(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2023년01월12일
(11) 등록번호 10-2487816
(24) 등록일자 2023년01월09일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 71/02 (2006.01) *C08G 65/26* (2006.01)
C08J 3/075 (2006.01) *C08K 5/00* (2006.01)
C08L 61/28 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08L 71/02 (2013.01)
C08G 65/2609 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2022-7012192(분할)
(22) 출원일자(국제) 2018년08월31일
심사청구일자 2022년05월04일
(85) 번역문제출일자 2022년04월12일
(65) 공개번호 10-2022-0050241
(43) 공개일자 2022년04월22일
(62) 원출원 특허 10-2020-7006299
원출원일자(국제) 2018년08월31일
심사청구일자 2020년03월03일
(86) 국제출원번호 PCT/US2018/049218
(87) 국제공개번호 WO 2019/050806
국제공개일자 2019년03월14일
(30) 우선권주장
62/555,954 2017년09월08일 미국(US)
16/105,456 2018년08월20일 미국(US)
(56) 선행기술조사문헌
KR1020040002866 A*
US20040097635 A1*
JP2005508767 A
JP2004161996 A
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
허니웰 인터내셔날 인코포레이티드
미국 노스캐롤라이나 28202 샬롯 사우스 민트 스트리트 855
(72) 발명자
장, 리키앙
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.
두안, 후이펭
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인씨엔에스

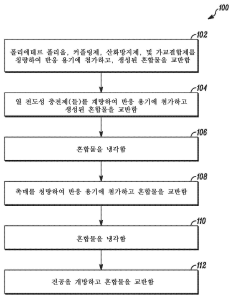
전체 청구항 수 : 총 8 항 심사관 : 권오은

(54) 발명의 명칭 **실리콘-무함유 열 겔**

(57) 요 약

본 발명은 발열 전자 디바이스, 예컨대 컴퓨터 칩으로부터 방열 구조체, 예컨대 열 확산기(heat spreader) 및 히트 싱크(heat sink)로 열을 전달하는 데 유용한 실리콘-무함유 겔을 제공한다. 열 계면 재료는 폴리에테르 폴리올, 가교결합제, 커플링제, 산화방지제, 촉매, 및 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 포함한다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
C08G 65/2678 (2013.01)
C08J 3/075 (2013.01)
C08K 5/005 (2013.01)
C08L 61/28 (2013.01)
C08K 2201/001 (2013.01)

(72) 발명자
판, 롱웨이
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.
장, 퀴
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.
리우, 야 쿤
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.
강, 하이강
미국 07950 뉴저지 모리스플레인스 피.오. 박스 377 테이버로드 115 엠/에스 4디3 페튼 서비시스 허니웰 인터내셔널인크.

명 세 서

청구범위

청구항 1

열 겔(thermal gel)의 제조 방법으로서,

적어도 하나의 폴리에테르 폴리올, 적어도 하나의 커플링제, 적어도 하나의 산화방지제, 및 적어도 하나의 가교결합제를 반응 용기에 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계로서,

상기 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올은 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재하고, 상기 폴리에테르 폴리올은 글리세린과 프로필렌 옥사이드 및 에틸렌 옥사이드의 반응 생성물로서 형성되고 200 내지 10000 달톤의 분자량을 갖는 바이-올 중합체이고;

상기 적어도 하나의 가교결합제는 복수의 반응성 아민 기를 포함하며, 상기 가교결합제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.4 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하고;

상기 적어도 하나의 커플링제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.1 중량% 내지 5 중량%의 양으로 존재하는, 상기 혼합물을 형성하는 단계;

상기 반응 용기에 촉매를 첨가하는 단계로서, 상기 촉매는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.3 중량% 내지 0.6 중량%의 양으로 존재하는, 상기 촉매를 첨가하는 단계;

상기 혼합물을 교반하는 단계;

상기 반응 용기에 적어도 하나의 입자형 열 전도성 충전제를 첨가하는 단계로서, 상기 적어도 하나의 입자형 열 전도성 충전제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 85 중량% 내지 98 중량% 미만의 양으로 존재하는, 상기 적어도 하나의 입자형 열 전도성 충전제를 첨가하는 단계; 및

상기 혼합물을 실온으로 냉각시키는 단계

를 포함하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 적어도 하나의 산화방지제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.2 중량% 내지 0.4 중량%의 양으로 존재하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 열 겔은 1 중량% 미만의 양의 실리콘 함유 성분들을 포함하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올은 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 1.2 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 가교결합제는 알킬화 멜라민 포름알데하이드 수지인,

열 겔의 제조 방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 산화방지제는 페놀-유형 산화방지제, 아민-유형 산화방지제, 또는 입체 장애 황 함유 페놀계 산화방지제로 이루어진 군으로부터 선택되는 적어도 하나의 산화방지제를 포함하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 촉매는 아민 중화된 벤젠 설폰산, 아민 중화된 다이노닐나프탈렌 다이설폰산 또는 아민 중화된 다이노닐나프탈렌설폰산 또는 다른 유형의 열 산 발생제를 포함하는,

열 겔의 제조 방법.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 적어도 하나의 입자형 열 전도성 충전제는 제1 입자형 열 전도성 충전제, 제2 입자형 열 전도성 충전제, 및 제3 입자형 열 전도성 충전제를 포함하고;

상기 제1 입자형 열 전도성 충전제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 35 중량% 내지 50 중량%의 양으로 존재하고;

상기 제2 입자형 열 전도성 충전제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재하고;

상기 제3 입자형 열 전도성 충전제는 상기 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재하는,

열 겔의 제조 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] <u>관련 출원의 상호 참조</u>

[0002] 본 출원은 2018년 8 월 20일자로 출원되고 발명의 명칭이 "실리콘-무함유 열 겔"(SILICONE-FREE THERMAL GEL)인 미국 특허 출원 제16/105,456호에 대한 우선권을 주장하고, 또한 2017년 9월 8일자로 출원되고 발명의 명칭

이 "실리콘-무함유 열 겔"인 미국 가특허 출원 제62/555,954호의 타이틀 35, U.S.C. §119(e) 하에서의 이득을 주장하며, 이들 출원의 개시 내용은 전체적으로 본 명세서에 참고로 명백히 포함된다.

[0003] 기술분야

[0004] 본 발명은 일반적으로 열 계면 재료, 및 더욱 상세하게는 열 계면 재료에 사용되는 실리콘-무함유 열 겔에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0005] 열 계면 재료(TIM) 및 열 겔은 중앙 처리 장치, 비디오 그래픽 어레이(array), 서버(server), 게임 콘솔(game console), 스마트폰, LED 보드(board) 등과 같은 전자 구성요소로부터 열을 소산시키기 위해 널리 사용된다. 열 계면 재료는 전자 구성요소로부터 히트 싱크(heat sink)와 같은 열 확산기(heat spreader)로 과잉 열을 전달하는 데 전형적으로 사용된다.

[0006] 전통적인 열 겔은 실리콘 함유 화합물이며, 이는 충전제에 대한 양호한 매트릭스일 수 있고 최종 복합재에 대해 양호한 유동성을 제공할 수 있다. 그러나, 일부 고전압 응용의 경우, 복합재의 실리콘 함유 성분들 중 일부가 복합재로부터 잠재적으로 누출되어, 부분적으로 연소될 수 있는 잔류물을 야기할 수 있으며, 비전도성 산화규소가 전극 상에 형성될 수 있는데, 이는 전극 전도성에 영향을 줄 수 있고 디바이스 기능성을 추가로 손상시킬 수 있다.

[0007] 전술한 것의 개선이 요구된다.

발명의 내용

[0008] 본 발명은 발열 전자 디바이스, 예컨대 컴퓨터 칩으로부터 방열 구조체, 예컨대 열 확산기 및 히트 싱크로 열을 전달하는 데 유용한 실리콘-무함유 겔의 형태의 열 계면 재료를 제공한다. 열 계면 재료는 폴리에테르 폴리올, 가교결합제, 커플링제, 산화방지제, 촉매, 및 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 포함한다.

[0009] 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔이 제공된다. 열 겔은, 열 겔의 총 중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재하는 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올을 포함하는 매트릭스; 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.3 중량% 내지 0.6 중량%의 양으로 존재하는 촉매; 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.5 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하는, 복수의 반응성 아민 기를 포함하는 가교결합제; 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.1 중량% 내지 5 중량%의 양으로 존재하는 커플링제; 및 열 겔의 총 중량을 기준으로 80 중량% 내지 98 중량%의 양으로 존재하는 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 포함한다.

[0010] 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.2 중량% 내지 0.4 중량%의 양으로 존재하는 산화방지제를 추가로 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 열 겔의 총 중량을 기준으로 1 중량% 미만의 양의 실리콘계 성분들을 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 경화 온도가 150℃ 미만이다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 폴리올은 폴리에테르 폴리올이며, 폴리에테르 폴리올은 분자량이 200 내지 10000 달톤인 바이-올 중합체이다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올은 열 겔의 총 중량을 기준으로 5 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 가교결합제는 알킬화 멜라민 포름알데하이드 수지이다.

[0011] 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 촉매는 아민 중화된 벤젠 설폰산, 아민 중화된 다이노닐나프탈렌 다이설폰산 또는 아민 중화된 다이노닐나프탈렌설폰산 또는 다른 유형의 열 산 발생제를 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 산화방지제는 페놀-유형 산화방지제, 아민-유형 산화방지제, 또는 입체 장애 황 함유 페놀계 산화방지제로 이루어진 군으로부터 선택되는 적어도 하나의 산화방지제를 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 적어도 하나의 열 전도성 충전제는 제1 열 전도성 충전제 및 제2 열 전도성 충전제를 포함하고; 제1 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 35 중량% 내지 50 중량%의 양으로 존재하고; 제2 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재하고; 제3 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재한다.

[0012] 다른 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔의 제조 방법이 제공된다. 본 방법은 적어도 하나의 폴리에테르

폴리올, 적어도 하나의 커플링제, 적어도 하나의 산화방지제, 및 적어도 하나의 가교결합제를 반응 용기에 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계로서, 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올은 열 겔의 총 중량을 기준으로 1 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재하고; 적어도 하나의 가교결합제는 복수의 반응성 아민 기를 포함하며, 상기 가교결합제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.5 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하고; 적어도 하나의 커플링제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.1 중량% 내지 5 중량%의 양으로 존재하는, 상기 단계; 반응 용기에 촉매를 첨가하는 단계로서, 촉매는 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.3 중량% 내지 0.6 중량%의 양으로 존재하는, 상기 단계; 혼합물을 교반하는 단계; 반응 용기에 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 첨가하는 단계로서, 적어도 하나의 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 80 중량% 내지 98 중량%의 양으로 존재하는, 상기 단계; 및 혼합물을 실온으로 냉각시키는 단계를 포함한다.

[0013] 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 적어도 하나의 산화방지제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 0.2 중량% 내지 0.4 중량%의 양으로 존재한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 1 중량% 미만의 양의 실리콘 함유 성분들을 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 폴리올은 폴리에테르 폴리올이며, 폴리에테르 폴리올은 분자량이 200 내지 10000 달톤인 바이-올 중합체이다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 적어도 하나의 폴리에테르 폴리올은 열 겔의 총 중량을 기준으로 5 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 가교결합제는 알킬화 멜라민 포름알데하이드 수지이다.

[0014] 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 산화방지제는 페놀-유형 산화방지제, 아민-유형 산화방지제, 또는 입체 장애 황 함유 페놀계 산화방지제로 이루어진 군으로부터 선택되는 적어도 하나의 산화방지제를 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 촉매는 아민 중화된 벤젠 설폰산, 아민 중화된 다이노닐나프탈렌 다이설폰산 또는 아민 중화된 다이노닐나프탈렌설폰산 또는 다른 유형의 열 산 발생제를 포함한다. 상기 실시 형태들 중 임의의 더욱 구체적인 일 실시 형태에서, 적어도 하나의 열 전도성 충전제는 제1 열 전도성 충전제, 제2 열 전도성 충전제, 및 제3 열 전도성 충전제를 포함하고; 제1 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 35 중량% 내지 50 중량%의 양으로 존재하고; 제2 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재하고; 제3 열 전도성 충전제는 열 겔의 총 중량을 기준으로 15 중량% 내지 25 중량%의 양으로 존재한다.

도면의 간단한 설명

[0015] 첨부 도면과 관련하여 취해진 본 발명의 실시 형태들의 하기의 설명을 참조함으로써, 본 발명의 전술한 그리고 다른 특징 및 이점과, 이들을 성취하는 방식이 더욱 명백해질 것이고 본 발명 자체가 더 잘 이해될 것이다.

도 1은 실리콘-무함유 열 겔의 제조 방법에 관한 흐름도이고;

도 2는 예 1과 관련되며, 열 사이클링 시험을 거친 후의 샘플을 나타내고;

도 3은 예 2와 관련되며, 베이킹 시험을 거친 후의 샘플을 나타내고;

도 4는 예 2와 관련되며, 열 사이클링 시험을 거친 후의 샘플을 나타내고;

도 5는 예 5 내지 예 7과 관련되며, 열 사이클링 시험을 거친 후의 샘플을 나타내고;

도 6은 예 5 내지 예 7과 관련되며, 베이킹 시험을 거친 후의 샘플을 나타내고;

도 7은 샘플의 분배 속도를 측정하기 위해 예 5 내지 예 7과 함께 사용되는 분배 기구를 예시하고;

도 8은 본 발명에 따른 열 겔의 제조 방법을 예시하는 흐름도이고;

도 9는 본 발명의 열 겔과 함께 사용되는 분배기의 사시도이다.

상응하는 도면 부호는 몇몇 도면 전체에 걸쳐 상응하는 부분을 나타낸다. 본 명세서에 기술된 예시는 본 발명의 예시적인 실시 형태를 예시하며, 그러한 예시는 어떠한 방식으로든 본 발명의 범주를 제한하는 것으로 해석되어서는 안 된다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0016] A. 열 겔

[0017] 본 발명은 열을 전자 구성요소로부터 멀어지게 전달하는 데 유용한 열 겔에 관한 것이다. 예시적인 일 실시 형

태에서, 열 겔은 폴리에테르 폴리올, 가교결합제, 커플링제, 산화방지제, 촉매, 및 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 포함한다.

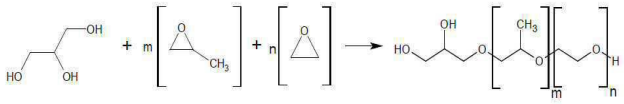
[0018] *1. 폴리에테르 폴리올*

[0019] 열 겔은 하나 이상의 폴리에테르 폴리올을 포함한다. 폴리에테르 폴리올은 중합체 매트릭스를 형성하도록 작용한다. 폴리에테르 폴리올은 중합체 사슬 내에 적어도 하나의 하이드록사이드(-OH) 기를 포함한다. 하이드록사이드 기는 폴리올들 사이에 가교결합 지점을 제공한다. 일 실시 형태에서, 폴리에테르 폴리올은 중합체 사슬 내에 각각 2개 및 3개의 하이드록사이드 기를 포함하는 바이-올 또는 트라이-올을 포함한다.

[0020] 하이드록사이드 기는 또한 제형의 유동성에 역으로 영향을 미친다. 예를 들어, 폴리올의 하이드록실 기 함량이 너무 높으면, 생성되는 가교결합의 정도가 높기 때문에 제형의 최종 유동성이 제한될 수 있다. 또한, 폴리에테르 폴리올의 분자량이 또한 열 겔의 유동 특성에 영향을 미친다. 실질적으로 높은 분자량을 갖는 폴리에테르 폴리올은 제형의 최종 유동성을 감소시키는 반면, 실질적으로 낮은 분자량을 갖는 폴리에테르 폴리올은 충전제 로딩을 위한 안정한 매트릭스 프레임을 제공할 수 없다.

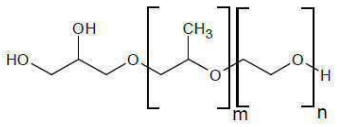
[0021] 예시적인 폴리에테르 폴리올에는 시노펙 상하이 가오지아 페트로케미칼 컴퍼니, 리미티드(Sinopec Shanghai Gaogia Petrochemical Co., Ltd.)로부터 입수가능한 330N, 또는 시노펙 상하이 가오지아 페트로케미칼 컴퍼니, 리미티드로부터 입수가능한 GEP 828이 포함된다. 다른 예시적인 폴리에테르 폴리올에는 주롱 닝우 머티리얼 컴퍼니 리미티드(JURONG NINGWU Material Company Limited)로부터 입수가능한 NJ-360N, 쿡도 케미칼 (쿤샨) 컴퍼니 리미티드(KUKDO Chemical (KunShan) Co., LTD)로부터 입수가능한 GY-7500E, 상하이 동다 케미스트리(Shanghai Dongda Chemistry)로부터 입수가능한 SD-75, 상하이 동다 케미스트리로부터 입수가능한 SD-820, 상하이 동다 케미스트리로부터 입수가능한 SD-3000L, 상하이 동다 케미스트리로부터 입수가능한 SD-7502, 및 상하이 동다 케미스트리로부터 입수가능한 SD-8003이 포함된다.

[0022] 예시적인 일 실시 형태에서, 폴리에테르 폴리올은 하기 식에 따른 염기 촉매의 존재 하에 글리세린을 프로필렌 옥사이드 및 에틸렌 옥사이드와 중합한 후 미세 정제함으로써 제조된다.



[0023]

[0024] 폴리에테르 폴리올은 하기에 나타낸 하기 화학식을 가지며, 여기서 m 및 n의 값은 반응 조건에 의해 기술되는 바와 같은 프로필렌 에폭사이드 대 에틸렌 옥사이드의 양 및 비에 따라 좌우된다. 일 실시 형태에서, m 및 n의 값은 각각 1 이상일 수 있다.



[0025]

[0026] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 1 중량%, 3 중량%, 5 중량%, 7 중량%만큼 적은 양으로, 10 중량%, 14 중량%, 18 중량%, 20 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1 중량% 내지 10 중량%, 5 중량% 내지 10 중량%, 또는 1 중량% 내지 20 중량% 내의 양으로 하나 이상의 폴리에테르 폴리올을 포함한다.

[0027] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, (겔 투과 크로마토그래피(GPC)에 의해 측정할 때) 중량 평균 분자량이 200 달톤, 400 달톤, 600 달톤, 800 달톤만큼 작거나, 1000 달톤, 5000 달톤, 10000 달톤, 20000 달톤만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 200 달톤 내지 20000 달톤 또는 400 달톤 내지 10000 달톤 이내인 하나 이상의 폴리에테르 폴리올을 포함한다.

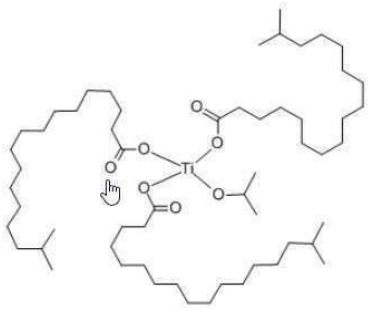
[0028] *2. 커플링제*

[0029] 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 열 전도성 충전제(들) 및 중합체 매트릭스 둘 모두와 상호작용하여 계면에서의 강한 접합을 촉진하도록 작용하는 하나 이상의 커플링제를 포함하며, 이는 충전제 입자 응집체를 파괴하고 충전제 입자를 중합체 매트릭스 중에 분산시키는 데 도움을 준다. 또한, 하나 이상의 커플링제는 폴리올 중합

체 매트릭스에 대한 열 전도성 충전제(들)의 더 우수한 접착성을 생성한다.

[0030] 예시적인 커플링제에는 실란 커플링제 및 유기금속 화합물, 예컨대 티타네이트 커플링제 및 지르코네이트 커플링제가 포함된다. 예시적인 실란 커플링제에는 지방족 기를 갖는 실란 커플링제가 포함된다. 예시적인 커플링제에는 티타늄 IV 2,2 (비스 2-프로페놀라토메틸)부타놀라토, 트리스(다이옥틸)파이로포스파토-O; 1 몰의 다이아이소옥틸 포스파이트와의 티타늄 IV 2-프로파놀라토, 트리스(다이옥틸)-파이로포스파토-O) 부가물; 티타늄 IV 비스(다이옥틸)파이로포스파토-O, 옥소에틸렌다이올라토, (부가물), 비스(다이옥틸) (하이드로겐)포스파이트-O; 티타늄 IV 비스(다이옥틸)파이로포스파토-O, 에틸렌다이올라토 (부가물), 비스(다이옥틸)하이드로겐 포스파이트; 지르코늄 IV 2,2 (비스 2-프로페놀라토메틸)부타놀라토, 트리스(다이아이소옥틸)파이로포스파토-O; 지르코늄 IV 2,2-비스(2-프로페놀라토메틸)부타놀라토, 사이클로 다이[2,2-(비스 2-프로페놀라토메틸)부타놀라토], 파이로포스파토-O,O, 및 헥사데실트라이메톡시실란이 포함된다. 다른 예시적인 실시 형태에서, 커플링제는 켄리치 케미칼 컴퍼니(Kenrich Chemical Company)로부터 입수가능한 KR-TTS이다.

[0031] 예시적인 일 실시 형태에서, 커플링제는 하기에 나타낸 하기 구조를 갖는 티타늄 IV 2-프로파놀라토, 트리스 아이소옥타데카노아토(예를 들어, 켄리치 TTS)이다.



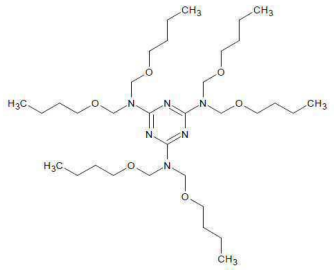
[0032]

[0033] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.01 중량%, 0.1 중량%, 1.0 중량%만큼 적은 양으로, 2.0 중량%, 3.0 중량%, 4.0 중량%, 5.0 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1 중량% 내지 5 중량% 또는 0.1 중량% 내지 1 중량% 내의 양으로 하나 이상의 커플링제를 포함한다.

[0034] *3. 가교결합제*

[0035] 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은 폴리올들 사이의 가교결합을 가능하게 하기 위해 가교결합제를 포함한다 - 예를 들어, 가교결합제는 폴리올 에테르 분자의 하이드록시 기와 반응한다. 예시적인 가교결합제에는 알킬화 멜라민 포름알데하이드 수지가 포함된다. 다른 예시적인 가교결합제에는 알넥스(Allnex)로부터 입수가능한 사이멜(Cymel)(등록상표) 가교결합제, 예를 들어, 사이멜 1158, 사이멜 303LF, 사이멜 370, 사이멜 1156, 사이멜 683, 및 사이멜 MI-97-IX가 포함된다.

[0036] 예시적인 일 실시 형태에서, 가교결합제는 중간 내지 높은 알킬화도, 낮은 내지 중간의 메틸올 함량, 및 중간 내지 높은 아미노 작용기를 갖는 부틸화 멜라민-포름알데하이드(예를 들어, 사이멜 1158)이다. 추가의 예시적인 실시 형태에서, 가교결합제는 하기에 나타낸 하기 구조를 갖는다.



[0037]

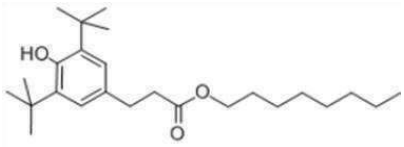
[0038] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.50 중량%, 0.75 중량%, 1 중량%만큼 적은 양으로, 2 중량%, 3 중량%, 5 중량%, 10 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.5 중량% 내지 2 중량% 또는 0.75 중량% 내지 2 중량% 내의 양으로 하나 이상의 가교결합제를 포함한다.

[0039] *4. 산화방지제*

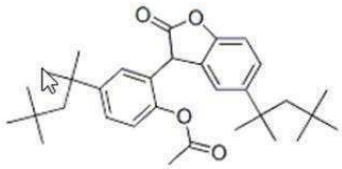
[0040] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 산화 반응을 종결시키고 유기 화합물(예를 들어, 대기 중 산소와 직접 반응하여 자유 라디칼을 생성하는 중합체)의 분해를 감소시키도록 작용하는 하나 이상의 산화방지제를 포함한다. 산화방지제는 자유 라디칼을 흡수하여 자유 라디칼 유도 분해를 억제한다. 예시적인 산화방지제에는 페놀 유형 산화방지제, 아민 유형 산화방지제, 또는 임의의 다른 적합한 유형의 산화방지제, 또는 이들의 조합이 포함된다. 페놀 또는 아민 유형 산화방지제는 또한 입체 장애 페놀 또는 아민 유형 산화방지제일 수 있다. 예시적인 페놀 유형 산화방지제에는 옥타데실 3-(3,5-다이-(tert)-부틸-4-하이드록시페닐)프로피오네이트가 포함된다. 예시적인 아민 유형 산화방지제에는 2,6-다이-tert-부틸-4-(4,6-비스(옥틸티오)-1,3,5-트라이아진-2-일아미노)페놀이 포함된다. 예시적인 입체 장애 산화방지제에는 입체 장애 황 함유 페놀계 산화방지제가 포함된다. 예시적인 산화방지제에는 바스프(BASF)로부터 입수가능한 이르가녹스(Irganox)(등록상표) 산화방지제, 예를 들어 이르가녹스 1135, 이르가녹스 5057이 포함된다. 다른 예시적인 산화방지제에는 이르가스탭(IRGASTAB) PUR68이 포함될 수 있다.

[0041] 예시적인 일 실시 형태에서, 산화방지제는 옥틸-3,5-다이-tert-부틸-4-하이드록시-하이드로신나메이트(하기에 나타낸 화학식 A)와 2(3H)-벤조푸라논, 3-[2-(아세틸옥시)-5-(1,1,3,3-테트라메틸부틸)페닐]-5-(1,1,3,3-테트라메틸부틸)(하기에 나타낸 화학식 B)(예를 들어, PUR 68)의 혼합물이다.

[0042] [화학식 A]

[0043] 

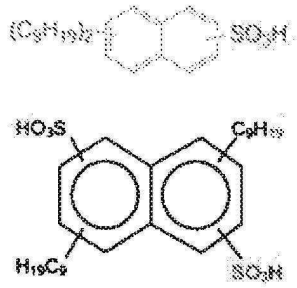
[0044] [화학식 B]

[0045] 

[0046] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.2 중량%, 0.4 중량%만큼 적은 양으로, 0.6 중량%, 0.8 중량%, 1 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.2 중량% 내지 0.4 중량% 또는 0.1 중량% 내지 1 중량% 내의 양으로 하나 이상의 산화방지제를 포함한다.

[0047] *5. 촉매*

[0048] 열 겔은 폴리올과 가교결합제 수지의 가교결합을 촉매하기 위한 하나 이상의 촉매를 추가로 포함한다. 예시적인 촉매에는 열 산 발생제, 예를 들어 설폰산 기 함유 재료가 포함된다. 설폰산 기 함유 촉매의 예시적인 유리 산은 하기에 나타낸 일반 화학식을 가질 수 있다:

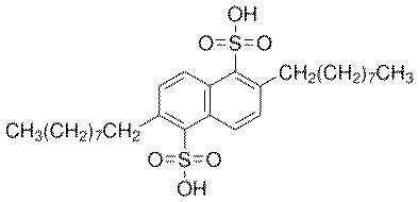
[0049] 

[0050] 예시적인 설폰산 기 함유 촉매에는 아민 블로킹된 화합물, 예컨대 아민 중화된 벤젠 설폰산, 아민 중화된 다이노닐나프탈렌 다이설폰산 또는 아민 중화된 다이노닐나프탈렌설폰산이 포함된다. 다른 예시적인 촉매는 킹 인더스트리(King Industry)로부터의 나큐어(NACURE) X49-110, 나큐어 2107, 나큐어 2500, 나큐어 2501, 나큐어

2522, 나큐어 2530, 나큐어 2558, 나큐어 XL-8224, 나큐어 4167, 나큐어 XP-297이 포함된다.

[0051] 임의의 특정 이론에 구애되고자 함이 없이, 촉매는 생성된 열 겔의 유리한 패키지 안정성 및 경화 반응 특성을 제공하는 것으로 여겨진다. 촉매로부터의 유리산은 더 빠른 경화 및 더 낮은 경화 온도를 제공하며, 아민 블로킹된 화합물은 제형의 안정성을 유지하고 더 긴 저장 수명 및 일부 경우에 더 긴 가사 시간(pot life)을 제공한다.

[0052] 예시적인 일 실시 형태에서, 촉매는 다이노닐나프탈렌다이설폰산이며, 가열될 때, 예를 들어, 80℃로 가열될 때 산을 방출하고, 하기에 나타낸 하기 구조를 갖는다(예를 들어, N-X49-110).

[0053] 

[0054] 열 겔은, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.2 중량%, 0.3 중량%만큼 적은 양으로, 0.6 중량%, 0.8 중량%, 1 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.2 중량% 내지 0.8 중량% 또는 0.3 중량% 내지 0.6 중량% 내의 양으로 촉매를 포함할 수 있다. 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 약 0.373 중량%의 양의 촉매를 포함한다.

[0055] *6. 열 전도성 충전제*

[0056] 열 겔은 하나 이상의 열 전도성 충전제를 포함한다. 예시적인 열 전도성 충전제에는 금속, 합금, 비금속, 금속 산화물 및 세라믹, 및 이들의 조합이 포함된다. 금속에는 알루미늄, 구리, 은, 아연, 니켈, 주석, 인듐, 및 납이 포함되지만 이로 한정되지 않는다. 비금속에는 탄소, 흑연, 탄소 나노튜브, 탄소 섬유, 그래핀, 질화붕소 및 질화규소가 포함되지만 이로 한정되지 않는다. 금속 산화물 또는 세라믹에는 알루미나(산화알루미늄), 질화알루미늄, 질화붕소, 산화아연, 및 산화주석이 포함되지만 이로 한정되지 않는다.

[0057] 예시적인 일 실시 형태에서, 하나 이상의 열 전도성 충전제는 40 마이크로미터(㎛) 평균 입자 크기(D50)를 갖는 알루미나(Al2O3)(예를 들어, BAK040), 5 마이크로미터(㎛) 평균 입자 크기(D50)를 갖는 알루미나(Al2O3)(예를 들어, BAK005), 및 5 마이크로미터(㎛) 평균 입자 크기(D50)를 갖는 알루미나(Al2O3)(예를 들어, AO-502)를 포함한다.

[0058] 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 15 중량%, 20 중량%, 25 중량%, 50 중량%, 85 중량%, 90 중량%만큼 적은 양으로, 92 중량%, 95 중량%, 98 중량%, 99 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 15 중량% 내지 50 중량%, 20 중량% 내지 50 중량% 또는 15 중량% 내지 99 중량%, 80 중량% 내지 99 중량%, 80 중량% 내지 98 중량%, 85 중량% 내지 95 중량%, 또는 90 중량% 내지 92 중량% 내의 양으로 하나 이상의 열 전도성 충전제를 포함할 수 있다.

[0059] 예시적인 열 전도성 충전제는, 예를 들어, 평균 입자 크기가 0.1 마이크로미터, 1 마이크로미터, 10 마이크로미터만큼 작거나, 25 마이크로미터, 40 마이크로미터, 50 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1 마이크로미터 내지 50 마이크로미터, 1 마이크로미터 내지 40 마이크로미터, 또는 10 마이크로미터 내지 25 마이크로미터 이내일 수 있다.

[0060] 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔은 제1 열 전도성 충전제, 제2 열 전도성 충전제, 및 제3 열 전도성 충전제를 포함할 수 있으며, 제1 열 전도성 충전제는 입자 크기가 40 마이크로미터이고, 제2 열 전도성 충전제는 평균 입자 크기가 5 마이크로미터이고, 제3 열 전도성 충전제는 평균 입자 크기가 0.5 마이크로미터이다.

[0061] 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 30 중량%, 35 중량%, 40 중량%만큼 적은 양으로, 45 중량%, 50 중량%, 60 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 30 중량% 내지 60 중량%, 35 중량% 내지 50 중량%, 또는 40 중량% 내지 50 중량% 내의 양으로 제1 열 전도성 충전제를 포함한다. 제1 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 30 마이크로미터, 35 마이크로미터, 40 마이크로미터만큼 작거나, 45 마이크로미터, 50 마이크로미터, 60 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 30 마이크로미터 내지 60 마이크로미터, 35 마이크로미터 내지 50 마이크로미터, 또는 40 마이크로미터 내지 45 마이크로

미터 이내일 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 5 중량%, 10 중량%, 15 중량%만큼 적은 양으로, 25 중량%, 27 중량%, 30 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 5 중량% 내지 30 중량%, 10 중량% 내지 27 중량%, 또는 15 중량% 내지 25 중량% 내의 양으로 제2 열 전도성 충전제를 추가로 포함할 수 있다. 제2 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 1 마이크로미터, 3 마이크로미터, 5 마이크로미터만큼 작거나, 7 마이크로미터, 8 마이크로미터, 10 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1 마이크로미터 내지 10 마이크로미터, 3 마이크로미터 내지 8 마이크로미터, 또는 5 마이크로미터 내지 7 마이크로미터 이내일 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 10 중량%, 15 중량%, 20 중량%만큼 적은 양으로, 30 중량%, 35 중량%, 40 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 10 중량% 내지 40 중량%, 15 중량% 내지 35 중량%, 또는 20 중량% 내지 30 중량% 내의 양으로 제3 열 전도성 충전제를 추가로 포함할 수 있다. 제3 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 0.1 마이크로미터, 0.3 마이크로미터, 0.5 마이크로미터만큼 작거나, 1 마이크로미터, 1.5 마이크로미터, 2 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1 마이크로미터 내지 2 마이크로미터, 0.3 마이크로미터 내지 1.5 마이크로미터, 또는 0.5 마이크로미터 내지 1 마이크로미터 이내일 수 있다.

[0062] *7. 기타 첨가제*

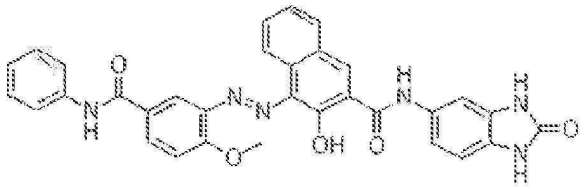
[0063] 열 겔은 착색제 또는 다른 첨가제를 또한 포함할 수 있다. 예시적인 유기 안료에는, 스위스 무텐츠 소재의 클래리언트 인터내셔널 리미티드(Clariant International Ltd)로부터의 청색 색조 벤즈이미다졸론 안료 노보펌 카르민(Novoperm Carmine) HF3C와 같은 벤즈이미다졸론이 포함된다. 예시적인 무기 안료에는 카본 블랙 및 철계 화합물(예를 들어, 아이언 그린(iron green) 또는 아이언 옥사이드 그린(iron oxide green))이 포함된다. 예시적인 철계 화합물에는 산화철 화합물, 예컨대 α-Fe_2O_3, α-$Fe_2O_3 \cdot H_2O$, Fe_3O_4, $Fe_2O_3 \cdot H_2O$, 및 이들의 조합이 포함된다. 예시적인 유기 염료에는 벤조[kl]티옥산텐-3,4-다이카르복스이미드,N-옥타데실-(8CI); 벤조티옥산텐-3,4-다이카르복실산-N-스테아릴이미드가 포함된다.

[0064] 일부 예시적인 실시 형태에서, 착색제는 α-Fe_2O_3; α-$Fe_2O_3 \cdot H_2O$; $Fe_2O_3 \cdot H_2O$; 및 Fe_3O_4로 이루어진 군으로부터 선택되는 무기 안료이다.

[0065] 일부 예시적인 실시 형태에서, 착색제는 유기 안료이다. 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 I 내지 화학식 XVI으로 이루어진 군으로부터 선택되는 유기 안료이다.

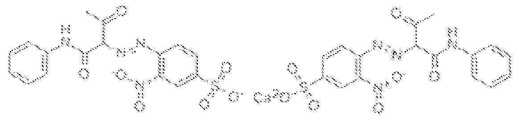
[0066] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 I의 유기 안료이며, 이는 피그먼트 레드(pigment red) 176으로도 알려져 있고 CAS 번호 12225-06-8을 갖는다.

[0067] [화학식 I]

[0068] 

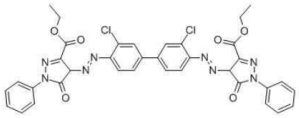
[0069] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 II의 유기 안료이며, 이는 칼슘 비스[4-[[1-[[(2-메틸페닐)아미노]카르보닐]-2-옥소프로필]아조]-3-니트로벤젠설포네이트로도 알려져 있고 CAS 번호 12286-66-7을 갖는다.

[0070] [화학식 II]

[0071] 

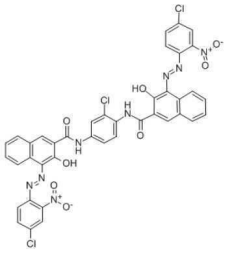
[0072] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 III의 유기 안료이며, 이는 다이에틸 4,4'-[(3,3'-다이클로로[1,1'-바이페닐]-4,4'-다이일)비스(아조)]비스[4,5-다이하이드로-5-옥소-1-페닐-1h-피라졸-3-카르복실레이트]로도 알려져 있고 CAS 번호 6358-87-8을 갖는다.

[0073] [화학식 III]

[0074] 

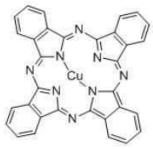
[0075] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 IV의 유기 안료이며, 이는 2,2'-[(3,3'-다이클로로[1,1'-바이페닐]-4,4'-다이일)비스(아조)]비스[N-(2,4-다이메틸페닐)-3-옥소-부탄아미드로도 알려져 있고 CAS 번호 5102-83-0을 갖는다.

[0076] [화학식 IV]

[0077] 

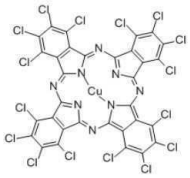
[0078] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 V의 유기 안료이며, 이는 (29H, 31H-프탈로시아니나토(2-)-N29,N30,N31,N32)구리로도 알려져 있고 CAS 번호 147-14-8을 갖는다.

[0079] [화학식 V]

[0080] 

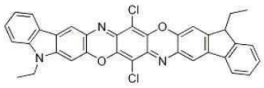
[0081] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 VI의 유기 안료이며, 이는 브릴리언트그린프탈로시아닌으로도 알려져 있고 CAS 번호 1328-53-6을 갖는다.

[0082] [화학식 VI]

[0083] 

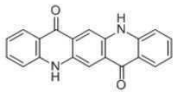
[0084] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 VII의 유기 안료이며, 이는 9,19-다이클로로-5,15-다이에틸-5,15-다이하이드로-다이인돌로[2,3-c: 2',3'-n]트라이페노다이옥사진으로도 알려져 있고 CAS 번호 6358-30-1을 갖는다.

[0085] [화학식 VII]

[0086] 

[0087] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 VIII의 유기 안료이며, 이는 5,12-다이하이드로퀸[2,3-B]아크리딘-7,14-다이온;5,12-다이하이드로퀴노[2,3-b]아크리딘-7,14-다이온으로도 알려져 있고 CAS 번호 1047-16-1을 갖는다.

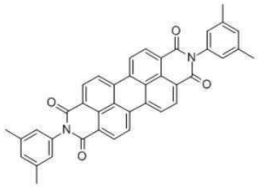
[0088] [화학식 VIII]



[0089]

[0090] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 IX의 유기 안료이며, 이는 2,9-비스(3,5-다이메틸페닐)안트라[2,1,9-def:6,5,10-d'e'f']다이아이소퀴놀린-1,3,8,10(2h,9h)-테트론으로도 알려져 있고 CAS 번호 4948-15-6을 갖는다.

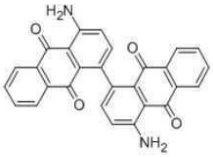
[0091] [화학식 IX]



[0092]

[0093] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 X의 유기 안료이며, 이는 4,4'-다이아미노-[1,1'-바이안트라센]-9,9',10,10'-테트라온 또는 피그먼트 레드 177로도 알려져 있고 CAS 번호 4051-63-2를 갖는다.

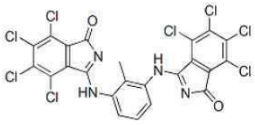
[0094] [화학식 X]



[0095]

[0096] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XI의 유기 안료이며, 이는 3,3'-[(2-메틸-1,3-페닐렌)다이이미노]비스[4,5,6,7-테트라클로로-1H-아이소인돌-1-온]으로도 알려져 있고 CAS 번호 5045-40-9를 갖는다.

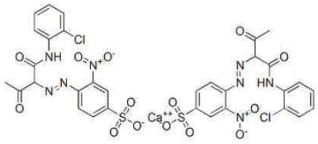
[0097] [화학식 XI]



[0098]

[0099] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XII의 유기 안료이며, 이는 칼슘 비스[4-[[1-[[(2-클로로페닐)아미노]카르보닐]-2-옥소프로필]아조]-3-니트로벤젠설포네이트]로도 알려져 있고 CAS 번호 71832-85-4를 갖는다.

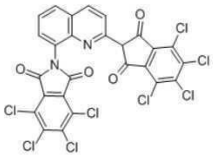
[0100] [화학식 XII]



[0101]

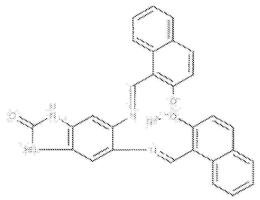
[0102] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XIII의 유기 안료이며, 이는 3,4,5,6-테트라클로로-N-[2-(4,5,6,7-테트라클로로-2,3-다이하이드로-1,3-다이옥소-1H-인덴-2-일)-8-퀴놀릴]프탈이미드로도 알려져 있고 CAS 번호 30125-47-4를 갖는다.

[0103] [화학식 XIII]

[0104] 

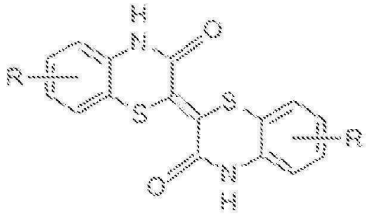
[0105] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XIV의 유기 안료이며, 이는 [1,3-다이하이드로-5,6-비스[[(2-하이드록시-1-나프틸)메틸렌]아미노]-2H-벤즈이미다졸-2-오나토(2-)-N5,N6,O5,O6]니켈로도 알려져 있고 CAS 번호 42844-93-9를 갖는다.

[0106] [화학식 XIV]

[0107] 

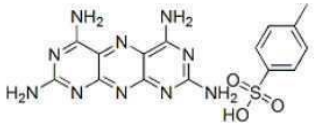
[0108] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XV(여기서, 각각의 R은 독립적으로 수소, 알킬, 아릴, 및 할로겐으로 이루어진 군으로부터 선택됨)의 유기 안료이며, 이는 피그먼트 레드 279로도 알려져 있고 CAS 번호 832743-59-6을 갖는다. 더욱 더 특정한 실시 형태에서, 각각의 R은 독립적으로 수소, C_1-C_6 알킬, 페닐, 및 할로겐으로 이루어진 군으로부터 선택된다. 다른 더욱 특정한 실시 형태에서, 각각의 R은 염소이고, 더욱 더 특히, 각각의 R은 7-클로로이다.

[0109] [화학식 XV]

[0110] 

[0111] 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 하기 화학식 XVI의 유기 안료이며, 이는 염기-가수분해된, 피리미도[5,4-g]프테리딘-2,4,6,8-테트라민, 4-메틸벤젠설포네이트로도 알려져 있고 CAS 번호 346709-25-9를 갖는다.

[0112] [화학식 XVI]

[0113] 

[0114] 하나의 더 특정 실시 형태에서, 착색제는 α-Fe_2O_3, 예컨대 바이 얀(BAI YAN)으로부터 입수가능한 아이언 레드(Iron Red)이다. 다른 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 α-$Fe_2O_3 \cdot H_2O$, 예컨대 바이 얀으로부터 입수가능한 아이언 옐로(Iron Yellow)이다. 또 다른 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 Fe_3O_4, 예컨대 바이 얀으로부터 입수가능한 아이언 블루(Iron Blue)이다. 또 다른 더욱 특정한 실시 형태에서, 착색제는 화학식 $C_{32}H_{24}N_6O_5$를 갖는 화학식 I의 안료, 예컨대 스위스 무텐츠 소재의 클래리언트 인터내셔널 리미티드로부터 입수가능한 노보펌 카르민 HF3C이다.

[0115] 다른 실시 형태에서, 첨가제는 아이언 그린 안료일 수 있다.

[0116] 본 발명의 열 겔은 일부 다른 첨가제, 예컨대 안료 또는 염료를 추가로 포함할 수 있다. 일 실시 형태에서, 열

겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.001 중량%, 0.01 중량%, 0.05 중량%, 0.08 중량%만큼 적은 양으로, 2 중량%, 5 중량%, 10 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.001 중량% 내지 10 중량%, 0.05 중량% 내지 2 중량%, 또는 0.08 중량% 내지 5 중량% 내의 양으로 안료 성분을 포함한다.

[0117] 예시적인 일 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 30 중량%, 35 중량%, 또는 40 중량%만큼 적은 양으로, 50 중량%, 55 중량%, 또는 60 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 30 중량% 내지 60 중량%, 35 중량% 내지 55 중량%, 또는 40 중량% 내지 50 중량% 내의 양으로 제1 열 전도성 충전제를 포함할 수 있다. 제1 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 30 마이크로미터, 35 마이크로미터, 또는 40 마이크로미터만큼 작거나, 45 마이크로미터, 50 마이크로미터, 또는 60 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 30 마이크로미터 내지 60 마이크로미터, 35 마이크로미터 내지 50 마이크로미터, 40 마이크로미터 내지 45 마이크로미터, 또는 35 마이크로미터 내지 45 마이크로미터 이내일 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 5 중량%, 10 중량%, 또는 15 중량%만큼 적은 양으로, 25 중량%, 27 중량%, 또는 30 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 5 중량% 내지 30 중량%, 10 중량% 내지 27 중량%, 또는 15 중량% 내지 25 중량% 내의 양으로 제2 열 전도성 충전제를 추가로 포함할 수 있다. 제2 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 1 마이크로미터, 3 마이크로미터, 또는 5 마이크로미터만큼 작거나, 10 마이크로미터, 15 마이크로미터, 또는 20 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1 마이크로미터 내지 20 마이크로미터, 3 마이크로미터 내지 15 마이크로미터, 또는 5 마이크로미터 내지 10 마이크로미터 이내일 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 5 중량%, 10 중량%, 또는 15 중량%만큼 적은 양으로, 25 중량%, 27 중량%, 또는 30 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 5 중량% 내지 30 중량%, 10 중량% 내지 27 중량%, 또는 15 중량% 내지 25 중량% 내의 양으로 제3 열 전도성 충전제를 추가로 포함할 수 있다. 제3 열 전도성 충전제는, 예를 들어 평균 입자 크기가 0.1 마이크로미터, 0.3 마이크로미터, 또는 0.5 마이크로미터만큼 작거나, 1 마이크로미터, 1.5 마이크로미터, 또는 2 마이크로미터만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1 마이크로미터 내지 2 마이크로미터, 0.3 마이크로미터 내지 1.5 마이크로미터, 또는 0.5 마이크로미터 내지 1 마이크로미터 이내일 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 1 중량%, 3 중량%, 5 중량%, 7 중량%만큼 적은 양으로, 10 중량%, 14 중량%, 18 중량%, 20 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1 중량% 내지 10 중량%, 5 중량% 내지 10 중량%, 또는 1 중량% 내지 20 중량% 내의 양으로 폴리에테르 폴리올을 추가로 포함할 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.50 중량%, 0.75 중량%, 1 중량%만큼 적은 양으로, 2 중량%, 3 중량%, 5 중량%, 10 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.5 중량% 내지 2 중량% 또는 0.75 중량% 내지 2 중량% 내의 양으로 가교결합제를 추가로 포함할 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.01 중량%, 0.1 중량%, 1.0 중량%만큼 적은 양으로, 2.0 중량%, 3.0 중량%, 4.0 중량%, 5.0 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1 중량% 내지 5 중량% 또는 0.1 중량% 내지 1 중량% 내의 양으로 커플링제를 추가로 포함할 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.2 중량%, 0.4 중량%만큼 적은 양으로, 0.6 중량%, 0.8 중량%, 1 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.2 중량% 내지 0.4 중량% 또는 0.1 중량% 내지 1 중량% 내의 양으로 산화방지제를 추가로 포함할 수 있다. 예시적인 열 겔은, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.1 중량%, 0.2 중량%, 0.3 중량%만큼 적은 양으로, 0.6 중량%, 0.8 중량%, 1 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.2 중량% 내지 0.8 중량% 또는 0.3 중량% 내지 0.6 중량% 내의 양으로 촉매를 추가로 포함할 수 있다. 예시적인 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 0.001 중량%, 0.01 중량%, 0.05 중량%, 0.08 중량%만큼 적은 양으로, 2 중량%, 5 중량%, 10 중량%만큼 많은 양으로, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.001 중량% 내지 10 중량%, 0.05 중량% 내지 2 중량%, 또는 0.08 중량% 내지 5 중량% 내의 양으로 첨가제(예를 들어, 안료)를 추가로 포함할 수 있다.

[0118] 본 발명의 열 겔에는 어떠한 실리콘 함유 성분도 없을 수 있다. 실리콘 함유 성분에는 중합된 실록산 또는 폴리실록산, 및 규소 원자에 부착된 작용기(예를 들어, 유기 측기)를 갖는 무기 규소-산소 골격 사슬을 포함하는 실리콘 함유 올리고머 또는 중합체가 포함한다. 일 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기

준으로, 1 중량% 미만, 0.5 중량% 미만, 0.3 중량% 미만, 또는 0.1 중량% 미만의 양의 실리콘 함유 성분들을 포함한다.

[0119] 본 발명의 열 겔에는 또한 어떠한 규소 원자도 없을 수 있다. 일 실시 형태에서, 열 겔은, 예를 들어, 열 겔의 총 중량을 기준으로, 1 중량% 미만, 0.5 중량% 미만, 0.3 중량% 미만, 또는 0.1 중량% 미만, 또는 0.01 중량% 미만의 양의 규소 원자를 포함한다.

[0120] B. 열 겔의 형성 방법

[0121] *1. 배치식 방법*

[0122] 도 1을 참조하면, 열 겔을 제조하는 방법(100)이 도시되어 있다. 블록(102)에서는, 폴리에테르 폴리올, 커플링제, 산화방지제, 및 가교결합제를 칭량하고 반응 용기에 첨가하여 혼합물을 형성한다. 혼합물을 소정 기간 동안 교반한다. 예시적인 교반 속도는, 예를 들어 2000 rpm(분당 회전수), 2500 rpm, 3000 rpm만큼 작을 수 있거나, 3250 rpm, 3350 rpm, 3500 rpm만큼 클 수 있거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 2000 rpm 내지 3500 rpm, 2500 rpm 내지 3350 rpm, 또는 3000 rpm 내지 3250 rpm 이내일 수 있다. 교반 속도에 대한 예시적인 기간은, 예를 들어 20초, 25초, 30초만큼 짧거나, 200초, 250초, 275초, 300초만큼 길거나, 또는 전술한 값들 중 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 20초 내지 300초, 25초 내지 275초, 30초 내지 250초, 또는 30초 내지 200초 이내이다. 예시적인 실시 형태에서, 혼합물은 3000 rpm 미만의 속도로 3분 동안 교반된다.

[0123] 이어서, 방법(100)은 블록(104)으로 진행되는데, 여기서는 반응 용기에 하나 이상의 열 전도성 충전제를 첨가한다. 이어서, 생성되는 혼합물을 소정 기간 동안 교반한다. 예시적인 교반 속도는, 예를 들어 2000 rpm(분당 회전수) 미만, 2250 rpm, 2500 rpm만큼 작을 수 있거나, 2600 rpm, 2750 rpm, 3000 rpm만큼 클 수 있거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 2000 rpm 내지 3000 rpm, 2250 rpm 내지 2750 rpm, 또는 2500 rpm 내지 2600 rpm 이내일 수 있다. 교반 속도에 대한 예시적인 기간은, 예를 들어 1분, 2분, 3분만큼 짧거나, 4분, 4.5분, 5분만큼 길거나, 또는 전술한 값들 중 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1분 내지 5분, 2분 내지 4.5분, 또는 3분 내지 4분 이내이다. 예시적인 실시 형태에서, 혼합물은 2500 rpm 미만의 속도로 3분 동안 교반된다.

[0124] 이어서, 방법(100)은 블록(106)으로 진행되는데, 여기서는 혼합물을 실온으로 냉각한다. 이어서, 방법(100)은 블록(108)으로 이동하는데, 여기서는 촉매를 칭량하여 반응 용기에 첨가한다. 이어서, 생성되는 혼합물을 소정 기간 동안 교반한다. 예시적인 교반 속도는, 예를 들어 2000 rpm(분당 회전수) 미만, 2250 rpm, 2500 rpm만큼 작을 수 있거나, 2600 rpm, 2750 rpm, 3000 rpm만큼 클 수 있거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 2000 rpm 내지 3000 rpm, 2250 rpm 내지 2750 rpm, 또는 2500 rpm 내지 2600 rpm 이내일 수 있다. 교반 속도에 대한 예시적인 기간은, 예를 들어 1분, 2분, 3분만큼 짧거나, 4분, 4.5분, 5분만큼 길거나, 또는 전술한 값들 중 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1분 내지 5분, 2분 내지 4.5분, 또는 3분 내지 4분 이내이다. 예시적인 실시 형태에서, 혼합물은 2500 rpm 미만의 속도로 3분 동안 교반된다. 이어서, 혼합물이 균일한 상일 때 반응 혼합물에 진공을 인가한다. 진공은, 예를 들어 1000 rpm, 1250 rpm, 1500 rpm만큼 작을 수 있거나, 1600 rpm, 1750 rpm, 2000 rpm만큼 클 수 있거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1000 rpm 내지 2000 rpm, 1250 rpm 내지 1750 rpm, 또는 1500 rpm 내지 1600 rpm 이내일 수 있는 낮은 회전 속도를 동반한다.

[0125] 이어서, 방법(100)은 블록(110)으로 진행되는데, 여기서는 혼합물을 실온으로 냉각한다. 냉각 후에, 방법(100)은 블록(112)으로 진행되며, 용기 내에서 진공을 개방/제거하고, 혼합물을 소정 기간 동안 교반한다. 예시적인 교반 속도는, 예를 들어 2000 rpm(분당 회전수) 미만, 2250 rpm, 2500 rpm만큼 작을 수 있거나, 2600 rpm, 2750 rpm, 3000 rpm만큼 클 수 있거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 2000 rpm 내지 3000 rpm, 2250 rpm 내지 2750 rpm, 또는 2500 rpm 내지 2600 rpm 이내일 수 있다. 교반 속도에 대한 예시적인 기간은, 예를 들어 1분, 2분, 3분만큼 짧거나, 4분, 4.5분, 5분만큼 길거나, 또는 전술한 값들 중 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1분 내지 5분, 2분 내지 4.5분, 또는 3분 내지 4분 이내이다. 예시적인 실시 형태에서, 혼합물은 2500 rpm 미만의 속도로 3분 동안 교반된다.

[0126] 일부 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은 가열된 혼합기 내에서 개별 성분들을 조합하고 그 조성물을 함께 블렌딩함으로써 제조된다. 이어서, 블렌딩된 조성물을 베이킹 없이 기재에 직접 적용할 수 있다.

[0127] *2. 2성분 방법*

[0128] 다른 예시적인 실시 형태에서, 열 겔은 제1 성분 및 제2 성분을 제조하고 제1 성분과 제2 성분을 분배기 내에서 조합함으로써 제조된다. 예를 들어, 제1 성분이 용기(202) 내에 저장되고 제2 성분이 용기(204) 내에 저장되는, 도 9에 나타나 있는 바와 같은 이중 카트리지 분배기 장치(200)가 사용될 수 있다. 제1 성분 및 제2 성분은 각각의 튜빙(206, 208)을 통해 각각 카트리지(214) 및 카트리지(216)로 공급된다. 카트리지(214)로부터, 제1 성분이 분배기(220)의 혼합 용기(210) 내로 공급된다. 유사하게, 카트리지(216)로부터, 제2 성분이 분배기(220)의 혼합 용기(210) 내로 공급된다. 이어서, 추가의 가열 없이 혼합 용기(210) 내에서 제1 성분과 제2 성분을 혼합하고, 생성되는 혼합된 조성물을 분배기(220)의 주사기(212)를 통해 공급한다. 일 실시 형태에서, 혼합된 조성물을 이어서 기재에 직접 적용할 수 있다.

[0129] 이제 도 8을 참조하면, 열 겔을 제조하는 방법(300)이 제공된다. 단계(302)에서, 제1 성분 및 제2 성분을 본 명세서에 추가로 기재된 성분들에 따라 제조한다.

[0130] *a. 제1 성분*

[0131] 예시적인 실시 형태에서, 열 겔의 제1 성분은 각각의 성분에 대한 상기 설명에 따라 폴리에테르 폴리올, 촉매, 및 적어도 하나의 열 전도성 충전제를 포함한다.

[0132] *b. 제2 성분*

[0133] 예시적인 실시 형태에서, 열 겔의 제2 성분은 상기 설명에 따라 폴리에테르 폴리올을 포함한다. 제1 성분의 폴리에테르 폴리올 및 제2 성분의 폴리에테르 폴리올이 상이한 폴리에테르 폴리올 화합물인 것이 본 발명의 범주 내에 속한다. 제1 성분의 폴리에테르 폴리올 및 제2 성분의 폴리에테르 폴리올이 동일한 폴리에테르 폴리올 화합물인 것이 또한 본 발명의 범주 내에 속한다. 열 겔의 제2 성분은 각각의 성분에 대한 상기 설명에 따라 가교결합제, 적어도 하나의 열 전도성 충전제, 및 첨가제를 추가로 포함한다.

[0134] 일단 성분들이 제조되면, 방법(300)은 단계(304)로 이동하며, 여기서는 제1 성분 및 제2 성분을, 예를 들어 0.1:1, 0.5:1, 1:1만큼 작거나, 5:1, 7.5:1, 10:1만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 0.1:1 내지 10:1 이내인 비(제1 성분:제2 성분)로 함께 혼합한다. 상이한 비는 혼합물 내에서 상이한 양의 가교결합 및 또한 상이한 경도 특성을 생성한다. 예시적인 실시 형태에서, 제1 성분 및 제2 성분은 정적 혼합기에 의해 1:1 비로 혼합된다.

[0135] 제1 성분 및 제2 성분을 혼합한 후, 이어서 단계(306)에 나타나 있는 바와 같이, 생성된 혼합물을 표면 상에 적용한다. 혼합물은 자동 분배 기계 또는 수동 분배 기계, 예를 들어 주사기에 의해 적용될 수 있다.

[0136] <u>C. 열 겔의 특성</u>

[0137] 열 겔이 기재에 적용될 때, 열 겔 내에서의 가교결합으로 인해 누출이 최소화된다. 즉, 가교결합제는 유리하게는 폴리올을 가교결합시켜, 실질적으로 제한된 양의 중합체 누출이 일어나게 한다. 제한된 누출은 주변 포트(예를 들어, 전기 구성요소)의 오염을 감소시킨다.

[0138] 일반적으로, 헥사메틸사이클로트라이실록산 및 옥타메틸사이클로테트라실록산과 같은 환형 실록산 화합물이 전자 제품에 존재한다. 이들 환형 실록산 화합물 중 일부가 전자 제품 내의 전극 상에 침착되는 경우, 환형 실록산 화합물은 소정 조건 하에서 개환 중합을 겪을 것이고 절연 폴리실록산 층을 형성할 것이며, 이는 전극의 적절한 기능성을 약화시킬 것이고, 결국 전자 제품의 기능성을 해칠 것이다. 대조적으로, 본 발명의 열 겔에는 실리콘이 없어서, 열 겔의 일부가 잠재적으로 전극 상에 침착될 수 있다면 전술한 문제가 회피된다.

[0139] 더욱이, 하기에 더 상세히 기재되는 바와 같이, 열 겔은 TCB 하에서의 열 사이클링에 의해 측정할 때 최대 80℃의 온도에서 경화될 수 있다. TCB에서는, 샘플을 오븐에 넣고 온도를 (예를 들어, -40℃ 내지 80℃로) 제어한다. 샘플은 몇 주 또는 몇 개월 동안 열 사이클링을 겪으며, 그 후에 샘플 내에 균열이 존재하는지의 여부 또는 샘플이 열 사이클링 전의 그들의 원래 위치로부터 활주되었는지의 여부를 알아보기 위해 샘플을 조사한다. 많은 전자 구성요소가 약 80℃의 온도에서 작동하며, 따라서 겔을 적용한 후에 열 겔을 경화시키기 위한 추가 가열 단계는 필요하지 않다. 더욱이, 겔이 적용된 표면 상에 재적용되거나 재작업될 필요가 있는 경우, 겔은 용이하게 제거될 수 있다. 또한, 열 겔의 열 전도도는 예를 들어 1 W/mK, 2 W/mK, 2.5 W/mK만큼 작거나, 4 W/mK, 4 W/mK, 4 W/mK만큼 크거나, 또는 전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위, 예컨대 1 W/mK 내지 5 W/mK, 2 W/mK 내지 4.5 W/mK, 또는 2.5 W/mK 내지 4 W/mK 이내이다.

[0140] 본 명세서에 사용되는 바와 같이, 어구 "전술한 값들 중 임의의 2개의 값들 사이로 정의되는 임의의 범위 이내"는, 그러한 어구 이전에 열거된 값들이 목록의 하한 부분에 있는지 또는 목록의 상한 부분에 있는지와 관계

없이, 임의의 범위가 그러한 값들 중 임의의 2개의 값으로부터 선택될 수 있음을 실제로 의미한다. 예를 들어, 한 쌍의 값이 2개의 하한 값, 2개의 상한 값, 또는 하나의 하한 값과 하나의 상한 값으로부터 선택될 수 있다.

[0141] 실시예

[0142] *예 1 내지 예 3*

[0143] 표 1에 나타낸 제형 및 하기 설명에 따라 열 겔을 제조하였다.

[0144] [표 1]

[0145]

성분	예 1 (g)	예 2 (g)	예 3 (g)
폴리에테르 폴리올 (바이-올)	3.53	7.06	3.53
폴리에테르 폴리올 (트라이-올)	3.53	-	-
폴리에테르 폴리올 (헥사-올)	-	-	3.53
가교결합제	1.85	1.85	1.85
커플링제	0.59	0.59	0.59
산화방지제	0.35	0.35	0.35
촉매	0.44	0.44	0.44
열 전도성 충전제	42.28	42.28	42.28
열 전도성 충전제	21.57	21.57	21.57
열 전도성 충전제	25.86	25.86	25.86

[0146] 폴리에테르 폴리올, 커플링제, 산화방지제, 및 가교결합제를 칭량하여 플라스틱 컵에 첨가한다. 이어서, 혼합물을 스피드 믹서로 3000 rpm(분당 회전수)으로 30초 동안 교반한다.

[0147] 열 전도성 충전제를 칭량하여 플라스틱 컵에 첨가한다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm 하에 3분 동안 교반하고, 이어서 실온으로 냉각시킨다.

[0148] 촉매를 칭량하여 컵에 첨가한다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm 하에 3분 동안 교반하고, 이어서 실온으로 냉각시킨다. 이어서, 진공을 개방하고 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm으로 3분 동안 교반한다.

[0149] 생성된 페이스트를 주사기에 채우고, 이어서 매끄러운 구리 플레이트 상에 분배한다. 두께가 1.6 mm 또는 0.3 mm인 스페이서를 구리 플레이트의 에지 상에 배치하여 1.6 mm 또는 0.3 mm 간극을 생성하였다. 이어서, 유리를 사용하여 페이스트를 1.6 mm 또는 0.3 mm의 두께로 압축하였다. 이어서, 샘플을 TCB(열 사이클링) 챔버 내에 3일 동안 넣어 두었고, 3일 동안 -55℃와 +125℃ 사이의 열 사이클링을 겪게 하였다.

[0150] 도 2에 나타나 있는 바와 같이, TCB 시험에서, 예 2는 제한된 적하(dripping) 문제를 나타내었지만, 예 3은 상당한 적하 문제를 나타내었다. 또한, 예 1은 균열 및 적하 문제 둘 모두를 나타내었다.

[0151] *예 4*

[0152] 표 2에 나타낸 제형 및 하기 설명에 따라 열 겔을 제조하였다.

[0153] [표 2]

[0154]

성분	중량 (g)
폴리에테르 폴리올 (바이-올, MW: 8000 달톤)	7
가교결합제	0.825
커플링제	0.5
산화방지제	0.3
촉매	0.375
열 전도성 충전제	45.75
열 전도성 충전제	22.875
열 전도성 충전제	22.875

[0155] 폴리에테르 폴리올, 커플링제, 산화방지제, 및 가교결합제를 칭량하여 플라스틱 컵에 첨가하였다. 이어서, 혼합물을 스피드 믹서로 3000 rpm(분당 회전수)으로 30초 동안 교반한다.

[0156] 열 전도성 충전제를 칭량하여 플라스틱 컵에 첨가하였다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm 하에 3분 동안 교반하고, 이어서 실온으로 냉각시킨다.

[0157] 촉매를 칭량하여 컵에 첨가하였다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm 하에 3분 동안 교반하고, 이어서 실온으로

냉각시켰다. 이어서, 진공을 개방하고 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm으로 3분 동안 교반하였다.

[0158] 도 3 및 도 4의 제형을 수직 배향된 1.6 mm 간극으로 유리와 예시적인 히트 싱크 사이에 개재시켰다. 샘플 3(도 3 및 도 4)은 상기 표 2에 나타낸 조성을 가졌으며 두께가 0.3 mm이었다. 샘플 3을 125℃에서 3일 동안 오븐 내에서 베이킹하였다. 도 3에 나타나 있는 바와 같이, 125℃에서 3일 동안 베이킹한 후에 샘플에 균열이 나타나지 않았다.

[0159] 도 4에 나타나 있는 바와 같은 샘플 1, 샘플 2, 및 샘플 3은 표 2에 열거된 조성을 갖는다. 샘플 1은 3 mm의 두께를 갖고, 샘플 2는 1.5 mm의 두께를 갖고, 샘플 3은 0.3 mm의 두께를 갖는다. 샘플 모두가 TCB 시험을 받았는데, 여기서 샘플은 3개월 동안 -40℃와 +80℃ 사이의 열 사이클링을 겪었다. 도 4에 나타나 있는 바와 같이, 샘플 1 및 샘플 2는 균열 또는 적하를 나타내지 않았다. 그러나, 샘플은 황색 안료를 함유하기 때문에 약간의 색 변화를 나타내었다.

[0160] *예 5 내지 예 7*

[0161] 표 3에 나타낸 제형에 따라 그리고 본 명세서에 추가로 기재된 바와 같이 열 겔을 제조하였다.

[0162] [표 3]

성분	예 5 (g)	예 6 (g)	예 7 (g)
폴리에테르 폴리올 (MW: 500 내지 1000 달톤, 바이-올)	-	5.956	-
폴리에스테르 폴리올 (MW: 500 내지 1000 달톤, 바이-올)	-	-	5.956
폴리에테르 폴리올 (MW: 약 8000 달톤, 바이-올)	6.932	-	-
가교결합제	0.84	1.816	1.816
커플링제	0.497	0.497	0.497
산화방지제	0.298	0.298	0.298
촉매	0.373	0.373	0.373
열 전도성 충전제	45.48	45.48	45.48
열 전도성 충전제	22.74	22.74	22.74
열 전도성 충전제	22.74	22.74	22.74

[0163]

[0164] 예 5 내지 예 7을 제조하기 위하여, 폴리에테르 폴리올(또는 폴리에스테르 폴리올), 커플링제, 산화방지제, 및 가교결합제를 칭량하고 플라스틱 컵에 첨가하여 혼합물을 형성하였다. 이어서, 혼합물을 스피드 믹서로 3000 rpm(분당 회전수)으로 30초 동안 교반하였다.

[0165] 이어서, 열 전도성 충전제를 칭량하여 플라스틱 컵에 첨가하였다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm으로 3분 동안 교반한 후에, 혼합물을 실온으로 냉각시켰다.

[0166] 이어서, 촉매를 칭량하여 컵에 첨가하였다. 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm으로 3분 동안 교반하고, 이어서 실온으로 냉각시켰다. 이어서, 진공을 개방하고 혼합물을 스피드믹서로 2500 rpm으로 3분 동안 교반하였다.

[0167] 열 신뢰성 시험을 위해, 유리와 구리 플레이트 사이의 수직으로 배향된 0.3 mm 간극으로 유리와 구리 플레이트 사이에 3가지 제형을 개재시켰다. 3가지 샘플을 오븐 내에서 125℃에서 24시간 동안 베이킹하였다. 도 5에 나타나 있는 바와 같이, 시험 동안 샘플에 의해 균열 또는 적하가 나타나지 않았다.

[0168] TCB 시험을 위해, 수직으로 배향된 0.3 mm 간극으로 유리와 구리 플레이트 사이에 3가지 제형을 개재시켰다. 이어서, 샘플을 TCB 시험하였으며, 여기서 샘플은 24시간 동안 -40℃와 +80℃ 사이의 열 사이클링을 겪었다. 도 6에 나타나 있는 바와 같이, 예 5 및 예 6(중합체가 폴리에테르 폴리올임)은, 있다하더라도, 균열 문제를 나타내지 않았으나; 예 7(중합체가 폴리에스테르 폴리올임)은 심각한 균열 문제를 나타내었다.

[0169] 도 7에 나타나 있는 바와 같은 기구에서 예 5 내지 예 7의 분배 속도를 측정하였다. 하기 표 4에 나타나 있는 바와 같이, 폴리에테르 폴리올로부터 유도된 제형(즉, 예 5 및 예 6)은 폴리에스테르 폴리올로부터 유도된 제형(즉, 예 6)보다 높은 분배 속도를 나타내었다.

[0170] [표 4]

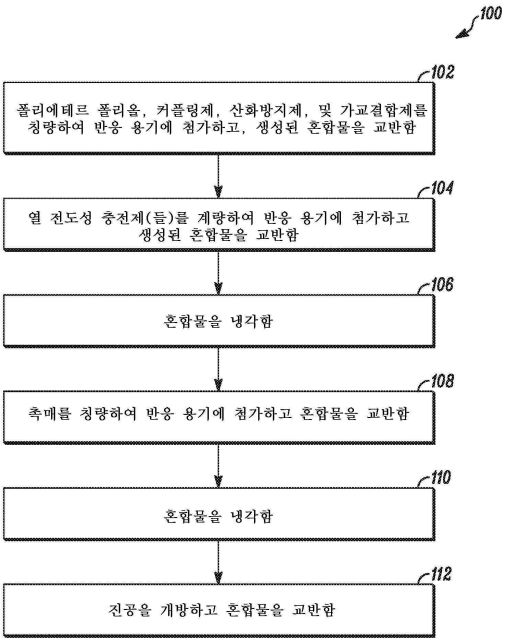
	분배 속도 (g/min)
예 5	42
예 6	111
예 7	6

[0171]

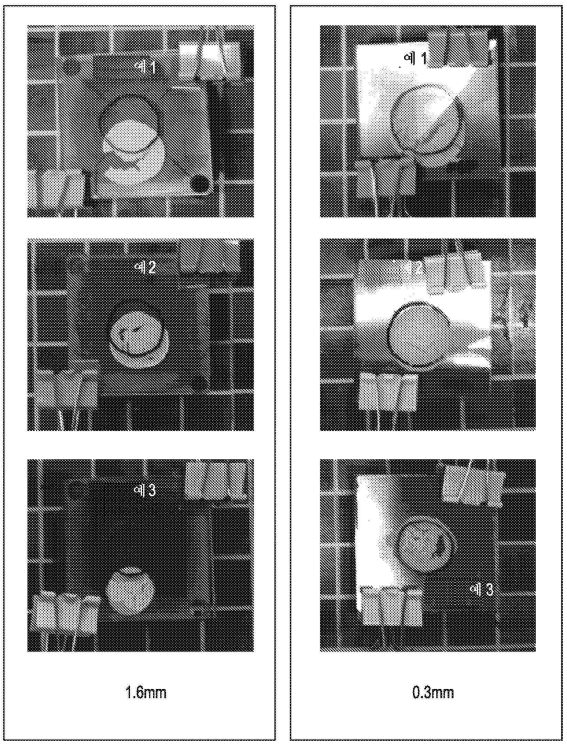
[0172] 본 발명이 예시적인 설계를 갖는 것으로 기재되었지만, 본 발명은 본 발명의 사상 및 범주 내에서 추가로 변경될 수 있다. 따라서, 본 출원은 그의 일반적인 원리를 사용하는 본 발명의 임의의 변형, 사용 또는 개조를 포괄하도록 의도된다. 또한, 본 출원은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 공지된 또는 통상적인 관행의 범위 내에 있으며 첨부된 청구범위의 한계 내에 속하는 바와 같은 본 발명으로부터의 그러한 이탈(departure)을 포괄하도록 의도된다.

도면

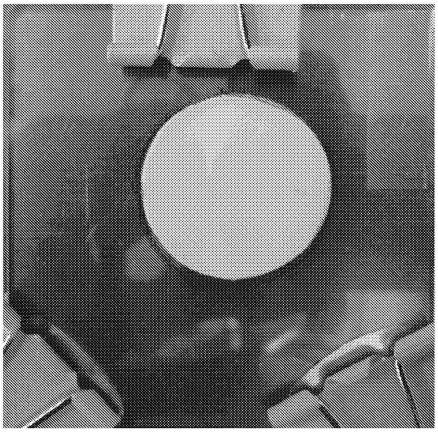
도면1



도면2

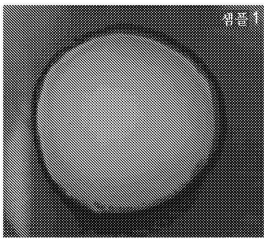


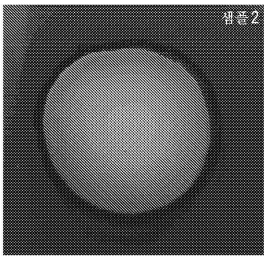
도면3

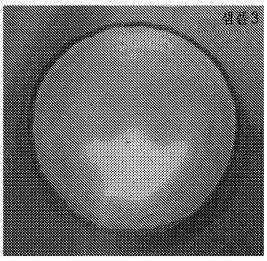


샘플 3

도면4

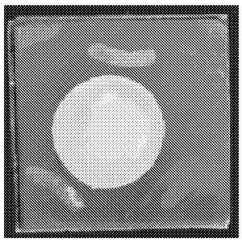






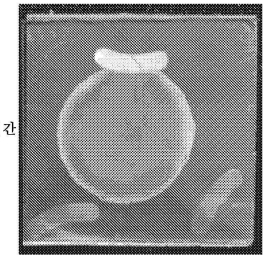
도면5

125° C/24시간



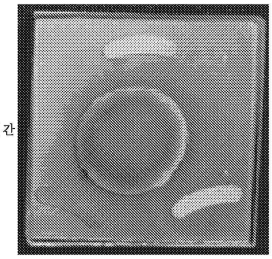
예 5

125° C/24시간



예 6

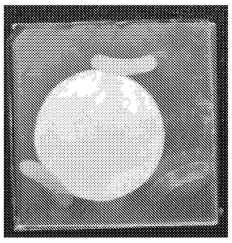
125° C/24시간



예 7

도면6

TCB/24시간

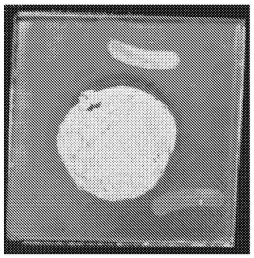


예 5

TCB/24시간

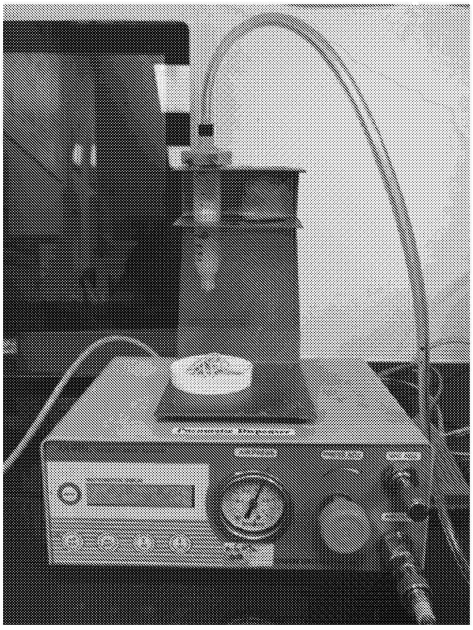
예 6

TCB/24시간

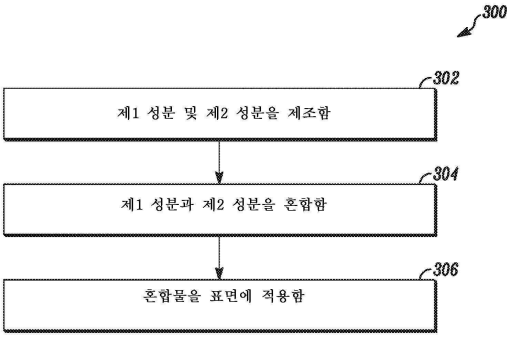


예 7

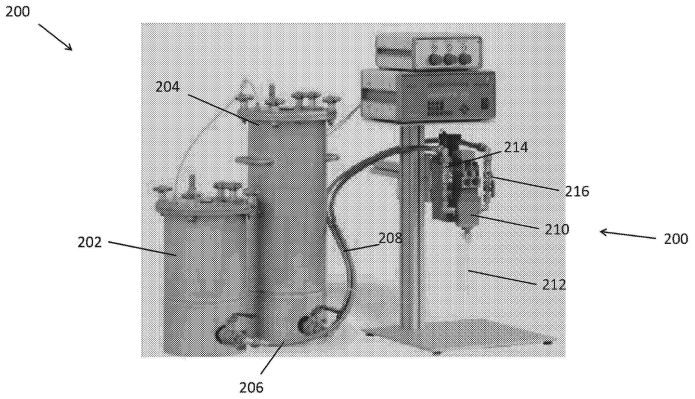
도면7



도면8


300
302
제1 성분 및 제2 성분을 제조함
304
제1 성분과 제2 성분을 혼합함
306
혼합물을 표면에 적용함

도면9


200
204
214
216
210
200
202
208
212
206