 가열 온도는, 2400℃ 이하, 2300℃ 이하, 또는 2200℃ 이하여도 된다.

[0039] 가압할 때의 압력은, 질화 붕소 입자가 커지기 쉬운 관점에서, 바람직하게는 0.3MPa 이상이고, 보다 바람직하게는 0.6MPa 이상이다. 가압할 때의 압력은, 1.0MPa 이하, 또는 0.9MPa 이하여도 된다.

[0040] 가열 및 가압을 행하는 시간은, 질화 붕소 입자가 커지기 쉬운 관점에서, 바람직하게는 3시간 이상이고, 보다 바람직하게는 5시간 이상이다. 가열 및 가압을 행하는 시간은, 40시간 이하, 또는 30시간 이하여도 된다.

[0041] 이 제조 방법에 의하면, 전술한 최대 길이를 갖는 질화 붕소 입자가 탄소 재료로 형성된 기재 상에 생성된다. 따라서, 기재 상의 질화 붕소 입자를 회수하는 것에 의해, 질화 붕소 입자가 얻어진다. 기재 상에 생성된 입자가 질화 붕소 입자인 것은, 당해 입자의 일부를 기재로부터 회수하고, 회수한 입자에 대하여 X선 회절 측정을 행하여, 질화 붕소에서 유래하는 피크가 검출되는 것에 의해 확인할 수 있다.

[0042] 이상과 같이 해서 얻어지는 질화 붕소 입자에 대해서, 80㎛ 이상의 최대 길이를 갖고, 어스펙트비가 1.5 이상인 질화 붕소 입자 중, 특정 범위의 최대 길이를 갖는 질화 붕소 입자만이 얻어지도록 분급하는 공정(분급 공정)을 실시해도 된다.

[0043] 이상과 같이 해서 얻어지는 질화 붕소 입자는, 수지와 혼합하여 수지 조성물로서 이용할 수 있다. 즉, 본 발명의 다른 일 실시형태는, 상기의 질화 붕소 입자와, 수지를 함유하는 수지 조성물이다.

[0044] 수지로서는, 에폭시 수지, 실리콘 수지, 실리콘 고무, 아크릴 수지, 페놀 수지, 멜라민 수지, 유레아 수지, 불포화 폴리에스터, 불소 수지, 폴리이미드, 폴리아마이드이미드, 폴리에터이미드, 폴리뷰틸렌 테레프탈레이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리페닐렌 에터, 폴리페닐렌 설파이드, 전방향족 폴리에스터, 폴리설폰, 액정 폴리머, 폴리에터설폰, 폴리카보네이트, 말레이미드 변성 수지, ABS(아크릴로나이트릴-뷰타다이엔-스타이렌) 수지, AAS(아크릴로나이트릴-아크릴 고무·스타이렌) 수지, AES(아크릴로나이트릴·에틸렌·프로필렌·다이엔 고무-스타이렌) 수지 등을 들 수 있다.

[0045] 질화 붕소 입자의 함유량은, 수지 조성물을 방열재로서 이용하는 경우, 방열재의 열전도율을 향상시켜, 우수한 방열 성능이 얻어지기 쉬운 관점에서, 수지 조성물의 전체 체적을 기준으로 해서, 15체적% 이상, 20체적% 이상, 30체적% 이상, 40체적% 이상, 50체적% 이상, 또는 60체적% 이상이어도 된다. 질화 붕소 입자의 함유량은, 수지 조성물을 시트상의 방열재로 성형할 때에 공극이 발생하는 것을 억제하여, 시트상의 방열재의 절연성 및 기계 강도의 저하를 억제할 수 있는 관점에서, 수지 조성물의 전체 체적을 기준으로 해서, 85체적% 이하, 80체적% 이하, 70체적% 이하, 60체적% 이하, 50체적% 이하, 또는 40체적% 이하여도 된다.

[0046] 수지의 함유량은, 수지 조성물의 용도, 요구 특성 등에 따라서 적절히 조정해도 된다. 수지의 함유량은, 수지 조성물의 전체 체적을 기준으로 해서, 예를 들면, 15체적% 이상, 20체적% 이상, 30체적% 이상, 40체적% 이상, 50체적% 이상, 또는 60체적% 이상이어도 되고, 85체적% 이하, 70체적% 이하, 60체적% 이하, 50체적% 이하, 또는 40체적% 이하여도 된다.

[0047] 수지 조성물은, 수지를 경화시키는 경화제를 추가로 함유하고 있어도 된다. 경화제는, 수지의 종류에 따라서 적절히 선택된다. 예를 들면 에폭시 수지와 함께 이용되는 경화제로서는, 페놀 노볼락 화합물, 산 무수물, 아미노 화합물, 이미다졸 화합물 등을 들 수 있다. 경화제의 함유량은, 수지 100질량부에 대해서, 예를 들면, 0.5질량부 이상 또는 1.0질량부 이상이어도 되고, 15질량부 이하 또는 10질량부 이하여도 된다.

[0048] 수지 조성물은, 그 밖의 성분을 추가로 함유해도 된다. 그 밖의 성분은, 경화 촉진제(경화 촉매), 커플링제, 습윤 분산제, 표면 조정제 등이어도 된다.

[0049] 경화 촉진제(경화 촉매)로서는, 테트라페닐포스포늄 테트라페닐보레이트, 트라이페닐포스페이트 등의 인계 경화 촉진제, 2-페닐-4,5-다이하이드록시메틸이미다졸 등의 이미다졸계 경화 촉진제, 삼불화 붕소 모노에틸아민 등의 아민계 경화 촉진제 등을 들 수 있다.

[0050] 커플링제로서는, 실레인계 커플링제, 타이타네이트계 커플링제, 및 알루미네이트계 커플링제 등을 들 수 있다. 이들 커플링제에 포함되는 화학 결합기로서는, 바이닐기, 에폭시기, 아미노기, 메타크릴기, 머캅토기 등을 들 수 있다.

[0051] 습윤 분산제로서는, 인산 에스터염, 카복실산 에스터, 폴리에스터, 아크릴 공중합물, 블록 공중합물 등을 들 수 있다.

[0052] 표면 조정제로서는, 아크릴계 표면 조정제, 실리콘계 표면 조정제, 바이닐계 표면 조정제, 불소계 표면 조정제 등을 들 수 있다.

[0053] 수지 조성물은, 예를 들면, 일 실시형태에 따른 질화 붕소 입자를 준비하는 공정(준비 공정)과, 질화 붕소 입자를 수지와 혼합하는 공정(혼합 공정)을 구비하는, 수지 조성물의 제조 방법에 의해 제조할 수 있다. 본 발명의 다른 일 실시형태는, 이와 같은 수지 조성물의 제조 방법이다.

[0054] 일 실시형태에 따른 수지 조성물의 제조 방법은, 질화 붕소 입자를 분쇄하는 공정(분쇄 공정)을 추가로 구비해도 된다. 분쇄 공정은, 준비 공정과 혼합 공정 사이에 행해져도 되고, 혼합 공정과 동시에 행해져도 된다(질화 붕소 입자를 수지와 혼합함과 동시에, 질화 붕소 입자를 분쇄해도 된다).

[0055] 분쇄 공정에서 분쇄된 질화 붕소 입자(이하, 질화 붕소 분쇄 입자라고도 한다)는, 절곡된 형상을 갖고 있다. 도 1은, 질화 붕소 분쇄 입자의 일 실시형태를 나타내는 모식도이다. 도 1에 나타나는 바와 같이, 질화 붕소 분쇄 입자(1)는, 일 실시형태에 있어서, 예를 들면, 제1 방향으로 신장하는 제1 부분(1a)과, 제1 부분(1a)으로부터 절곡되어, 제1 방향과는 상이한 제2 방향으로 신장하는 제2 부분(1b)을 구비하고 있다. 질화 붕소 분쇄 입자가 이와 같은 절곡된 형상을 갖는 것은, 질화 붕소 분쇄 입자를 주사형 전자 현미경(SEM)으로 관찰하는 것에 의해 확인할 수 있다. 구체적으로는, 도 1에 나타나는 바와 같이, 질화 붕소 분쇄 입자(1)의 SEM 화상에 있어서, 질화 붕소 분쇄 입자(1)의 일단(제1 부분(1a)의 단)(1c) 상의 임의의 점 P1과, 타단(제2 부분(1b)의 단)(1d) 상의 임의의 점 P2를 잇는 직선 L1을 그었을 때에, 질화 붕소 분쇄 입자(1)가 존재하지 않는 영역 R 상을 지나는 직선 L1을 그을 수 있는 경우, 당해 질화 붕소 분쇄 입자(1)가 절곡된 형상을 갖는다고 판단한다.

[0056] 질화 붕소 분쇄 입자의 절곡 상태는, 예를 들면 이하와 같이 정의되는 절곡 지수에 의해 평가할 수 있다. 즉, 도 1에 나타나는 바와 같이, 우선, 질화 붕소 분쇄 입자(1)의 SEM 화상에 있어서, 전술한 직선 L1 또는 그 연장선으로부터 질화 붕소 분쇄 입자(1) 상의 점까지 그은 수선의 길이가 최대가 되는 점 P3을 결정하고, 점 P3으로부터 직선 L1 또는 그 연장선에 대해서 수선 L2를 긋는다. 이때, 절곡 지수는, 직선 L1의 길이에 대한 수선 L2의 길이의 비(절곡 지수=수선 L2의 길이/직선 L1의 길이)로서 정의된다. 직선 L1의 길이 및 수선 L2의 길이의 측정은, SEM 화상을 화상 해석 소프트웨어(예를 들면, 주식회사 마운테크제의 「Mac-view」)에 도입하여 행해도 된다.

[0057] 절곡 지수가 클수록, 질화 붕소 분쇄 입자가 보다 크게(보다 예각인 각도로) 절곡되어 있는 것을 의미한다. 질화 붕소 분쇄 입자의 절곡 지수는, 0.2 이상, 0.3 이상, 0.4 이상, 0.5 이상, 0.6 이상, 0.7 이상, 0.8 이상, 0.9 이상, 1.0 이상, 1.5 이상, 2.0 이상, 또는 3.0 이상이어도 되고, 10 이하, 8.0 이하, 6.0 이하, 5.0 이하, 4.0 이하여도 된다. 한편, 하나의 질화 붕소 분쇄 입자에 대해서 복수의 직선 L1을 그을 수 있지만, 질화 붕소 분쇄 입자의 절곡 지수가 상기의 범위가 되는 직선 L1을 적어도 1개 그을 수 있으면, 질화 붕소 분쇄 입자의 절곡 지수가 상기의 범위라고 한다. 이하, 직선 L1이 관련되는 수치 범위에 대하여, 마찬가지이다.

[0058] 직선 L1의 길이는, 10 μm 이상, 20 μm 이상, 30 μm 이상, 40 μm 이상, 또는 50 μm 이상이어도 되고, 150 μm 이하 또는 100 μm 이하여도 된다. 수선 L2의 길이는, 10 μm 이상, 20 μm 이상, 30 μm 이상, 40 μm 이상, 또는 50 μm 이상이어도 되고, 150 μm 이하 또는 100 μm 이하여도 된다.

[0059] 제1 부분(1a)(제1 방향)과 제2 부분(1b)(제2 방향)이 이루는 각도는, 20~150° 여도 된다. 당해 각도는, 30° 이상, 40° 이상, 50° 이상, 또는 60° 이상이어도 되고, 140° 이하, 120° 이하, 또는 100° 이하여도 된다.

[0060] 제1 부분(1a)(제1 방향)과 제2 부분(1b)(제2 방향)이 이루는 각도는, 이하와 같이 정의된다. 즉, 도 1에 나타나는 바와 같이, 점 P3과 질화 붕소 분쇄 입자(1)의 일단(제1 부분(1a)의 단)(1c) 상의 점 P1을 직선 L3으로 잇고, 점 P3과 타단(제2 부분(1b)의 단)(1d) 상의 점 P2를 직선 L4로 잇는다. 이때에, 직선 L3과 직선 L4가 이루

는 각도 φ를, 제1 부분(1a)(제1 방향)과 제2 부분(1b)(제2 방향)이 이루는 각도라고 정의한다.

[0061] 제1 부분(1a) 및 제2 부분(1b)의 길이는, 각각 독립적으로, 10㎛ 이상, 20㎛ 이상, 30㎛ 이상, 40㎛ 이상, 또는 50㎛ 이상이어도 되고, 150㎛ 이하, 또는 100㎛ 이하여도 된다.

[0062] 제1 부분(1a)의 길이는, 전술한 직선 L3의 길이로서 정의된다. 제2 부분의 길이는, 전술한 직선 L4의 길이로서 정의된다. 제1 부분(1a) 및 제2 부분(1b)의 길이의 측정은, SEM 화상을 화상 해석 소프트웨어(예를 들면, 주식회사 마운테크제의 「Mac-view」)에 도입하여 행해도 된다.

[0063] 제1 부분(1a) 및 제2 부분(1b)의 어스펙트비는, 각각 독립적으로, 1.1 이상, 1.2 이상, 1.3 이상, 1.4 이상, 1.5 이상, 2.0 이상, 또는 3.0 이상이어도 되고, 12.0 이하, 10.0 이하, 9.0 이하, 8.0 이하, 7.0 이하, 또는 6.0 이하여도 된다.

[0064] 제1 부분의 어스펙트비는, 상기 제1 부분의 길이(L3)와, 당해 길이를 갖는 방향에 수직한 방향에 있어서의 최대 길이(L5)의 비(L3/L5)로서 정의된다. 제1 부분의 길이를 갖는 방향에 수직한 방향에 있어서의 최대 길이(L5)는, 제1 부분의 길이(L3)와 마찬가지의 방법으로 측정할 수 있다. 제2 부분의 어스펙트비에 대해서는, 상기 정의의 「제1 부분」을 「제2 부분」이라고 바꾸어 읽어 정의된다.

[0065] 상기의 수지 조성물은, 예를 들면 방열재로서 이용할 수 있다. 방열재는, 예를 들면, 수지 조성물을 경화시키는 것에 의해 제조할 수 있다. 수지 조성물을 경화시키는 방법은, 수지 조성물이 함유하는 수지(및 필요에 따라서 이용되는 경화제)의 종류에 따라서 적절히 선택된다. 예를 들면, 수지가 에폭시 수지이고, 전술한 경화제가 함께 이용되는 경우, 가열에 의해 수지를 경화시킬 수 있고, 가열과 함께 가압이 행해져도 된다.

[0066] **실시예**

[0067] 이하, 실시예에 의해 본 발명을 구체적으로 설명한다. 단, 본 발명은 하기의 실시예로 한정되는 것은 아니다.

[0068] (실시예 1)

[0069] 괴상의 탄화 붕소 입자를 분쇄기에 의해 분쇄하여, 평균 입자경이 10㎛인 탄화 붕소 분말을 얻었다. 얻어진 탄화 붕소 분말 100질량부와, 붕산 9질량부를 혼합하여, 카본 도가니에 충전하고, 카본 도가니의 개구부를 카본 시트(NeoGraf사제)로 덮고, 카본 도가니의 덮개와 카본 도가니로 카본 시트를 협지함으로써, 카본 시트를 고정했다. 덮개를 한 카본 도가니를 저항 가열로 내에서, 질소 가스 분위기하에서, 2000℃, 0.85MPa의 조건에서 20시간 가열함으로써, 카본 시트 상에 입자가 생성되었다.

[0070] 카본 시트 상에 생성된 입자의 일부를 회수하고, X선 회절 장치(주식회사 리가쿠제, 「ULTIMA-IV」)를 이용하여 X선 회절 측정했다. 이 X선 회절 측정 결과, 및 비교 대상으로서 덴카 주식회사제의 질화 붕소 분말(GP 그레이드)의 X선 회절 측정 결과를 각각 도 2에 나타낸다. 도 2로부터 알 수 있는 바와 같이, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되어, 질화 붕소 입자가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 또한, 얻어진 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 3에 나타낸다. 얻어진 질화 붕소 입자 중 하나(도 3에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 기둥상의 형상을 갖고 있었다. 당해 질화 붕소 입자의 최대 길이는 373㎛이고, 어스펙트비는 7.5였다.

[0071] (실시예 2)

[0072] 혼합물 중의 탄화 붕소 분말과 붕산의 함유량을, 탄화 붕소 분말 97질량부에 대해서, 붕산 12질량부(탄화 붕소 분말 100질량부에 대해서, 붕산 12.4질량부)로 변경한 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지의 조건에서 카본 시트 상에 입자를 생성시켰다. 카본 시트 상에 생성된 입자의 일부를 회수하고, X선 회절 측정한 바, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되어, 질화 붕소 입자가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 얻어진 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 4에 나타낸다. 얻어진 질화 붕소 입자 중 하나(도 4에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 2방향으로 분기하는 분기 구조를 갖고 있었다. 당해 질화 붕소 입자의 최대 길이는 365㎛이고, 어스펙트비는 8.9였다.

[0073] (실시예 3)

[0074] 혼합물 중의 탄화 붕소 분말과 붕산의 함유량을, 탄화 붕소 분말 100질량부에 대해서, 붕산 20질량부로 변경한 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지의 조건에서 카본 시트 상에 입자를 생성시켰다. 카본 시트 상에 생성된 입자의 일부를 회수하고, X선 회절 측정한 바, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되어, 질화 붕소 입자가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 얻어진 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 5에 나타낸다. 얻어진 질화 붕소 입자 중 하나(도 5에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 3방향으로 분기하는 분기 구조를 갖고 있었다. 당

해 질화 붕소 입자의 최대 길이는 206㎛이고, 어스펙트비는 1.6이었다.

[0075] (실시예 4)

[0076] 카본 시트 표면을 #80의 연마지로 연마하고, 연마한 카본 시트 표면의 800㎛×800㎛ 범위의 산술 평균 거칠기를 레이저 현미경(레이저테크사제, Optelics HYBRID)을 이용하여 측정한 바, 산술 평균 거칠기는 25㎛였다. 이 연마한 카본 시트를 사용한 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지의 조건에서 카본 시트 상에 입자를 생성시켰다. 카본 시트 상에 생성된 입자의 일부를 회수하고, X선 회절 측정한 바, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되어, 질화 붕소 입자가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 얻어진 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 6에 나타낸다. 얻어진 질화 붕소 입자 중 하나(도 6에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 덤벨상의 형상을 갖고 있었다. 당해 질화 붕소 입자의 최대 길이는 413㎛이고, 어스펙트비는 3.3이었다.

[0077] (실시예 5)

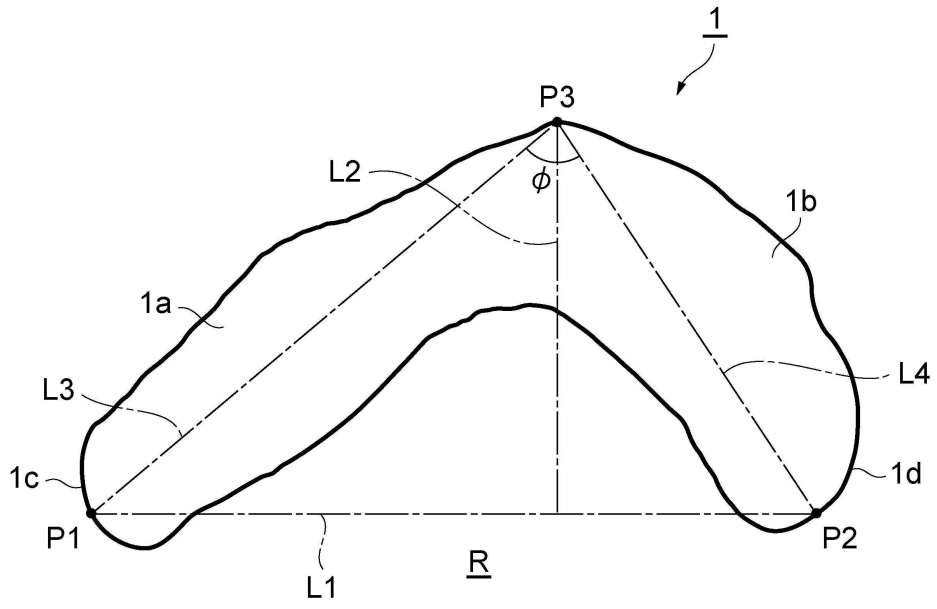
[0078] 카본 시트를 200℃의 건조기 중에서 1시간 건조시켜 사용한 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지의 조건에서 카본 시트 상에 입자를 생성시켰다. 카본 시트 상에 생성된 입자의 일부를 회수하고, X선 회절 측정한 바, 질화 붕소에서 유래하는 피크만이 검출되어, 질화 붕소 입자가 생성된 것을 확인할 수 있었다. 얻어진 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 7에 나타낸다. 얻어진 질화 붕소 입자 중 하나(도 7에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 중공 형상을 갖고 있었다. 당해 질화 붕소 입자의 최대 길이는 186㎛이고, 어스펙트비는 2.6, 외각부의 두께는 3.2㎛였다. 또한, 당해 질화 붕소 입자는, 중공부의 면적 비율이 53%인 단면을 갖고 있었다.

[0079] (실시예 6)

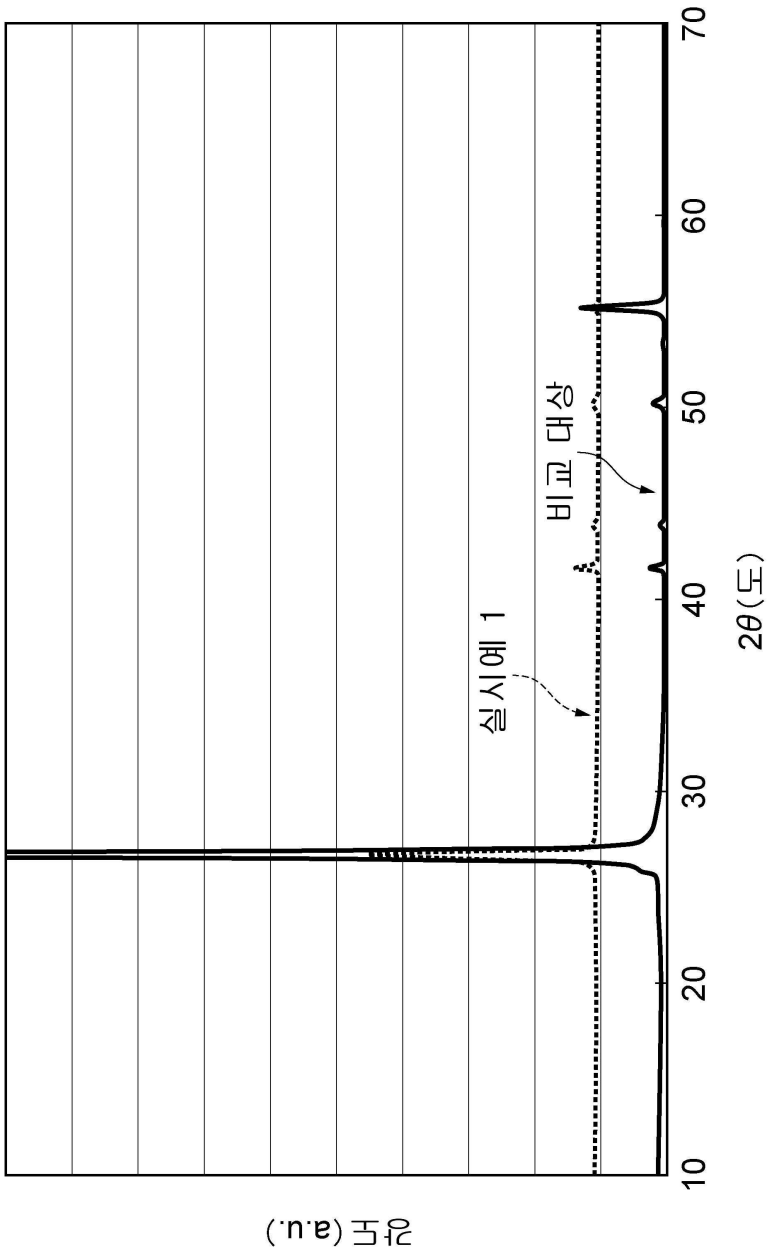
[0080] 실시예 1에서 얻어진 질화 붕소 입자를, 알루미나 유발에 1g 투입하고, 알루미나 유봉을 이용하여 1분간 분쇄했다. 분쇄한 질화 붕소 입자의 SEM 화상을 도 8에 나타낸다. 분쇄한 질화 붕소 입자 중 하나(도 8에 있어서 화살표로 나타낸 질화 붕소 입자)는, 절곡된 형상을 갖고 있었다. 계속해서, 나프탈렌형 에폭시 수지(DIC사제, HP4032) 100질량부와, 경화제로서 이미다졸 화합물(시코쿠 화성사제, 2E4MZ-CN) 10질량부를 혼합한 후, 분쇄한 질화 붕소 입자 30질량부를 추가로 혼합하여 수지 조성물을 얻었다. 이 수지 조성물을, 500Pa의 감압 탈포를 10분간 행하고, PET제 시트 상에 두께가 1.0㎜가 되도록 도포했다. 그 후, 온도 150℃, 압력 160kg/cm^2의 조건에서 60분간의 가열 및 가압을 행한 바, 두께 0.5㎜의 시트가 얻어졌다.

도면

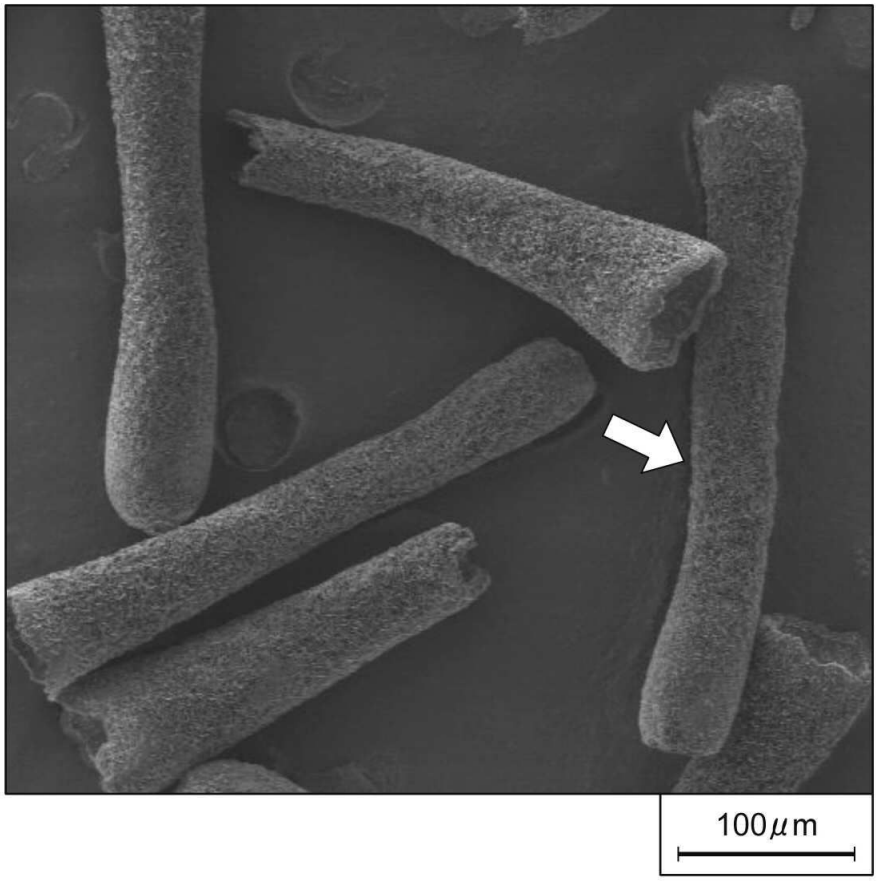
도면1



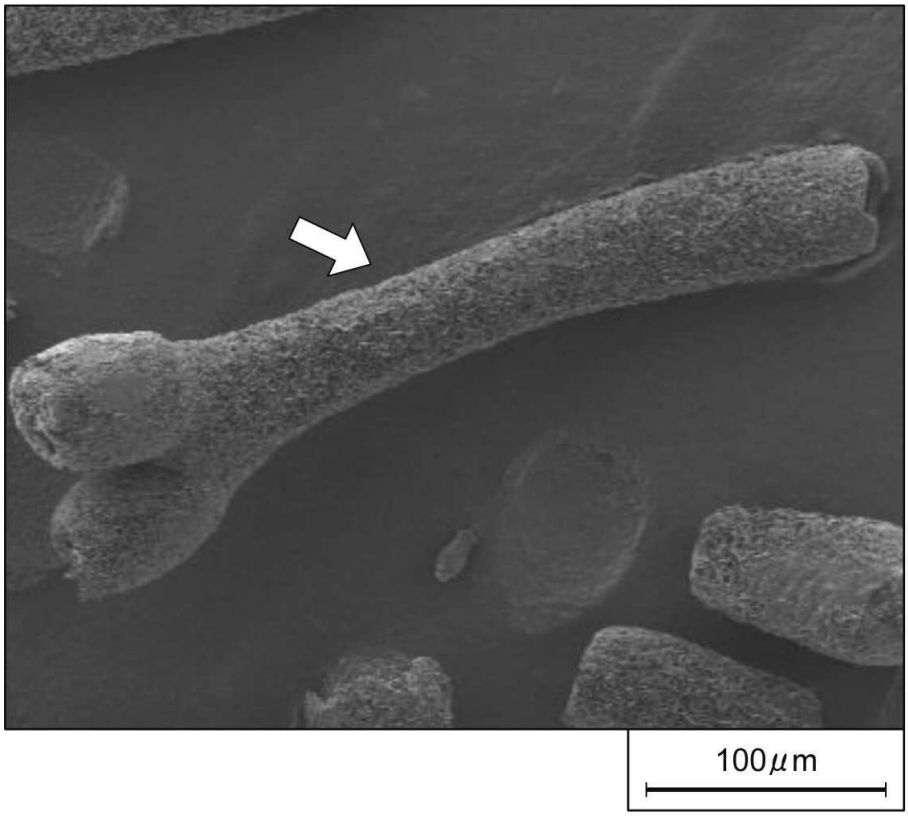
도면2



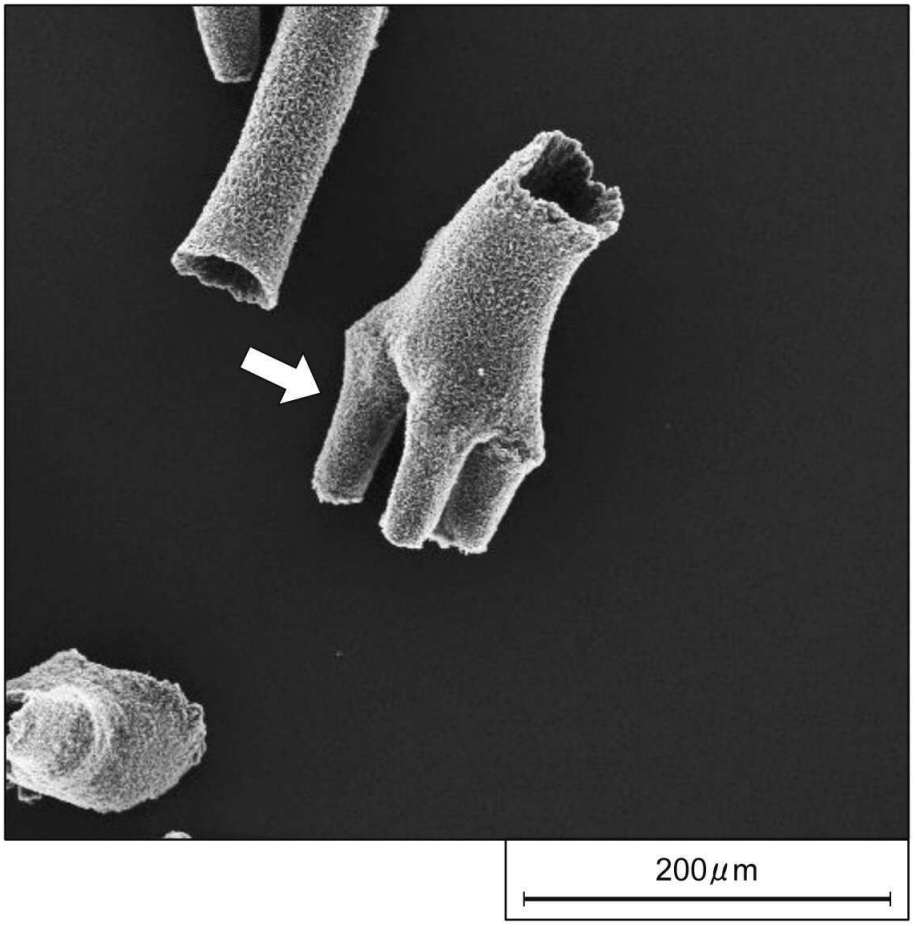
도면3



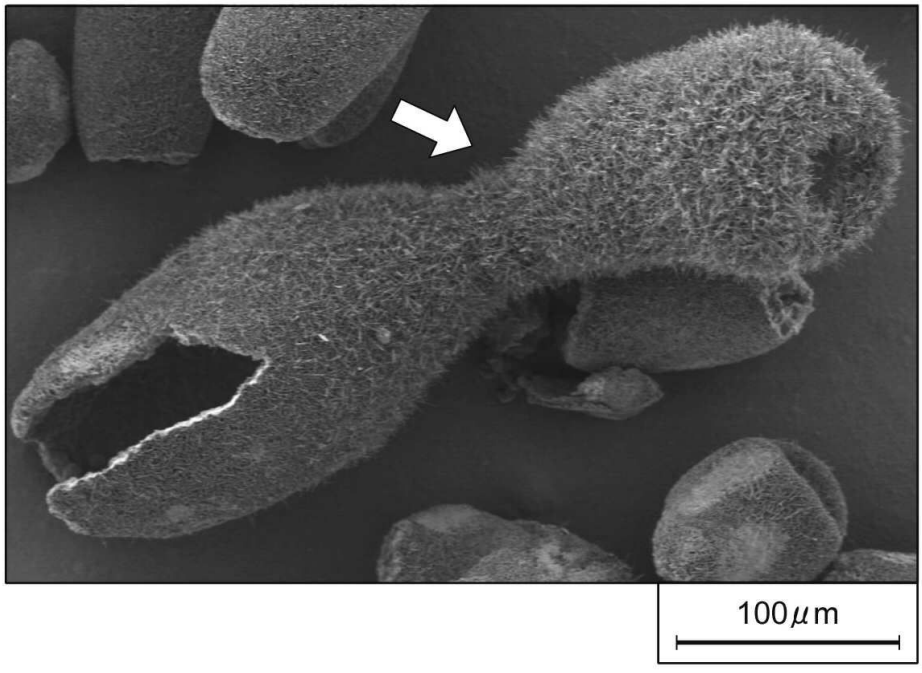
도면4



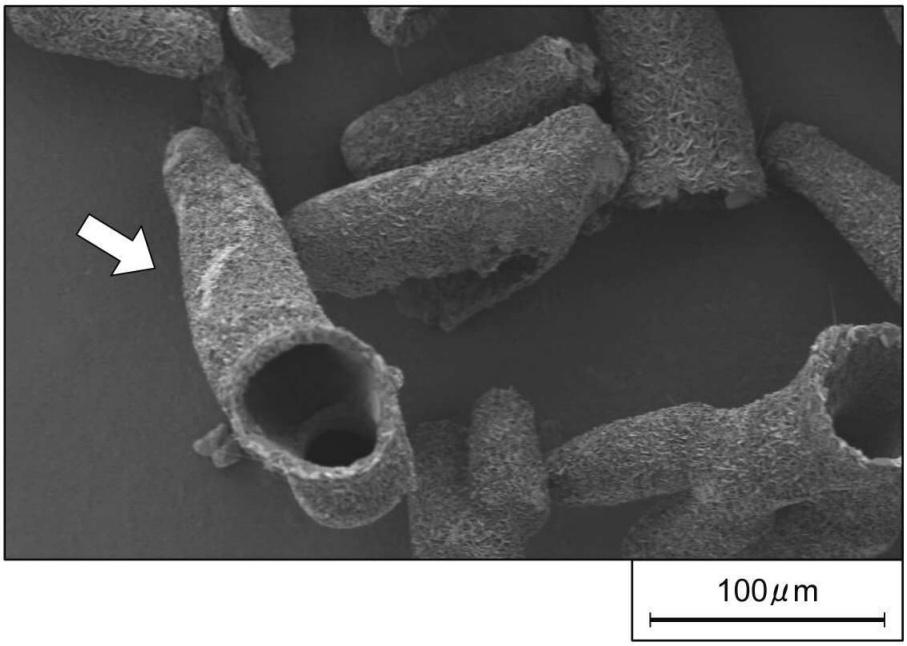
도면5



도면6



도면7



도면8

