

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6546403号  
(P6546403)

(45) 発行日 令和1年7月17日 (2019.7.17)

(24) 登録日 令和1年6月28日 (2019.6.28)

(51) Int. Cl. F I  
**C O 9 J 163/00 (2006.01)** C O 9 J 163/00  
**C O 9 J 175/04 (2006.01)** C O 9 J 175/04  
**C O 9 J 11/04 (2006.01)** C O 9 J 11/04

請求項の数 16 外国語出願 (全 22 頁)

|              |                               |           |   |
|--------------|-------------------------------|-----------|---|
| (21) 出願番号    | 特願2015-24865 (P2015-24865)    | (73) 特許権者 | 500520743   |
| (22) 出願日     | 平成27年2月12日 (2015.2.12)        |           | ザ・ボーイング・カンパニー   |
| (65) 公開番号    | 特開2015-160955 (P2015-160955A) |           | The Boeing Company  |
| (43) 公開日     | 平成27年9月7日 (2015.9.7)          |           | アメリカ合衆国、60606-2016  |
| 審査請求日        | 平成30年2月9日 (2018.2.9)          |           | イリノイ州、シカゴ、ノース・リバーサイド・プラザ、100  |
| (31) 優先権主張番号 | 14/189,302                    | (74) 代理人  | 110002077   |
| (32) 優先日     | 平成26年2月25日 (2014.2.25)        |           | 園田・小林特許業務法人   |
| (33) 優先権主張国  | 米国 (US)                       | (72) 発明者  | バビロ、ピーター  |
| 早期審査対象出願     |                               |           | アメリカ合衆国 カリフォルニア 902<br>45-3507, エル セグンド, イ<br>ースト インペリアル ハイウェイ 20<br>60, メール コード: ダブリューエス<br>25-シー583 |
|              |                               | 最終頁に続く    |   |

(54) 【発明の名称】 航空宇宙応用のための熱伝導性柔軟性接着剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電子ボードで使用される熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法であって、前記方法は：  
 一又は複数の接着剤コンポーネントであって、

前記一又は複数の接着剤コンポーネントは、窒化ホウ素粒子の表面に付着した（3-グリシジルオキシプロピル）トリメトキシシランを有する前記窒化ホウ素粒子を含み、且つ

前記一又は複数の接着剤コンポーネントは、ウレタン変性エポキシを含む  
 接着剤コンポーネントを提供すること；

前記一又は複数の接着剤コンポーネントから接着剤材料を形成すること；

前記接着剤材料を前記電子ボードの表面上に塗布すること；

電子コンポーネントと前記電子ボードの前記表面に塗布された前記接着剤材料との間に接触部を形成すること；及び

前記接着剤材料を硬化することによって前記電子ボードと前記電子コンポーネントとの間に硬化した接着剤構造を形成すること

を含み、前記硬化した接着剤構造は、前記電子ボードと前記電子コンポーネントとの間に前記熱伝導性の柔軟な結合をもたらす方法。

【請求項 2】

前記一又は複数の接着剤コンポーネントは単一の凍結コンポーネントであって、前記接着剤材料を形成することは前記単一の凍結コンポーネントを使用温度まで加熱することを

10

20

含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記接着剤材料中の前記窒化ホウ素粒子の濃度は、40重量%から60重量%の間である、請求項 1 又は 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記硬化した接着剤構造は、少なくとも  $2\text{ W/mK}$  の熱伝導率を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 5】

前記硬化した接着剤構造は、 $-40$  未満のガラス転移点を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 6】

前記硬化した接着剤構造は、約  $0.689\text{ MPa}$  ( $100\text{ psi}$ ) から約  $3.445\text{ MPa}$  ( $500\text{ psi}$ ) の間のせん断強度を有する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 7】

前記硬化した接着剤構造は、約  $6.89\text{ MPa}$  ( $10^3\text{ psi}$ ) から約  $689\text{ MPa}$  ( $10^5\text{ psi}$ ) の間の引張弾性率を有する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 8】

前記硬化した接着剤構造は、ガス放出中 1%未満の重量を損失する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 9】

前記接着剤材料の硬化は、 $110$  未満の温度で実施される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 10】

前記硬化した接着剤構造は、前記電子ボードと前記電子コンポーネントとの間に  $25.4\text{ }\mu\text{m}$  ( $0.001\text{ インチ}$ ) から  $254\text{ }\mu\text{m}$  ( $0.010\text{ インチ}$ ) の間の平均厚を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 11】

(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランが、前記窒化ホウ素粒子の表面に共有結合される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 12】

前記窒化ホウ素粒子の表面に付着した(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランが、前記接着剤材料の硬化中にウレタン変性エポキシに共有結合される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 13】

前記一又は複数の接着剤コンポーネントから前記接着剤材料を形成することが、前記一又は複数の接着剤コンポーネントの二重非対称遠心混合を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 14】

前記接着剤材料が、混合後少なくとも  $100,000\text{ cP}$  の粘度を有する、請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】

前記電子ボードが無人宇宙船の一部である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 16】

前記硬化した接着剤構造が、少なくとも部分的に前記電子コンポーネントを包み込む、請求項 1 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

電子コンポーネント及びこれらのコンポーネントを含む電子ボードの熱管理は、無人宇宙船などの様々な航空宇宙ビークルの運用の成功に欠かせない。電子コンポーネントの小型化及び統合化の構想が進められているため、単位体積あたりの発生熱量は劇的に増大し

10

20

30

40

50

ている。この発熱の増大は、回路設計（例えば、ボード上の電子コンポーネントのレイアウト）を制限し、個々の電子コンポーネントの設計を制限するだけでなく、コンポーネント、連結部、導線の過熱による回路全体及び個々のコンポーネント、並びに電子ボードの他の特性の信頼性をも危険に晒している。

#### 【0002】

コンポーネントの連続運用を保証するためには、これらの電子コンポーネントの動作中に発生する熱を他の領域に伝導することが必要となる。ボードは例えば、無人宇宙船などの真空環境で動作することが多いため、熱は主として様々なコンポーネント間の物理的な直接接触によって伝導されることがあり、これは熱伝導と呼ばれる。具体的には、熱はコンポーネントからこれらのコンポーネントを支えるボードへと伝導され、次いでボードからシャーシへ、さらにシャーシからフレーム及び無人宇宙船の他の主要コンポーネントへと伝導される。

10

#### 【0003】

電子コンポーネントとこれらのコンポーネントを支えるボードとの間の熱伝導を高めるため、しばしば熱伝導性接着剤が使用される。これらの接着剤の高い熱伝導率は、コンポーネントからの高速な放熱及びボード全体の熱管理には不可欠である。宇宙応用のための具体的な要件を満たす現在入手可能な接着剤が有する熱伝導率は、最大でも  $0.6 \text{ W/mK}$  でしかない。これらの接着剤は、エポキシ又はポリウレタン樹脂中に懸濁する導電性充填剤として  $\text{Al}_2\text{O}_3$ （アルミナ）を使用する。最良の熱伝導性を有するが、電気絶縁性がある接着剤は宇宙には適しておらず、熱伝導率はわずか  $1 \text{ W/mK}$  しかない。これらの接着剤は、エポキシ、ポリウレタン又はシリコン樹脂中で懸濁する導電性充填剤として、アルミナ、窒化ホウ素、及び/又は窒化アルミニウムの組み合わせを採用する。

20

#### 【0004】

これらの熱伝導率の値は、真空中での結合されたジョイント構造の測定値に基づいているが、これは真空中で実施される修正版 ASTM（米国試験材料協会）C177試験法とみなされることに留意されたい。具体的には、接着剤材料は2つのアルミニウムプレートの結合に使用され、また、接着剤材料の熱伝導率の値を決定するため、これらのプレート間の熱フラックスが測定される。この方法は、電子コンポーネントとこれらのコンポーネントを支えるボードとの間の熱伝導の最も典型的なものと考えられる。

#### 【0005】

熱伝導率の測定に使用される他のアプローチには、自立試料（例えば、パックのように見える円柱）のレーザースキャニングがある。このような他の測定技術から得られる値は、真空中で結合されたジョイント構造を用いて得られる値とはしばしば異なることがあり、より具体的には、2～50倍も大きくなることもある。さらに、これら他の測定技術は、真空中で実施されないため、空気を介した付加的な熱損失によって引き起こされる不自然に高い熱伝導率の値をもたらす。

30

#### 【発明の概要】

#### 【0006】

無人宇宙船及び他のタイプの航空機の電子ボードに使用される熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法が提供される。また、処理済み充填剤粒子を調製する方法を含む、これらの結合を形成するための接着剤材料を調製する方法も提供される。幾つかの態様では、接着剤材料は、シランで処理された窒化ホウ素粒子など、有機官能基を有する充填剤粒子を含む。これらの粒子は、接着剤材料を形成するため、ウレタン変性エポキシと組み合わせることがある。接着剤材料中での粒子の重量比率は約40～60%となることがある。接着剤材料は、結合されている電子コンポーネントへの損傷を防止するため、110 未満の温度を用いて熱的に硬化されてもよい。硬化した接着剤は、真空中の測定で少なくとも約  $2 \text{ W/mK}$  の熱伝導率を有することがあり、また -40 未満のガラス転移点を有することがある。

40

#### 【0007】

幾つかの態様では、電子ボード内で使用される熱伝導性のある柔軟な結合を形成する方

50

法は、一又は複数の接着剤コンポーネントを提供することを含む。一又は複数の接着剤コンポーネントは、粒子表面に付着した有機官能基を有する窒化ホウ素粒子を含むことがある。さらに、一又は複数の接着剤コンポーネントはウレタン変性エポキシを含むことがある。ウレタン変性エポキシは、すでに窒化ホウ素粒子と予混合されていて、さらに混合する必要がないこともある。例えば、一又は複数の接着剤コンポーネントは、ウレタン変性エポキシと窒化ホウ素粒子が予混合され凍結された状態で提供されることがある。代替的には、ウレタン変性エポキシ及び窒化ホウ素粒子は別々のコンポーネントとして提供され、その後の操作の1つの間に混合されてもよい。

#### 【0008】

本方法は、一又は複数の接着剤コンポーネントからの接着剤材料の形成に進んでもよい。この形成操作は、凍結プレミックス（単一の凍結コンポーネント）を使用温度まで加熱すること、又は接着剤材料を形成するため複数のコンポーネントを混合することを含むことがある。接着剤材料は次いで、手作業で又は自動取り出しシステムを使用して電子ボードの表面に塗布されてもよく、また電子コンポーネントと電気ボードの表面に塗布された接着剤材料との間に接触部が形成されてもよい。幾つかの態様では、接着剤材料は最初に電子コンポーネント上に塗布され、次に電子ボード上に配置されてもよい。

#### 【0009】

プロセスは接着剤材料の硬化を継続してもよく、電気ボードと電子コンポーネントとの間に硬化した接着剤構造を形成する。硬化した接着剤構造は、電気ボードと電子コンポーネントとの間に熱伝導性の柔軟な結合をもたらす。柔軟性、低ガラス転移点及び硬化した接着剤構造の低い熱膨張率により、アセンブリが温度変化（例えば、電子コンポーネントの動作によって引き起こされる）を受けたとき、或いは電子コンポーネントの交換が必要になったとき、電気ボード及び電子コンポーネントへの損傷が防止される。

#### 【0010】

幾つかの態様では、接着剤材料中の窒化ホウ素粒子の濃度は、約20重量%から70重量%の間、或いはより具体的に、約40重量%から60重量%の間にある。同様に、硬化した接着剤構造中の窒化ホウ素粒子の濃度は、接着剤材料が硬化するとき追加又は除去される材料はないため、約40重量%から60重量%の間にある。硬化した接着剤構造は、少なくとも約2 W/mK、或いはより具体的に、少なくとも3 W/mKの熱伝導率を有することがある。さらに、硬化した接着剤構造は、約-40 未満、或いはより具体的には、約-60 未満、例えば-70 などのガラス転移点を有することがある。硬化した接着剤構造は、約100 psiから500 psiの間のせん断強度を有することがある。幾つかの実施形態では、硬化した接着剤構造は、約 $10^3$  psiから $10^5$  psiの間の引張弾性率を有する。さらに、硬化した接着剤構造は、ガス放出中に約1%未満の重量を損失する。

#### 【0011】

硬化操作は、110 未満の温度、例えば約100 で実施されてもよい。このような低温では、ボードに取り付けられた電子コンポーネントへの熱損傷は低減される。硬化操作の継続時間は約30分から120分の間、例えば約60分であってもよい。硬化した接着剤構造は、電気ボードと電子コンポーネントとの間に約0.001インチから0.010インチの平均厚を有する。硬化した接着剤構造は、熱抵抗を確実に低くするため、比較的薄くする必要がある。ただし、硬化した接着剤構造は、電子コンポーネントとボードの両方に物理的に接する必要がある、その厚みは電子コンポーネントとボードとの間の間隔によって決定されることがある。

#### 【0012】

また、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を調製する方法、或いはより具体的に、シラン処理された充填剤粒子を調製する方法が提供される。幾つかの態様では、この方法は窒化ホウ素粒子を提供することを含む。窒化ホウ素粒子の任意の2つの寸法の間の平均アスペクト比は5未満となることがある。このような窒化ホウ素粒子は、他のいずれの寸法よりも大幅に大きい（例えば、5倍を超える）寸法を持たない、3次元粒子として定義されてもよ

10

20

30

40

50

い。幾つかの態様では、窒化ホウ素粒子の平均粒子サイズは、10マイクロメートルから200マイクロメートルの間である。

【0013】

本方法は、窒化ホウ素粒子の表面に水酸基を付着させることに進んでもよい。表面上に水酸基を有する窒化ホウ素粒子は次いで、シラン含有溶液に曝露される。シランは、グリシジル基又はメトキシ基など、有機官能基を有することがある。シランは窒化ホウ素粒子の表面に付着する。本方法は、窒化ホウ素粒子に結合していない残留シランを取り除くため、窒化ホウ素粒子の洗浄に進んでもよい。好適なシランの例は、(3-グリシジロキシプロピル)トリメトキシシラン、[3-(2-アミノエチルアミノ)プロピル]-トリメトキシシラン、及び(3-トリメトキシシリルプロピル)-ジエチレントリアミンを含む。

10

【0014】

幾つかの態様では、シラン含有溶液は約5と6の間のpH値を有する。窒化ホウ素に対するシランの重量比率は、2重量%から3重量%の間である。溶液中のシランの濃度は、約0.08重量%から0.35重量%の間である。

【0015】

また、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を調製する方法も提供される。本方法は、ウレタン変性エポキシを提供すること及びウレタン変性エポキシと窒化ホウ素粒子を組み合わせ、これによって組合せ材料(combined material)を形成することを含むことがある。組合せ材料中の窒化ホウ素粒子の濃度は、約20重量%から70重量%の間、或いはより具体的に、約40重量%から60重量%の間にあってもよい。窒化ホウ素粒子は、窒化ホウ素粒子表面に付着した有機官能基を含むことがある。本方法は、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を形成するため、組合せ材料の混合に進んでもよい。混合は、二重非対称遠心混合器を用いて実施されてもよい。熱伝導性の柔軟な接着剤材料は、混合後少なくとも約100,000cPの粘度を有することがある。幾つかの態様では、本方法はまた、熱伝導性の柔軟な接着剤の凍結を含む。さらに、ウレタン変性エポキシと窒化ホウ素粒子を組み合わせる前に、本方法はウレタン変性エポキシの基材樹脂にウレタン変性エポキシの硬化剤を混合することをさらに含む。

20

【0016】

ウレタン変性エポキシ及び窒化ホウ素粒子或いは以下で列举される他の幾つかの充填剤粒子を含む、熱伝導性の柔軟な接着剤材料も提供される。窒化ホウ素粒子又は他の充填剤粒子の濃度は、約40重量%から60重量%の間であってもよい。幾つかの実施形態では、窒化ホウ素粒子又は他の充填剤粒子は、粒子の表面に付着した有機官能基を含む。熱伝導性の柔軟な接着剤材料は、凍結プレミックス、或いは例えば二重非対称遠心混合器を用いて、混合するように準備された各種コンポーネントのキットとして提供されてもよい。塗布に先立って、凍結プレミックスは室温まで加熱され、或いはキットは混合されることがある。幾つかの実施形態では、キットで提供されるウレタン変性エポキシの基材樹脂及び硬化剤は、混合剤への窒化ホウ素粒子の導入に先立って混合される。塗布できる状態では、熱伝導性の柔軟な接着剤材料は、混合後少なくとも約100,000cPの粘度を有することがある。

30

40

【0017】

本開示の一態様によれば、電子ボードで使用される熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法が提供され、本方法は、一又は複数の接着剤コンポーネントであって、前記一又は複数の接着剤コンポーネントは、窒化ホウ素粒子の表面に付着した有機官能基を有する前記窒化ホウ素粒子を含み、且つ前記一又は複数の接着剤コンポーネントは、ウレタン変性エポキシを含む、接着剤コンポーネントを提供すること；一又は複数の接着剤コンポーネントから接着剤材料を形成すること；接着剤材料を電子ボードに塗布すること；電子コンポーネントと電気ボードの表面に塗布された接着剤材料との間に接触を形成すること；及び電子ボードと電子コンポーネントとの間に硬化した接着剤構造を形成することによって、接着剤材料を硬化すること、を含み、硬化した接着剤構造は、電気ボードと電子コンポーネ

50

ントとの間に熱伝導性の柔軟な結合をもたらす。

【0018】

有利には、一又は複数の接着剤コンポーネントは単一の凍結コンポーネントであって、接着剤材料を形成することは単一の凍結コンポーネントを使用温度まで加熱することを含む。

【0019】

有利には、接着剤材料中の窒化ホウ素粒子の濃度は、約40重量%から60重量%の間である。

【0020】

有利には、硬化した接着剤構造は、少なくとも約2 W / m Kの熱伝導率を有する。

10

【0021】

有利には、硬化した接着剤構造は、約-40 未満のガラス転移点を有する。

【0022】

有利には、硬化した接着剤構造は、約100 p s i から500 p s i の間のせん断強度を有する。

【0023】

有利には、硬化した接着剤構造は、約 $10^3$  p s i から $10^5$  p s i の間の引張弾性率を有する。

【0024】

有利には、硬化した接着剤構造は、ガス放出中約1%未満の重量を損失する。

20

【0025】

有利には、接着剤材料の硬化は、110 未満の温度で実施される。

【0026】

有利には、硬化した接着剤構造は、電気ボードと電子コンポーネントとの間に約0.001インチから0.010インチの間の平均厚を有する。

【0027】

本開示の別の態様によれば、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を調製する方法が提供され、本方法は：

窒化ホウ素粒子であって、当該窒化ホウ素粒子の任意の2つの寸法の間平均アスペクト比は5未満であり、当該窒化ホウ素粒子の平均粒子サイズは10マイクロメートルから200マイクロメートルの間である窒化ホウ素粒子を提供すること；水酸基を当該窒化ホウ素粒子の表面に付着させること；当該表面上に当該水酸基を有する当該窒化ホウ素粒子を、シランを含む溶液に曝露し、それによって当該窒化ホウ素粒子の表面にシランの有機官能基を付着させること；及び残留シランを取り除くため、当該表面上に当該有機官能基を有する当該窒化ホウ素粒子を洗浄することを含む。

30

【0028】

有利には、有機官能基はグリシジル基である。

【0029】

有利には、シランは(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランを含む。

【0030】

有利には、溶液は約5と6の間のpH値を有する。

40

【0031】

有利には、窒化ホウ素に対するシランの濃度は、約2重量%から3重量%の間である。

【0032】

本開示のさらなる態様によれば、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を調製する方法が提供され、前記方法は、ウレタン変性エポキシを提供すること；前記ウレタン変性エポキシと窒化ホウ素粒子を組み合わせ、それによって組合せ材料を形成することであって、前記組合せ材料中の窒化ホウ素粒子の濃度は約40重量%から60重量%の間であり、前記窒化ホウ素粒子は前記窒化ホウ素粒子の表面に付着した有機官能基を含む、組合せ材料を形成すること；及び前記組合せ材料を混合して前記熱伝導性の柔軟な材料を形成することを含む

50

方法。

【0033】

有利には、組合せ材料の混合は、二重非対称遠心混合器を用いて実施される。

【0034】

有利には、方法は熱伝導性の柔軟な接着剤材料を凍結することをさらに含む。

【0035】

有利には、熱伝導性の柔軟な接着剤材料は、混合後少なくとも約100,000cPの粘度を有する。

【0036】

有利には、方法はウレタン変性エポキシと窒化ホウ素粒子を組み合わせる前に、ウレタン変性エポキシの基材樹脂にウレタン変性エポキシの硬化剤を混合することをさらに含む。

【0037】

これらの態様及び他の態様は、図面を参照して以下でさらに説明される。

【図面の簡単な説明】

【0038】

【図1】幾つかの態様による、無人宇宙船の電子ボードの表面に電子コンポーネントを結合する熱伝導性の柔軟な接着剤を含むアセンブリの概略図である。

【図2A】幾つかの態様による、熱伝導性の柔軟な接着剤及びこの接着剤材料で 사용되는コンポーネントを調製する方法を含む、無人航空機の電子ボードで使用するための熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法に対応するプロセスフロー図である。

【図2B】幾つかの態様による、熱伝導性の柔軟な接着剤及びこの接着剤材料で 사용되는コンポーネントを調製する方法を含む、無人航空機の電子ボードで使用するための熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法に対応するプロセスフロー図である。

【図3A】幾つかの態様による、処理プロセスの異なる段階での充填剤粒子の概略図である。

【図3B】幾つかの態様による、処理プロセスの異なる段階での充填剤粒子の概略図である。

【図3C】幾つかの態様による、処理プロセスの異なる段階での充填剤粒子の概略図である。

【図3D】幾つかの態様による、処理済み粒子を用いて形成された熱伝導性の柔軟な接着剤材料の概略図である。

【図4A】充填剤粒子の走査型電子顕微鏡(SEM)写真である。

【図4B】充填剤粒子の走査型電子顕微鏡(SEM)写真である。

【図4C】充填剤粒子の走査型電子顕微鏡(SEM)写真である。

【図4D】充填剤粒子の走査型電子顕微鏡(SEM)写真である。

【図5A】幾つかの態様による、製造の初期段階から保守に至るまでの航空機のライフサイクルの主要な操作を反映するプロセスフロー図である。

【図5B】幾つかの態様による、航空機の様々な主要コンポーネントを図解するブロック図である。

【発明を実施するための形態】

【0039】

以下の記述には、提示されている概念に対する完全な理解を提供するため、多数の具体的な詳細事項が示されている。提示されている概念は、これらの具体的な詳細事項の一部或いはすべてを含まずに実施可能である。その他の場合では、記述されている概念を不必要に分かりにくくしないよう、よく知られているプロセス操作については詳細に説明していない。幾つかの概念は特定の態様と関連付けて説明されるが、これらの態様は限定を意図していないことを理解されたい。

【0040】

導入

10

20

30

40

50

上述のように、航空機及び宇宙船の電子コンポーネントはしばしば、特定の環境及び／又は動作条件で動作するため、このような環境や条件はこれらのコンポーネントの熱管理の課題をもたらす。例えば、無人宇宙船は主として真空環境で動作し、幅広い動作温度範囲を有する。したがって、このような無人宇宙船の電子コンポーネントは、放熱のため、これらのコンポーネントとこれらのコンポーネントを支える電子ボードとの間に提供される接着剤に大きく依存する。したがって、無人宇宙船応用及び他の宇宙航空応用には、高い熱伝導率が必須である。しかしながら、上述のように、宇宙用の接着剤の多くは、最大でも  $0.6 \text{ W/mK}$  の熱伝導率を有するだけで、電子回路の設計を大幅に制限している。高い熱伝導度に加えて、宇宙用及び他の種類の航空宇宙用の接着剤は多くの場合、電気絶縁され、低い（例えば、動作温度範囲より低い）ガラス転移点を有し、異なる熱膨張係数に対応するように十分な柔軟性があり、動作中には（例えば、真空環境及び／又は大きな温度変動にあっても）ガス放出が実質的にゼロとなる必要がある。このような特性はいずれも、宇宙船応用を基準にして記述される。しかしながら、当業者であれば、熱伝導性のある柔軟な結合を形成するため、記述されている接着剤材料、及びこれらの接着剤を調製し、これらの接着剤を使用する方法は、他の航空宇宙応用に使用されうることを理解するであろう。例えば、幾つかの航空機応用は、高い熱伝導度を有する接着剤材料を必要とする。

10

#### 【0041】

ボード上に電子コンポーネントを支えるために使用される接着剤材料はしばしば、このコンポーネントの別の結合端子に加えて、同一ボード上に提供される様々な他の電子コンポーネントの結合端子に接触する。例えば、接着剤材料は、ボード表面全体に広がり、このボード上のすべての或いは大部分のコンポーネントと、より具体的には、電氣的接触端子と接触する層として塗布されることがある。したがって、このような応用に使用される接着剤材料は、電氣的に絶縁されている必要がある。本開示の目的では、接着剤はその抵抗率が少なくとも約  $10^{10} \cdot \text{m}$  のときには、電氣的に絶縁とみなされる。しかし、高い電気抵抗率と高い熱伝導率の組み合わせを同一材料で実現するのは困難である。通常、高い熱伝導率を有する材料はまた、良好な導電体である。例えば、炭素系材料は熱伝導性の接着剤として使用されることが多いが、これらの接着剤は導電性で回路を短絡させる傾向がある。

20

#### 【0042】

さらに、電氣的に絶縁である接着剤材料に関しては、エポキシ及び充填剤粒子などの主要コンポーネントはそれぞれ十分な絶縁性を必要とする。窒化ホウ素、窒化アルミニウム、及び他の同様な材料は、その電気抵抗率が典型的に約  $10^{14} \cdot \text{m}$  を超えるため、好適な充填剤粒子である。同時に、窒化ホウ素及び窒化アルミニウムは、上述のように比較的高い熱伝導率を有する。好適な電氣的結合剤を探し出すことは概して容易である。

30

#### 【0043】

さらに、宇宙用の接着剤は概して、非常に低いガラス転移点、例えば約  $-40$  未満或いは約  $-50$  未満、例えば約  $-70$  のガラス転移点を有することが必要である。市販の熱伝導性接着剤の多くは、例えば  $+30$  から  $+50$  の間など、比較的高いガラス転移点を有する。このような高いガラス転移点は典型的に、これらの接着剤の非常に高い使用温度によるものである。しかしながら、無人宇宙船は他の多くの応用よりも広い動作範囲を有する。幾つかの態様では、無人宇宙船の温度範囲は、約  $-30$  から  $+100$  の間となる。材料がガラス転移を経験すると、結合されたコンポーネント上に様々な欠陥の原因となる大きな応力を引き起こす。したがって、接着剤のガラス転移点は、動作範囲外にあることが必要となる。より具体的には、接着剤のガラス転移点は、この動作範囲を下回っていることが必要となる。したがって、市販の熱伝導性接着剤の多くは、無人宇宙船及び他の航空宇宙応用には適していない。

40

#### 【0044】

宇宙用接着剤の別の特性は、特に、航空宇宙応用にしばしば伴う大きな温度変動及び結合された材料の熱膨張率の違いによる、電子コンポーネント及びボード上での過剰な応力

50

を防止する柔軟性である。このような応力は、電子コンポーネント、ボード、及び連結部に損傷を及ぼし、ひび割れ及びその他の不整合を引き起こす。同時に、柔軟性は、結合されたコンポーネントに対する機械的な支持を保証するため限定される必要がある。柔軟性は引張弾性率とせん断応力によって特徴づけられる。例えば、無人航空機及び他の航空宇宙応用では、好適な引張弾性率は約  $10^3$  psi から  $10^5$  psi の間となりうる。好適な接着剤材料のせん断強度は  $100$  psi から  $500$  psi の間となる。このようなせん断強度レベルはまた、電子ボード及びボード上に残る他のコンポーネントを損傷することなく、コンポーネントの取り外し及び交換（例えば、接着剤材料が硬化した後のアセンブリの再加工）を可能にする。

#### 【0045】

無人宇宙船及び他の航空宇宙応用の電子ボードに使用される接着剤材料はしばしば、他の電子コンポーネント及び／又は光学コンポーネントなど、他の重要なコンポーネントを含む環境で動作する。これらの他のコンポーネントは汚染に対して極めて敏感で、接着剤材料のガス放出生成物がこれらの他のコンポーネントの表面に堆積すると、動作しなくなることがある。さらに、このような動作環境は典型的には密閉されており、及び／又は圧力が低い（例えば、大気圧を下回る）ため、接着剤材料からより多くのガス放出を招き、より重大な問題を引き起こすことがある。したがって、無人宇宙船応用のために硬化した接着剤材料は、ガス放出を実質的にゼロにしなければならない。本開示の目的では、“Standard Test Method for Total Mass Loss and Collected Volatile Condensable Materials from Outgassing in a Vacuum Environment.”（真空環境でのガス放出による総質量損失及び収集された揮発性凝縮性材料に対する標準試験方法）と題された ASTM E 595 に従って試験を行ったとき、総質量損失が約 1 % 未満の場合には、材料は実質的にガス放出を引き起こさない。試験は、 $5 \times 10^{-5}$  torr を下回る真空下で、125 で 24 時間実施した。航空宇宙応用には適していない多くの接着剤は、溶媒、低分子量ポリマー、又は過剰の低分子量硬化剤による、高いガス放出を有している。様々な接着剤について、ガス放出データ及び他の特性を以下の表 1 に示す。

表 1

| 材料            | Tg<br>C | CTE<br>ppm/C |     | せん断強度<br>psi | ガス放出<br>% |       |       | 貯蔵弾性率<br>msi |        | 損失弾性率<br>ksi |      |
|---------------|---------|--------------|-----|--------------|-----------|-------|-------|--------------|--------|--------------|------|
|               |         | <Tg          | >Tg |              | TML       | CVC   | WVR   | <Tg          | >Tg    | <Tg          | >Tg  |
| Aptek 95402   | 37.5    | 26           | 89  | 2413         | 0.761     | 0.047 | 0.076 | 0.77         | 0.03   | 31           | 1.0  |
| 3M TC2810     | 93      | 70           | 197 | 2699         | 0.873     | 0.016 | 0.293 | 0.33         | 0.009  | 11           | 0.09 |
| Aptek 2311    | -77     | 35           | 133 | 434          | 0.662     | 0.019 | 0.299 | 0.69         | 0.02   | 27           | 1.5  |
| Arctic Silver | 52      | 39           | 124 | 1857         | 4.75      | 0.004 | 0.110 | 0.51         | 0.0003 | 14           | 0.3  |

#### 【0046】

無人宇宙船及び他の航空宇宙応用で使用される電子ボードで、熱伝導性の柔軟な結合を形成することができる接着剤材料が提供される。また、このような結合を形成するためのこれらの接着剤材料を使用する方法、並びにこれらの接着剤材料及びそこに含まれる処理済み充填剤粒子などの様々なコンポーネントを調製する方法も提供される。幾つかの態様では、硬化後、接着剤材料は少なくとも約  $2 \text{ W/mK}$  の熱伝導率、及び真空下で試験した結合されたジョイント構造では少なくとも約  $2.5 \text{ W/mK}$  の熱伝導率を有する。さらに、これらの熱伝導率の値は、宇宙応用には使用されない一般的な熱伝導性接着剤よりも高くなっている（また、ガス放出、ガラス転移点、及び他の特性など、上で列挙した特性の一部については不十分である）。これらの熱伝導率の値は、無人宇宙船及び他の航空宇宙応用を反映する真空中で試験される結合されたジョイント構造に対応していることに留意されたい。

#### 【0047】

記述されている接着剤材料は、約 - 40 未満、及びより具体的には、約 - 60 未満

、例えば - 70 などのガラス転移点を有することがある。このような低いガラス転移点により、動作温度範囲が動作中に機械特性の予期せぬ変化を引き起こすガラス転移点と重ならないことが保証される。さらに、これらの接着剤材料は十分に柔軟であり、しかも運用中のガス放出は実質的にゼロになっている。幾つかの態様では、硬化した接着剤材料は、約 100 psi から 500 psi の間のせん断強度を有するため、これらの接着剤を含むアセンブリは、アセンブリの残りのコンポーネントを損傷することなく、再加工可能となる。さらに、硬化した接着剤の引張弾性率は約  $10^3$  psi から  $10^5$  psi の間となりうる。

#### 【0048】

記述されている接着剤材料は、混合された充填剤粒子及びエポキシを含む。充填剤粒子は、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、及び/又は他の好適な材料から形成されうる。充填剤粒子は、エポキシとの結合を強化するため、その表面に有機官能基を有してもよい。例えば、窒化ホウ素粒子は、これらの粒子とウレタン変性エポキシを組み合わせる前に有機官能基を有するシランで処理されてもよい。硬化中に、ウレタン変性エポキシは、充填剤粒子の表面上の有機官能基と共有結合を形成することがある。接着剤材料中での粒子の重量比率は約 40 ~ 60 重量%となることがある。無人宇宙船及び他の航空宇宙応用に対して機械的な特性及び他の特性を維持する間、この重量比率が最大の熱伝導率ももたらすことは、実験的に決定されている。

#### 【0049】

充填剤粒子は、二重非対称遠心混合を使用してエポキシと組み合わせられてもよい。このタイプの混合は、混合容器の回転運動と自転運動を同時に利用し、幾つかの態様では、接着剤材料への気泡の導入を除去するため、減圧環境下で実施されてもよい。さらに、二重非対称遠心混合により、希釈を要することなく、粘性材料の混合が可能になる。幾つかの態様では、混合された接着剤材料の粘度は、少なくとも約 100,000 cP、或いはより具体的には、少なくとも約 500,000 cP となる。高い粘度の混合性能により、充填剤粒子の重量比率を高めることが可能で、幾つかの態様では、エポキシ中の充填剤の適切な分散を保証するため、混合中に高いせん断力をもたらしことができる。

#### 【0050】

記述されている接着剤材料により、様々な電力密度の制約によってこれまでは制限されていた新しい設計を探ることができる。例えば、コンポーネントがより緻密に実装された設計、及び/又はより高出力の電子コンポーネントを使用する設計も可能になる。さらに、既存の電子コンポーネントの付加的な機能も探ることができる。例えば、幾つかのコンポーネントは、より高い周波数で運用され、及び/又はより大きな出力を引き出せるようになる。現時点では、幾つかのコンポーネントの能力は、これらのコンポーネントの過熱を防止するため、意図的に制限されている。具体的な実施例では、搭載電子機器は定格 2 W のコンポーネントを使用しうるが、現在使用されている接着剤による放熱能力の限界により 0.5 W で動作されている。

#### 【0051】

接着剤材料を含む電子アセンブリの実施例

熱伝導性のある柔軟な結合を形成するための方法及びこれらの結合を形成するための接着剤材料を調製する方法を記述する前に、様々な特徴をより深く理解するため、無人宇宙船及び他の航空宇宙応用に使用される電子アセンブリについて簡単に記述する。具体的には、図 1 は、電子コンポーネント 108 を電子ボード 102 の表面 104 に結合する、硬化した熱伝導性の柔軟な接着剤 106 を含むアセンブリ 100 の概略図である。電子ボード 102 は、無人宇宙船（例えば、ボーイング 702 HP、702 MP 及び 702 SP 宇宙船）に実装されうる。電子コンポーネントの例は、抵抗、トランジスタ、ダイオード、コンデンサ、及び他の類似デバイスを含む。電子ボード 102 はポリイミド及びエポキシ樹脂から作られる。

#### 【0052】

硬化した接着剤 106 は、電子ボード 102 の表面 104 の層を形成することがある。

10

20

30

40

50

層は連続層又はパッチ層であってもよい。具体的には、連続層は電子ボード 102 の表面 104 全体に広がってもよく、またこの電子ボード 102 上の隣接する電子コンポーネントの間に広がってもよい。他方、パッチ層は電子コンポーネントの占有面積に対応する個々の領域のみをカバーしうる。パッチ層が隣接する電子コンポーネント間に広がることはない。この層の厚みは、約 0.001 インチから 0.010 インチの間、或いはより具体的には約 0.004 インチから 0.008 インチの間、例えば、約 0.005 インチから 0.006 インチの間であってもよい。この厚みは、電子ボード 102 の表面 104 の様々な局所の変動をカバーし、電子コンポーネントと電子ボード 102 との間の分離（例えば、電氣的短絡を防止するため）を可能にする。同時に、過剰な厚みはこの接合部分の熱抵抗を高め、アセンブリ 100 の総重量を増大させる。

10

#### 【0053】

最終アセンブリでは、硬化した接着剤 106 は電子ボード 102 と電子コンポーネント 108 の両方に直接接触し、これによって電子ボード 102 と電子コンポーネント 108 との間に熱流束の経路をもたらす。幾つかの態様では、硬化した接着剤 105 は幾つかの電子コンポーネントを部分的に又は全体的に包み込む。例えば、電子コンポーネントは、硬化した接着剤 106 によって形成される層へ、少なくとも部分的に突出することがある。代替的に、電子コンポーネントは、硬化した接着剤 106 の層に接触する表面のみを有して、この層に突出しないこともある。

#### 【0054】

硬化した接着剤 106 の特性、例えば低いせん断強度（例えば、500 psi 未満）は、アセンブリ 100 からの電子コンポーネントの取り外し、及び元のコンポーネントと別のコンポーネントとの交換を可能にしうる。例えば、元のコンポーネントは、アセンブリの試験中又は動作中に故障することがある。このコンポーネントは電子ボード 102 から電氣的に切り離され、アセンブリの他のコンポーネントを妨げることなく、硬化した接着剤 106 から機械的に分離可能である。次いで、硬化していない接着剤材料がこの位置へ追加的に導入され、硬化すると、残存している硬化した接着剤及び新しい電子コンポーネントと共に熱伝導性の柔軟な結合を形成することができる。

20

#### 【0055】

##### 処理の実施例

図 2A 及び 2B は、幾つかの態様に従って、無人宇宙船及び他の航空宇宙応用の電子ボードで使用される、熱伝導性の柔軟な結合を形成する方法 200 に対応しているプロセスフロー図を図解している。熱伝導性の柔軟な結合は、熱伝導性の柔軟な接着剤材料を使用して形成されるが、これは本明細書で多くの場合、接着剤材料と記述されている。幾つかの態様では、熱伝導性の柔軟な接着剤材料及び / 又はそのコンポーネントを調製する方法もまた、方法 200 の一部である。代替的に、任意の上流操作なしで、あらかじめ調製された接着剤材料が方法 200 で使用されることがある。例えば、凍結プレミックスが提供されることがあり、方法 200 は、凍結プレミックスが使用温度に戻される間に、操作 220 から開始されてもよい。

30

#### 【0056】

さらに、熱伝導性の柔軟な接着剤の調製方法は、同一の対象物で当該接着剤をその後使用することなく実施されることがある。例えば、処理済みの充填剤粒子が提供されると、方法 200 は操作 212 及び / 又は操作 214 と同時に開始されてもよく、その間、接着剤材料を最終的に形成するため、処理済みの充填剤粒子はエポキシと組み合わせられる。この接着剤材料は、導電性の柔軟な結合を形成するため、操作 222 ~ 226 で直ちに使用されてもよく、或いは操作 218 で凍結され同一又は別の対象物で使用されるように保存されてもよい。

40

#### 【0057】

さらに、熱伝導性の柔軟な接着剤材料の一又は複数のコンポーネントは、本明細書で記述される様々な操作を用いて調製されることがある。これらのコンポーネントは、接着剤材料を調製するため、その後の方法（例えば、別の対象物によって）で使用されてもよい

50

。例えば、充填剤粒子は操作 2 0 2 ~ 2 1 0 の間に処理され、その後同一又は別の対象物で使用するため保存されることがある。

【 0 0 5 8 】

全般的に、図 2 A 及び 2 B を参照して本明細書に記述されている方法 2 0 0 は、同一の対象物又は別の対象物で互いに独立に実施される異なる操作群を含んでもよい。したがって、図 2 A 及び 2 B に示されている操作のすべてが、同一の方法の一部である必要はない。

【 0 0 5 9 】

幾つかの態様では、方法 2 0 0 は操作 2 0 2 の充填剤粒子の提供と共に開始されることがある。充填剤粒子は、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、酸化アルミニウム、及びこれらの組み合わせから形成されてもよい。一般的に、高い熱伝導率と低い電気伝導率を有する材料は、本明細書に記述されている熱伝導性の柔軟な接着剤材料の充填剤として使用される。しかしながら、上述のように、高い熱伝導率を有する材料の多くはまた、良好な導電体でもあるため、充填剤には適していない。幾つかの態様では、充填剤粒子は窒化ホウ素から形成される。窒化ホウ素は（結晶の a b 平面で）約  $300\text{ W/mK}$  の熱伝導率を有するが、一方、その電気抵抗率は約  $10^{14}\text{ }\Omega\cdot\text{m}$  を超えている。幾つかの態様では、充填剤粒子は窒化アルミニウムから形成される。窒化アルミニウムは最大で  $140\sim180\text{ W/mK}$  の熱伝導率を有するが、一方、その電気抵抗率は約  $10^{14}\text{ }\Omega\cdot\text{m}$  を超えている。言うまでもなく、これらの特性は材料の純度、形態、及び他の特性に依存することがある。

【 0 0 6 0 】

充填剤粒子は凝集体、球体、及び小板状体の形態をとりうる。一般的に、充填剤粒子の形状は、充填剤粒子の任意の 2 つの寸法の平均アスペクト比が 5 未満、などのように三次元形状として記述されることがある。三次元形状は、1 つ寸法が他の 2 つの寸法を大幅に超える（5 倍を超える）ような、1 次元形状とは区別されなければならない。1 次元形状の幾つかの例はワイヤ、ロッド、繊維などを含む。三次元形状は、2 つの寸法の各々が残り 1 つの寸法を大幅に超える（5 倍を超える）ような、2 次元形状とは区別されなければならない。2 次元形状の幾つかの例は薄片、小板状体などを含む。この理解は実験的に検証されている。2 次元粒子又は 1 次元粒子と異なり、3 次元粒子は 3 方向すべてで同等の熱伝導率を有する。

【 0 0 6 1 】

充填剤粒子の特定の例は、PT350 窒化ホウ素粒子及び PTX60 窒化ホウ素粒子を含むが、どちらもオハイオ州コロンバスの Momentive Performance Materials から供給されている。PT350 粒子は、 $125\sim150$  マイクロメートルの平均粒子サイズ、 $3.3\text{ m}^2/\text{g}$  の表面積、及び  $0.7\text{ g/m}^3$  のタップ密度を有する。PTX60 粒子は、 $55\sim65$  マイクロメートルの平均粒子サイズ、 $5.5\text{ m}^2/\text{g}$  の表面積、及び  $0.4\text{ g/m}^3$  のタップ密度を有する。PT350 粒子の走査型電子顕微鏡（SEM）画像を図 4 D に、PTX60 粒子の SEM 画像を図 4 C に示す。PT350 粒子は中密度凝集体を特徴とすることがあり、一方、PTX60 粒子は球形凝集体を特徴とすることがある。

【 0 0 6 2 】

充填剤粒子の他の例は、PCTP30 窒化ホウ素粒子及び PCTH3MHF 窒化ホウ素粒子を含むが、どちらもニューヨーク州アマーストの Saint-Gobain Ceramic Materials から供給されている。PCTP30 粒子は、 $75$  マイクロメートルの平均粒子サイズ、 $2.5\text{ m}^2/\text{g}$  の表面積、及び  $0.8\text{ g/m}^3$  のタップ密度を有する。PCTH3MHF 粒子は、 $30$  マイクロメートルの平均粒子サイズ、 $2.5\text{ m}^2/\text{g}$  の表面積、及び  $0.6\text{ g/m}^3$  のタップ密度を有する。PCTP30 粒子の SEM 画像を図 4 A に、PCTH3MHF 粒子の SEM 画像を図 4 B に示す。PCTP30 粒子は高密度凝集体を特徴とすることがあり、一方、PCTH3MHF 粒子は小板状体を特徴とすることがある。

【 0 0 6 3 】

幾つかの態様では、充填剤の平均粒子サイズは約 10 マイクロメートルと 200 マイクロメートルの間、より具体的には、約 20 マイクロメートルと 120 マイクロメートルの間、例えば、50 マイクロメートルと 150 マイクロメートルの間にある。充填剤粒子の形状と同様に、これらの寸法は、以下でさらに記述されるように、熱特性と機械的特性の特定の組み合わせをもたらす。具体的には、これらの寸法により、機械的特性を維持するため材料間の十分な結合を保持しつつ、良好な熱伝導率をもたらすように所望の充填密度を実現することができる。

#### 【0064】

方法 200 は、操作 204 で粒子の表面に水酸基を付着させるため、充填剤粒子の前処理に進んでもよい。例えば、充填剤粒子は、高湿度環境、例えば、温度 85 °C かつ相対湿度 85 % で 4 時間処理されることがある。前処理された充填剤粒子は、以下の実験結果セクションに示すように、シランの高い吸着を実証している。図 3A は操作 204 の前の充填剤粒子 300 の概略図であり、図 3B は操作 204 の後の充填剤粒子 310 の概略図で、表面への水酸基の付着を示している。

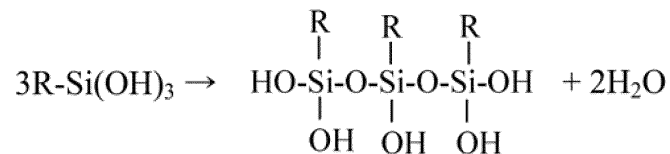
#### 【0065】

方法 200 は、操作 206 のシラン含有溶液への充填剤粒子の曝露に進んでもよい。シランの加水分解性基は、以下の 2 つの反応式による加水分解反応と縮合反応を示す。

加水分解反応：



縮合反応：



#### 【0066】

縮合反応後、修飾されたシランの水酸基は充填剤粒子の表面の水酸基と水素結合を形成し、最終的に共有結合を形成してその後水を放出する。結果的に得られる構造の概略図を図 3C に示す。具体的には、構造 320 は充填剤粒子 300 及び共有結合官能基 (R) を含む。幾つかの態様では、これらの官能基は有機官能基、例えば、エポキシ基 (例えば、 $\text{C}_2\text{O}_2\text{H}_3\text{R}$ )、或いはより具体的に、エポキシ基とアルコール官能基 (例えば、 $\text{C}_2\text{O}_2\text{H}_3\text{R}$ 、ここで R は  $\text{O}(\text{CH}_2)_n$ 、 $n = 1 \sim 5$ 、或いは、より具体的に  $n = 2 \sim 4$ 、 $n = 3$  など) を両方含むグリシジル基である。操作 206 で使用されるシラン含有溶液はまた、溶媒を含んでもよい。水などの一部の溶媒では、シランと充填剤粒子との間の結合形成が、メタノール及びイソプロピルアルコールなどよりも、有効であることが明らかになっている。種々の溶媒の有効性を決定するため、一連の試験が実施された。例えば、以下でさらに述べるように、(3-グリシジロキシプロピル)トリメトキシシランを溶解するためメタノール又はイソプロピルアルコールが使用されたときには、窒化ホウ素粒子の表面には実質的にシランが残留しないことが明らかになっている。

#### 【0067】

さらに、溶液の酸性度は、充填剤粒子の表面に結合するシランの能力に影響を及ぼすことが明らかになっている。例えば、pH 値が 3 の (3-グリシジロキシプロピル)トリメトキシシラン水溶液中でこれらの粒子が処理されたときには、窒化ホウ素粒子の表面にシランは結合しなかった。また、pH 値が 6 を超えて上昇したときでも、表面上にさほど多くのシランは保持されなかった。幾つかの態様では、溶液は約 5 と 6 の間の pH 値を有する。これらの態様では、溶液は水溶液であってもよい。

#### 【0068】

充填剤粒子の表面へのシランの結合は、操作 206 で使用される溶液のシラン濃度によっても影響される。幾つかの態様では、(この溶液中の) 充填剤粒子の重量に対するシランの濃度は、約 1.5 重量% から 4 重量% の間、或いはより具体的に、約 2 重量% から 3

10

20

30

40

50

重量%の間にある。実験により、窒化ホウ素に対して2.4重量%の(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランは、1.2%又は4.8%の場合よりも多くのシランが窒化ホウ素粒子に結合することが明らかになった。シランが多すぎると、粒子表面に過剰な架橋結合(重合)を引き起こし、粒子の凝集体を形成する結果となることがある。同時にシランの量が十分でないと、粒子とエポキシとの間に十分な結合がもたらされない。充填剤粒子をシランで処理する際に使用される溶液中には他のコンポーネントも存在するが、その他の言及が明確に記載されていない場合には、シランの重量比率は充填剤粒子の重量に対するものであることに留意されたい。

#### 【0069】

幾つかの態様では、方法200は操作208の充填剤粒子の洗浄を含みうる。洗浄操作は充填剤粒子に結合していない残留シランを除去する。例えば、処理済み粒子は、水又は他の何らかの好適な液体と一又は複数回混合されてもよい。方法200はまた、処理済み粒子から残留溶媒が取り除かれる、任意選択の乾燥操作210を含むことがある。幾つかの態様では、例えば、溶媒が接着剤材料の形成に使用されるエポキシと適合性がある場合には、粒子は何らかの残留溶媒と共にその後の操作で導入されることがある。

#### 【0070】

上述のように、方法200は操作212及び214の前で終了してもよい(例えば、操作208又は操作210の完了後)。処理済み充填剤粒子はこの時点で保存されてもよい。幾つかの態様では、処理済み粒子はさらなる処理を行うため別の対象物へ移される。代替的に、方法200は操作212及び214に進んでもよい。

#### 【0071】

操作214では、エポキシ又は他の何らかの種類の接着剤基材が処理済み粒子と組み合わせられ、これによって組合せ材料を形成する。接着剤基材の具体的な例はウレタン変性エポキシである。ポリウレタン、エポキシ、シリコン、及びウレタン変性エポキシは2つのコンポーネント、例えば樹脂と硬化剤を含むことがある。使用されるウレタン変性エポキシは、低弾性率、低ガラス転移点エポキシであってもよい。充填剤粒子を(例えば、硬化した接着剤基材として)追加することなく、ウレタン変性エポキシは低ガラス転移点(-60未満、例えば-80)及び低せん断強度(例えば、500psi)を有することがある。

#### 【0072】

多数のコンポーネントからなる接着剤基材が操作214で使用されるとき、処理済み粒子は一又は複数のこれらのコンポーネントと組み合わせられてもよい。例えば、任意選択の操作212で、樹脂とエポキシの硬化剤が最初に混合され、次いでこの混合物は操作214で処理済み粒子と組み合わせられてもよい。樹脂と硬化剤は、二重非対称遠心混合器又は他の種類の混合器を使用して混合されてもよい。二重非対称遠心混合器が使用されると、混合時間は約15秒と60秒との間、例えば約30秒であってもよい。回転速度は約1000RPMと5000RPMの間、例えば約3000RPMであってもよい。混合器の主軸の周りの3000RPMの回転に加えて、容器はまたその中心軸の周りに750RPMで回転する。全体として、二重非対称遠心混合器の操作は当業者であれば容易に理解されるであろう。

#### 【0073】

樹脂と硬化剤の(処理済み粒子の導入に先立つ)混合により、混合物の粘度は低下し、そうでない場合よりも多くの処理済み粒子の導入が可能になる。幾つかの態様では、操作214で形成された組合せ材料中の処理済み粒子の(重量負荷レベルの)濃度は、組合せ材料の総量に対して、約20重量%から70重量%の間、或いはより具体的に、約40重量%から60重量%の間となる。これらの負荷レベルは、充填剤粒子のタイプ、サイズ、形態及び他の特性に依存する。

#### 【0074】

さらに、樹脂と硬化剤の(処理済み粒子の導入に先立つ)混合により、処理済み粒子を含む混合物に必要とされる混合時間を短縮することが可能になり、その結果、これらの粒

10

20

30

40

50

子が受ける応力全体を低減することができる。粒子を含む材料の過剰な混合は、これらの粒子の形状及びサイズを変化させる傾向があることが明らかになっている。その結果、得られる接着剤材料の熱伝導性特性は多くの場合、悪影響を受ける。例えば、同一重量負荷に対して、粒子間の接触は大きな粒子よりも小さな粒子のほうが少なくなることがある。幾つかの態様では、総混合時間は、混合物に処理済み粒子が導入された後、5分未満、より具体的には、2分未満、あるいは1分未満となる。幾つかの態様では、混合は混合段階の間に一又は複数の冷却休止期間をおいて実施される。温度を制御することは、その段階で混合物の硬化を低減するのに役立つ。この温度制御に関しては、他の冷却技術（混合容器上での冷却ジャケットの使用など）も同様に使用しうる。例えば、混合物の温度は、操作214で60 未満、より具体的には、50 未満に維持されうる。

10

#### 【0075】

幾つかの態様では、処理済み粒子は、操作214で樹脂又は硬化剤と組み合わせられることもあるが、樹脂と硬化剤の両方と組み合わせられることはない。すなわち、操作212は実施されない。幾つかの態様では、処理済み粒子の一部は樹脂と組み合わせられることがあり、処理済み粒子の別の部分は硬化剤と組み合わせられることがある。しかしながら、これら2つの部分が操作214まで互いに組み合わせられることはない。このような手法により、樹脂と硬化剤との接触がなくなり、硬化プロセスは後の処理段階まで開始されない。

#### 【0076】

方法200は、操作216で熱伝導性の柔軟な接着剤材料を形成するため、組合せ材料の混合に進んでもよい。混合した接着剤材料は樹脂、硬化剤が一様に分布し、材料中の処理済み粒子は、例えば、操作214の終了時の組合せ材料とは異なる。操作216の後、接着剤材料は使用可能となることがあり、或いは、例えば操作218で接着剤を凍結することによって保存可能となることがある。接着剤材料が凍結された場合には、操作220で使用温度（例えば、室温）に戻されることがある。

20

#### 【0077】

操作216は、二重非対称遠心混合器又は他の好適な混合器を使用して、組合せ材料を混合することを含む。幾つかの態様では、二重非対称遠心混合器の回転速度は、約1000RPMから2000RPMの間、或いは、より具体的に、約1400RPMから1600RPMの間となる。充填剤粒子の粉砕を防止するため、この操作では（樹脂と硬化剤との予混合に用いられる操作とは対照的に）低速が使用される。熱伝導性の柔軟な接着剤材料は、混合後少なくとも約100,000cP、或いは少なくとも約500,000cPの粘度を有することがある。

30

#### 【0078】

方法200は、操作222の電子ボードの表面への接着剤材料の塗布、及び操作224の電子コンポーネントと接着剤材料との間での接触部の形成に進んでもよい。接着剤材料は次いで、操作226で硬化される。硬化操作は熱硬化を含むことがあり、例えば、接着剤を含むアセンブリは約110 未満、例えば約100 で約1時間加熱される。従来の多くの電子機器用接着剤は少なくとも120 の硬化温度を必要とするが、この温度は無人宇宙船のコンポーネントを損傷することがある。充填剤を含む接着剤及び直接見通すことができない応用で使用する接着剤は一般的に、UV硬化、IR硬化、X線硬化、及び他の同様の硬化など、照射法を用いて硬化することはできない。

40

#### 【0079】

#### 実験結果

種々の充填剤粒子の性能特性を明らかにするため、様々な実験が実施された。具体的には、PT350粒子、PTX60粒子、PCTP30粒子、及びPCTH3MHF粒子が試験された。これらの粒子の幾つかの記述及び特性については既に示している。1つの試験では、2種類のエポキシ、例えば、ガラス転移点が-60 未満でウレタン変性エポキシ系であるAptek 95318、及びAptek 95318よりも粘度が低いガラス転移点が約50 よりも高くエポキシ系であるAptek 95143を用いて、これら4種類の粒子の可能な最大重量負荷が試験された。最大負荷は、むき出しのアルミニ

50

ウム上にペーストが塗布できなくなるとき、及び／又は最大押出速度に基づいて決定される。PT350粒子は2種類のエポキシ中で約62%の最大重量負荷を有し、一方、PTX60粒子は2種類のエポキシ中で約50%の最大重量負荷を有した。PCTP30粒子とPCTH3MHF粒子の両方について、平均最大負荷は約67%であった。一般的に、可能な最大負荷が必要とされる。しかしながら、最大負荷、ペーストの使いやすさ、及び強度の間にはトレードオフが存在する。

#### 【0080】

同じ4種類の充填剤粒子の30%重量負荷を用いて調製され硬化した接着剤材料の熱伝導率を決定するため別の試験を実施した。真空中で結合されたジョイント構造が使用された。この試験の各種の態様は既に述べたとおりである。5mil結合ラインは、直径0.005インチのガラスビーズを添加することによって制御された。結合ラインなしは、結合ラインを制御する充填剤粒子サイズ（小因子）及び接着剤粘度（主要因子）のみによって厚さが制御されたという意味である。試験結果を下の表2Aに示す。

表2A—30%重量負荷での熱伝導率（W/mK）

| 粒子       | 5mil 結合ライン | 結合ラインなし |
|----------|------------|---------|
| PCTP30   | 0.65       | 0.10    |
| PCTH3MHF | 0.45       | 0.38    |
| PT350    | 0.79       | 1.05    |
| PTX60    | 0.64       | 0.98    |

#### 【0081】

同じ4種類の充填剤粒子（例えば、PT350粒子、PTX60粒子、PCTP30粒子、及びPCTH3MHF粒子）について最大重量負荷で熱伝導率試験を繰り返した。真空中で結合されたジョイント構造が再度使用された。試験結果を下の表2Bに示す。

表2B—最大重量負荷での熱伝導率（W/mK）

| 粒子       | 最大負荷   | 5mil 結合ライン | 結合ラインなし |
|----------|--------|------------|---------|
| PCTP30   | 52 重量% | 1.25       | 0.35    |
| PCTH3MHF | 55 重量% | 1.15       | 1.55    |
| PT350    | 41 重量% | 1.49       | 3.90    |
| PTX60    | 52 重量% | 2.40       | 2.35    |

#### 【0082】

PCTP30粒子とPCTH3MHF粒子の各種組み合わせについて別の熱伝導率試験を実施し、さらにこれとは別に、PT350粒子とPTX60粒子の各種組み合わせについても熱伝導率試験を実施した。これらの組み合わせに対して、総負荷は30重量%に設定された。試験結果を下の表3及び表4に示す。

表3—2種類の粒子の組み合わせによる熱伝導率（W/mK）

| PCTP30 比率 | PCTH3MHF 比率 | 5mil 結合ライン |
|-----------|-------------|------------|
| 0 重量%     | 100 重量%     | 0.48       |
| 25 重量%    | 75 重量%      | 0.50       |
| 50 重量%    | 50 重量%      | 0.42       |
| 75 重量%    | 25 重量%      | 0.47       |
| 100 重量%   | 0 重量%       | 0.66       |

表 4-2 種類の粒子の組み合わせによる熱伝導率 (W/mK)

| PT350 比率 | PTX60 比率 | 5mil 結合ライン |
|----------|----------|------------|
| 0 重量%    | 100 重量%  | 0.65       |
| 25 重量%   | 75 重量%   | 0.66       |
| 50 重量%   | 50 重量%   | 0.81       |
| 75 重量%   | 25 重量%   | 0.72       |
| 100 重量%  | 0 重量%    | 0.79       |

## 【 0 0 8 3 】

10

上記実験結果に基づいて、PTX60 粒子は最も良い性能を示し、PT350 がこれに続いた。この試験では表面積が重要な要因と考えられる。

## 【 0 0 8 4 】

充填剤粒子の表面を処理するためのパラメータを決定するため、追加試験を実施した。この処理の目標は、試験エポキシとの適合性及び濡れ性を高めることであった。1つの適合性の態様は混合接着剤材料の粘度を低下させることであった。他の態様は充填剤粒子とエポキシとの間の結合を確立することであった。具体的には、(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランによるシラン処理を用いた。シラン処理の後に熱重量分析を行ったが、これには処理済み粒子の表面上のシランの大部分を分解して取り除くため処理済み充填剤粒子を600℃まで加熱すること、及びこのシラン分解及び除去の結果として重量損失を測定することを含む。

20

## 【 0 0 8 5 】

充填剤粒子の表面へのシランの結合を確実にするため、上述のように表面は水酸基を導入するべく事前処理された。4種類の試料に対して熱重量分析が行われた。第1の試料は、シランに全く曝露されていない粒子(例えば、第1レファレンス)を含んでいた。この試料はシラン以外の損失/ノイズにより0.08%の重量損失しか示さなかった。第2の試料は、シランに曝露されたが事前処理されていない粒子(例えば、第2レファレンス)を含んでいた。この試料は約0.2%の重量損失を示した。第3の試料は、水酸化ナトリウムで事前処理されてからシランに曝露された粒子を含んでいた。この試料は約0.1%の重量損失を示した。この値は第1レファレンスでの値よりも大幅に大きいわけではないが、実際には第2レファレンスよりも悪い値であった。最終的に、第4の試料は、湿潤な環境(例えば、高濃度の水蒸気を含む環境)で調製された後にシランに曝露された粒子を含んでいた。この試料は約0.26%の重量損失を示した。

30

## 【 0 0 8 6 】

別の試験では、シラン含有溶液に対して異なる溶媒が試験された。(3-グリシジルオキシプロピル)トリメトキシシランは異なる溶媒と組み合わせられ、その後粒子の処理が行われた。メタノールとイソプロパノールは、レファレンス試料としてほぼ同様の性能を示し、その値は0.075%の重量損失であった。しかしながら、シランの溶解に水を使用したときには、処理済み充填剤粒子の重量損失は最大0.26%となった。

## 【 0 0 8 7 】

40

充填剤粒子へのシランの結合に関して、シラン含有溶液の酸性度の影響を決定するために別の試験を行った。pH値3から8.5について試験を行った。この試験の結果を下の表5に示す。

表5—溶液酸性度の関数としての TGA 重量損失

| 溶液の pH   | TGA 重量損失 |
|----------|----------|
| 基準（処理なし） | 0.075%   |
| 3        | 0.09%    |
| 5.5      | 0.26%    |
| 7        | 0.22%    |
| 8.5      | 0.21%    |

## 【 0 0 8 8 】

10

充填剤粒子上でのシランの保持に関して、シラン濃度の影響を決定するためにさらに別の試験を行った。これらの溶液で処理される充填剤粒子の重量に基づいて 0 重量 % から 4 . 8 重量 % のシラン濃度の溶液が調製され、窒化ホウ素粒子はこれらの溶液中でそれぞれ別々に処理された。この試験の結果を下の表 6 に示す。

表6—シラン濃度の関数としての TGA 重量損失

| シランの重量濃度  | TGA 重量損失 |
|-----------|----------|
| 基準（処理なし）  | 0.075    |
| 0% （溶媒のみ） | 0.075    |
| 1.2%      | 0.16     |
| 2.4%      | 0.26     |
| 4.8%      | 0.13     |

20

## 【 0 0 8 9 】

## 航空機の実施例

図 5 A は、様々なピークル、航空機、及び宇宙船に対する製造及び保守の一般的なフロー図である。一方、以下の説明は無人宇宙船について言及しているが、当業者であれば、航空機などの他のピークルに対しても、同様の操作及び一般的なコンポーネントが使用されうることが理解されるであろう。図 5 B は、無人宇宙船の一般的なブロック図で、本明細書に示されているプロセス及びシステムの様々な特徴をよりわかりやすく図解するように記述されている。

30

## 【 0 0 9 0 】

製造前の段階では、無人宇宙船の製造及び保守方法 5 0 0 は、無人宇宙船 5 3 0 の仕様及び設計 5 0 2 及び材料の調達 5 0 4 を含む。製造の段階は、無人宇宙船 5 3 0 のコンポーネント及びサブアセンブリの製造 5 0 5 並びにシステムインテグレーション 5 0 8 を含む。その後、無人宇宙船 5 3 0 は認可及び納品 5 1 0 を経て運航 5 1 2（例えば、特定のスペースミッション）に供される。運航中、無人宇宙船 5 3 0 は定期的な整備及び保守 5 1 4（改造、再構成、改修なども含む）が予定される。

## 【 0 0 9 1 】

無人宇宙船の製造及び保守方法 5 0 0 の各プロセスは、システムインテグレータ、第三者、及び / 又はオペレーター（例えば顧客）によって実施又は実行されうる。この説明のために、システムインテグレータは限定しないが、任意の数の無人宇宙船製造業者及び主要システムの下請け業者を含む。第三者は、例えば、限定するものではないが、任意の数の供給メーカー、下請け業者、及びサプライヤを含む。

40

## 【 0 0 9 2 】

図 5 B に示されるように、航空機の製造及び保守方法 5 0 0 によって製造された無人宇宙船 5 3 0 は、フレーム 5 3 2 及び複数のシステム 5 3 4 を含む。システム 5 3 4 の幾つかの実施例は、一又は複数の推進システム 5 3 8 及び電気システム 5 4 0 を含む。電気システム 5 4 0 は、上述の一又は複数の熱伝導性の柔軟な接着剤材料及び方法を用いて製造及び / 又は保守されてもよい。

50

## 【 0 0 9 3 】

本明細書に開示される装置と方法は、製造及び保守方法 5 0 0 の一又は複数の任意の段階で採用されうる。また、一又は複数の装置の態様、方法の態様、又はこれらの組み合わせは、例えば、限定するものではないが、無人宇宙船 5 3 0 の組立てを実質的に効率化するか、又は新しい機能（例えば、電子回路設計）を可能にすることによって、コンポーネント及びサブアセンブリの製造 5 0 5 並びにシステムインテグレーション 5 0 8 の段階で利用されうる。同様に、装置の態様、方法の態様、又はこれらの組み合わせのうちの一又は複数の態様は、例えば、限定するものではないが、整備及び保守 5 1 4 に対して無人宇宙船 5 3 0 が運航中であるときには、部品が互いに結合されているか及び / 又は一致しているかを判断するために、システムインテグレーション 5 0 8 及び / 又は整備及び保守 5 1 4 の段階で、利用されうる。

10

## 【 0 0 9 4 】

## 結論

前述の概念は、理解の明確化を目的としてやや詳細に記述されているが、ある種の変更および修正は添付の特許請求の範囲内で、実践されうることは明らかであろう。プロセス、システム、及び装置の実装には多数の代替的な方法があることに留意されたい。したがって、本態様は例示的なものであって、限定的なものではないとみなされる。

## 【 符号の説明 】

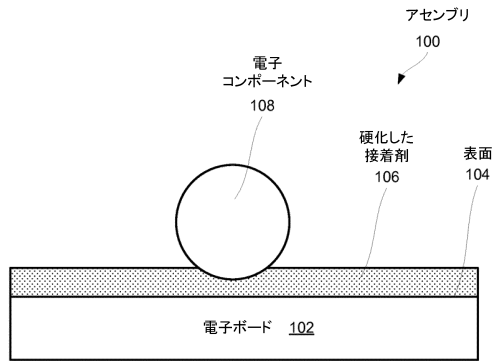
## 【 0 0 9 5 】

- 1 0 0      アセンブリ
- 1 0 2      電子ボード
- 1 0 4      表面
- 1 0 6      硬化した接着剤
- 1 0 8      電子コンポーネント
- 3 0 0      充填剤粒子
- 3 1 0      水酸基が付着した充填剤粒子
- 3 2 0      充填剤粒子及び共有結合官能基を含む構造
- 5 3 0      無人宇宙船
- 5 3 2      フレーム
- 5 3 4      システム
- 5 3 8      推進
- 5 4 0      電気

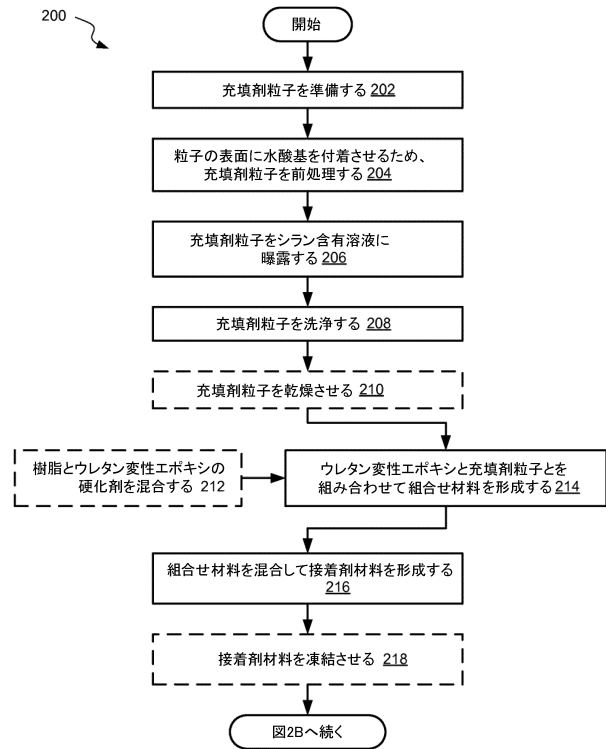
20

30

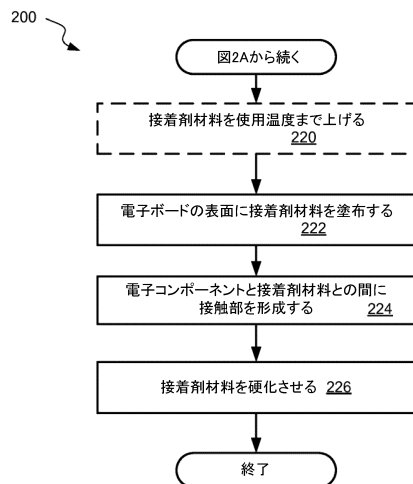
【図 1】



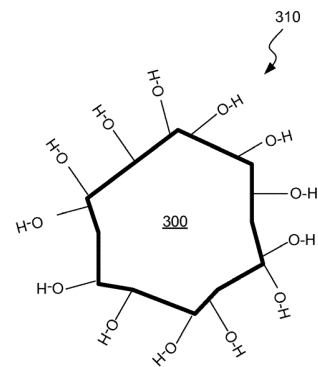
【図 2 A】



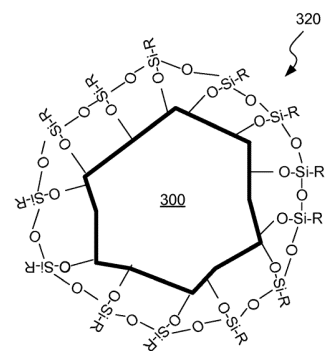
【図 2 B】



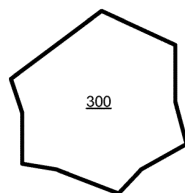
【図 3 B】



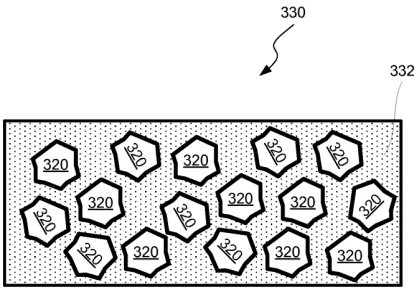
【図 3 C】



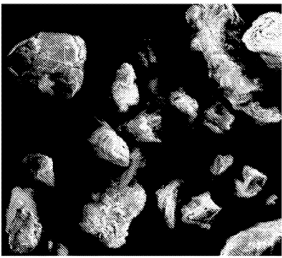
【図 3 A】



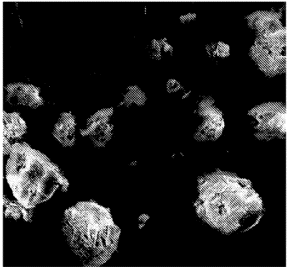
【図 3 D】



【図 4 B】



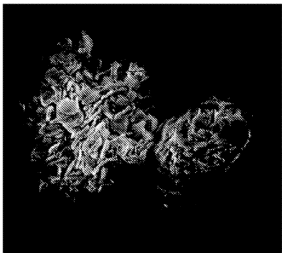
【図 4 C】



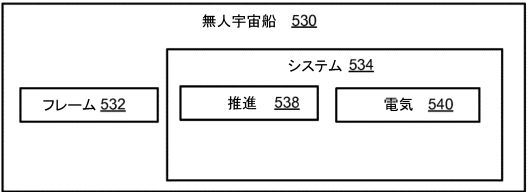
【図 4 A】



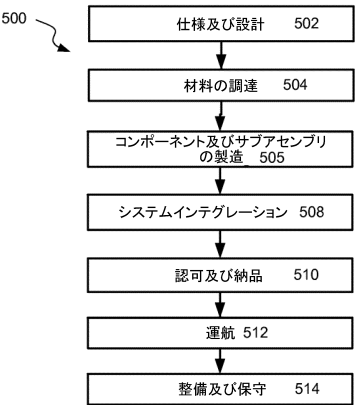
【図 4 D】



【図 5 B】



【図 5 A】



---

フロントページの続き

(72)発明者 モス, ランドール ジェイ  
アメリカ合衆国 カリフォルニア 90245-3507, エル セグンド, イースト イン  
ペリアル ハイウェイ 2060, メール コード:ダブリュ-エス25-ディー576

審査官 上坊寺 宏枝

(56)参考文献 国際公開第2012/157627(WO, A1)  
特開平02-074545(JP, A)  
国際公開第2013/172429(WO, A1)  
特開2001-172604(JP, A)  
特開2008-106231(JP, A)  
特開平05-051540(JP, A)  
特表2008-510878(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C09J 1/00-5/00、9/00-201/10  
C09C 3/12