

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2010-36499

(P2010-36499A)

(43) 公開日 平成22年2月18日(2010.2.18)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B29C 41/24 (2006.01)	B29C 41/24	4F071
C08K 3/00 (2006.01)	C08K 3/00	4F205
C08L 101/02 (2006.01)	C08L 101/02	4J002
C08J 5/18 (2006.01)	C08J 5/18 C E Z	
B29L 7/00 (2006.01)	B29L 7:00	
審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 10 頁)		

(21) 出願番号 特願2008-203467 (P2008-203467)
 (22) 出願日 平成20年8月6日 (2008.8.6)

(71) 出願人 000003964
 日東電工株式会社
 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
 (74) 代理人 100107641
 弁理士 鎌田 耕一
 (74) 代理人 100130605
 弁理士 天野 浩治
 (72) 発明者 高山 嘉也
 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東
 電工株式会社内
 (72) 発明者 清原 進
 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東
 電工株式会社内

最終頁に続く

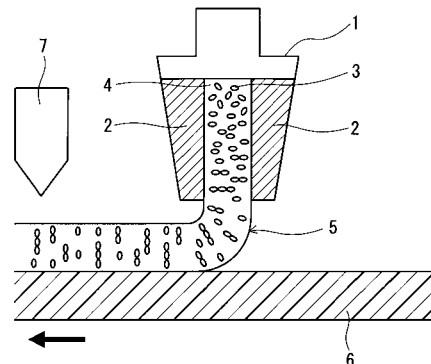
(54) 【発明の名称】 複合フィルムおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】熱伝導性フィラーとマトリックス樹脂との複合材料において、熱伝導性フィラーを高充填しなくても、厚さ方向において高い熱伝導性を有し得る複合材料を提供する。

【解決手段】光硬化性樹脂と当該樹脂内に分散する誘電体フィラーとを含む分散液を、ノズルから吐出して移動する支持体に塗布する工程、および前記光硬化性樹脂を硬化させる工程を含む複合フィルムの製造方法であって、前記分散液をノズルから吐出する際に、ノズル内の分散液を挟むようにして支持体の移動方向の上流側と下流側に設けられた2つの電極により、電界を印加する方法によって複合フィルムを製造する。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

光硬化性樹脂と当該樹脂内に分散する誘電体フィラーとを含む分散液を、ノズルから吐出して移動する支持体に塗布する工程、および前記光硬化性樹脂を硬化させる工程を含む複合フィルムの製造方法であって、

前記分散液をノズルから吐出する際に、ノズル内の分散液を挟むようにして支持体の移動方向の上流側と下流側に設けられた２つの電極により、電界を印加することを特徴とする複合フィルムの製造方法。

【請求項 2】

前記印加する電界が、周波数 $0.01 \sim 100 \text{ kHz}$ の正弦波であり、電界強度が、 $1 \sim 30 \text{ kV/mm}$ である請求項 1 に記載の製造方法。 10

【請求項 3】

前記誘電体フィラーが非球状である請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】

複合フィルムから支持体を剥離する工程をさらに含む、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 5】

請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の方法により製造された複合フィルム。

【請求項 6】

誘電体フィラー、および光硬化性樹脂の硬化物を含む複合フィルムであって、厚さ方向の熱伝導率が、面方向の熱伝導率の 1.2 倍以上である複合フィルム。 20

【請求項 7】

複合フィルム中において、前記誘電体フィラーが複数個連なって厚さ方向に配列している請求項 6 に記載の複合フィルム。

【請求項 8】

前記誘電体フィラーが、非球状フィラーであり、当該非球状フィラーの長径方向が、フィルムの厚さ方向と平行になるように配向している請求項 7 に記載の複合フィルム。

【請求項 9】

誘電体フィラーの含有率が $1 \sim 50$ 質量％である請求項 6 ～ 8 のいずれかに記載の複合フィルム。 30

【請求項 10】

請求項 6 ～ 9 のいずれかに記載の複合フィルムを用いた放熱フィルム。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、厚さ方向の熱伝導性に優れた、熱伝導性フィラーとマトリックス樹脂との複合フィルム、およびその製造方法に関する。

【背景技術】**【0002】**

近年、半導体素子の高集積化、有機 EL などの発光体の薄型化、自動車のハイブリッド化に伴うモーターの高出力化等により、電子機器、電気機器などにおいて生成する熱が大きくなり、より効率よく放熱させる必要が出てきている。電子機器、電気機器などにおいて、放熱策として、熱伝導率の高い放熱フィルムを発熱する部品に貼り付ける、熱伝導率の高い筐体で発熱する部品を囲う等が行われており、熱伝導率をより高めるべく、熱伝導性フィラーとマトリックス樹脂との複合材料に関する検討が種々行われている。 40

【0003】

例えば、特許文献 1 では、ポリアリーレンスルフィド樹脂へのフィラーの分散度を向上させてフィラーを高充填化することが行われており、特許文献 2 では、繊維軸方向の熱伝導率が高い炭素短繊維フィラーをマトリックスに配合した複合成形体について検討がなされている。また、特許文献 3 では、分散性に優れた気相法炭素繊維と耐熱性樹脂を含む樹脂 50

組成物を成形することが行われており、特許文献４では、マトリックス樹脂中にフィラーを分散させ、該フィラーを低融点金属により相互に連続的に溶着させることが行われている。

【特許文献１】特開２００７－１４６１２９号公報

【特許文献２】特開２００７－２９１５７６号公報

【特許文献３】特開２００６－１３７９３８号公報

【特許文献４】特開平６－１９６８８４号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【０００４】

10

放熱効率を向上させるには、熱伝導性フィラーとマトリックス樹脂との複合フィルムの熱伝導率が、厚さ方向において高いことが好ましい。しかし、上記のような複合材料においては、放熱の方向性についての検討がなされていなかった。また、フィラーを高充填した場合には、厚さ方向を含め複合材料全体で熱伝導率が向上するものの、複合材料が脆くなり、実用性に問題があった。

【０００５】

そこで本発明は、熱伝導性フィラーとマトリックス樹脂との複合材料において、熱伝導性フィラーを高充填しなくても、厚さ方向において高い熱伝導性を有し得る複合材料を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

20

【０００６】

上記課題を解決した本発明は、光硬化性樹脂と当該樹脂内に分散する誘電体フィラーとを含む分散液を、ノズルから吐出して移動する支持体に塗布する工程、および前記光硬化性樹脂を硬化させる工程を含む複合フィルムの製造方法であって、

前記分散液をノズルから吐出する際に、ノズル内の分散液を挟むようにして支持体の移動方向の上流側と下流側に設けられた２つの電極により、電界を印加することを特徴とする複合フィルムの製造方法である。本発明において、前記印加する電界が、周波数０．０１～１００ｋＨｚの正弦波であり、電界強度が、１～３０ｋＶ／ｍｍであることが好ましい。前記誘電体フィラーは、非球状であることが好ましい。本発明においては、複合フィルムから支持体を剥離する工程をさらに行ってもよい。

30

【０００７】

本発明はまた、当該製造方法により製造された複合フィルムである。

【０００８】

本発明はさらに、誘電体フィラー、および光硬化性樹脂の硬化物を含む複合フィルムであって、厚さ方向の熱伝導率が、面方向の熱伝導率の１．２倍以上である複合フィルムである。ここで、複合フィルム中においては、前記誘電体フィラーが複数個連なって厚さ方向に配列している。前記誘電体フィラーは、非球状フィラーであり、当該非球状フィラーの長径方向が、フィルムの厚さ方向と平行になるように配向していることが好ましい。誘電体フィラーの含有率は、１～５０質量％であることが好ましい。当該複合フィルムは、放熱フィルムに好適に用いることができる。

40

【発明の効果】

【０００９】

本発明によれば、厚さ方向に高い熱伝導率を有しつつ、良好な靱性を有する複合フィルムが提供される。当該複合フィルムは、電子機器、電気機器において発熱する部品に貼り付けて用いるような、放熱フィルムに好適である。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１０】

本発明は、光硬化性樹脂と当該樹脂内に分散する誘電体フィラーとを含む分散液を、ノズルから吐出して移動する支持体に塗布する工程（塗布工程）、および前記光硬化性樹脂を硬化させる工程（硬化工程）を含む複合フィルムの製造方法であって、

50

前記分散液をノズルから吐出する際に、ノズル内の分散液を挟むようにして支持体の移動方向の上流側と下流側に設けられた２つの電極により、電界を印加することを特徴とする複合フィルムの製造方法である。

【００１１】

本発明において用いられる誘電体フィラーは、その誘電率が４以上であれば良く、例えば、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、炭化ケイ素等の常誘電体、チタン酸バリウム等の強誘電体等のフィラーを単独でまたは２種以上組み合わせて用いることができる。誘電率が４より小さいと、電界を印加した際に分極しにくく、誘電体フィラーの配列が起こりにくいおそれがあり、誘電率は、好ましくは１０以上である。

【００１２】

誘電体フィラーの形状としては、特に制限はないが、非球状であることが好ましい。非球状の誘電体フィラーを用いた場合には、フィラーが、その長径方向と電界の印加方向とが平行となるように配向することによっても、厚さ方向の熱伝導率向上効果が得られる。従って、使用されるフィラーのアスペクト比（長径／短径）が大きい程、本発明では高い効果が得られ好適である。

【００１３】

誘電体フィラーの大きさとしては、平均粒径が０．０５μm以上であることが好ましく、０．１μm以上であることがより好ましい。平均粒径が０．０５μmより小さいと、誘電体フィラーが配列するためのエネルギーが、熱的エネルギーに比べて小さくなってしま

【００１４】

誘電体フィラーの配合量としては、光硬化後の複合フィルムに対して、１～５０質量％となることが好ましく、５～４０質量％となることが好ましい。配合量が１％より少ないと、十分な熱伝導性および機械的強度を得られないおそれがあり、５０％より多いと、得られるフィルムが脆くなるおそれがある。

【００１５】

光硬化性樹脂としては、紫外線、電子線等で架橋・硬化でき、硬化後に複合フィルムとして十分な強度を有するものである限り特に制限はないが、例えば、エポキシアクリレート、ウレタンアクリレート、ポリエステルアクリレート、ポリエーテルアクリレート、反応性ポリアクリレート、カルボキシル変性型反応性ポリアクリレート、ポリブタジエンアクリレート、シリコンアクリレート、アミノプラスト樹脂アクリレート等などを単独でまたは２種以上組み合わせて用いることができる。フィラーの配列状態を維持させるためには、硬化収縮が小さい付加反応型の樹脂が好ましい。また、光硬化性樹脂は、通常光重合開始剤を含む。

【００１６】

光硬化性樹脂へ誘電体フィラーを分散させる方法については、公知の分散機を用いて分散を行えばよい。例えば、粘度２０Pa・s以下では、超音波照射、ビーズミル、ボールミル等による分散が有効であり、粘度が２０Pa・sを超える場合には、羽攪拌、自転・公転による遠心攪拌、３本ロール等による分散が有効である。

【００１７】

分散液の粘度は、１０～１００Pa・sが好ましい。１０Pa・sより小さいと、電界を印加した際に対流が起き易く、また比重の大きいフィラーの場合は、沈降が起きて配列状態を保てなくなるおそれがある。一方、１００Pa・sより大きいと、電界で生じた分極フィラーが粘度の抵抗を受けて動きにくくなり、ノズル通過時に配列しないおそれがある。

【００１８】

分散液には、光硬化性樹脂以外の樹脂成分、誘電体フィラー以外のフィラー成分、および界面活性剤等の添加剤、溶媒などが、本発明の目的を阻害しない範囲内で添加されていてもよい。

【００１９】

支持体としては、分散液の塗工および硬化が可能なものである限り特に制限はないが、例えば、ポリエステルフィルム（例、ポリエチレンテレフタレートフィルムなど）、ポリイミドフィルム、アルミ箔、ポリテトラフルオロエチレンフィルム等を用いることができる。また複合フィルムの用途によって支持体が不要な場合には、離型処理されたものなど、剥離が容易なものを選択するとよい。

【0020】

本発明においては、塗布工程において、分散液をノズルから吐出する際に、ノズル内の分散液を挟むようにして支持体の移動方向の上流側と下流側に設けられた2つの電極により、電界を印加する。これにより、分散液中で誘電体フィラーを、フィルムの厚さ方向に対応する方向に沿って配列させる。この誘電体フィラーの配列は、フィルムの厚さ方向にできるだけ長い距離にわたって起きることが好ましいが、数個のフィラーが連なって配列する程度でも、厚さ方向の熱伝導率向上効果が得られる。一方、非球状のフィラーを用いる場合には、配列が起こる前にまず、フィラーの長径方向と電界の印加方向とが平行となるようなフィラーの配向が起こり、この配向により厚さ方向の熱伝導率向上効果が得られる。従って、この場合には、誘電体フィラーの配列がわずかに起きる程度に電界を印加してもよい。

10

【0021】

2つの電極は、同じ高さに配置することが好ましい。電極には、誘電体ガラスをコートしてもよい。誘電体ガラスをコートすることにより、伝導電流を抑え、安定して電界を印加することができる。

20

【0022】

印加する電界については、誘電体フィラーの配列が起こるような印加条件を適宜選択すればよく、直流電界では、フィラーが電気泳動するおそれがあるため、直流電界よりも交流電界の方が好ましい。また、正弦波であることが好ましい。

【0023】

電界の周波数は、0.01kHz～100kHzが好ましい。0.01kHzより小さいと、電気流体の力学的不安定性により絶縁破壊が生じるおそれがあり、100kHzを超えると、高周波発熱により、絶縁破壊が生じやすくなる傾向にある。

【0024】

電界強度は、1～30kV/mmが好ましい。1kV/mmより小さいと誘電体フィラーの配列が起こらないおそれがあり、30kV/mmより大きいと、誘電泳動により絶縁破壊が起こるおそれがある。

30

【0025】

なお、塗布工程においては、フィルムの厚さ方向に対応する方向に沿った誘電体フィラーの配列が維持されるような速度で、支持体を移動させる。また、複合フィルムの用途に応じ、所望の厚さの複合フィルムが得られるように、支持体の移動速度と分散液の塗布量を適宜調整するとよい。

【0026】

硬化工程は、公知方法に準じて、紫外線、電子線等を照射することによって実施することができる。誘電体フィラーの配列を維持するために、分散液を塗布した直後に硬化させることが好ましい。

40

【0027】

本発明において、用途を考慮して支持体が不要な場合には、複合フィルムから支持体を剥離する工程を、公知方法に準じてさらに実施するとよい。

【0028】

本発明の実施態様の一例を、図1に示す。

【0029】

図1においては、ノズル1の一部分（ノズル1の、支持体6の移動方向に対して上流側部分および下流側部分）に電極としての機能を持たせることにより、1対の電極2が、ノズル1内の分散液5を挟むようにして支持体6の移動方向の上流側と下流側に設けられて

50

いる。これらの電極 2 は、絶縁分離されている。分散液 5 は、非球状の誘電性フィラー 3 および光硬化性樹脂 4 を含んでいる。図 1 において、ノズル 1 の一部分を電極 2 としているが、電極をノズルの内部に取り付けてもよい。ノズル 1 の吐出口は、長方形の断面形状を有しており、長方形の長辺方向が、フィルムの幅方向に、長方形の短辺方向が、フィルムの厚さ方向にそれぞれ対応している。

【0030】

1 対の電極 2 の間に電界を印加する。図 1 においては、支持体 6 の移動方向（支持体 6 の下の矢印の方向）に平行に電界が印加されるため、ノズル 1 内で、フィルムの厚さ方向に対応する方向において非球状の誘電体 3 がまず配向し、さらには配列が起きている。

【0031】

電極 2 に挟まれたノズル 1 の先端部において誘電体フィラー 3 が配列した分散液 5 が、支持体 6 上に塗布され、長径方向がフィルムの厚さ方向に平行になるように誘電体 3 が配向し、また、複数の誘電体 3 が連なってフィルムの厚さ方向に配列している。

【0032】

この塗布した分散液 5 を、UV ランプ 7 より紫外線照射し、光硬化性樹脂 4 を硬化させることによって、複合フィルムを得ることができる。

【0033】

本発明の製造方法により得られる複合フィルムでは、誘電体フィラーが厚さ方向に配列しているため、厚さ方向の熱伝導率が、面方向よりも高いという特徴を有する。特に、厚さ方向の熱伝導率が、面方向の熱伝導率の 1.2 倍以上になるものである。

【0034】

従って、本発明はまた、誘電体フィラー、および光硬化性樹脂の硬化物を含む複合フィルムであって、厚さ方向の熱伝導率が、面方向の熱伝導率の 1.2 倍以上である複合フィルムである（なお、倍率の上限は、誘電体フィラーと光硬化性樹脂等のマトリクスの種類によって定まる）。

【0035】

当該複合フィルムにおいては、誘電体フィラーが複数個連なって厚さ方向に配列しており、このため、誘電体フィラーを高充填させることなく、すなわち、複合フィルムが脆くなることなく、厚さ方向の高い熱伝導率が得られる。ここで、前記誘電体フィラーが、非球状フィラーであり、当該非球状フィラーの長径方向が、フィルムの厚さ方向と平行になるように配向していることが好ましく、この場合には、厚さ方向の熱伝導率がより高くなる。誘電体フィラーの含有率は、例えば、1～50 質量％である。

【0036】

複合フィルムのサイズ（長さ、幅および厚さ）については、用途に応じて適宜決定すればよい。

【0037】

本発明の複合フィルムは、厚さ方向に高い熱伝導率を有しつつ、良好な靱性を有するため、電子機器、電気機器において発熱する部品に貼り付けて用いるような、放熱フィルムに好適に用いることができる。

【実施例】

【0038】

以下、実施例および比較例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

【0039】

実施例 1

表 1 に示す配合で、粘度 33 Pa・s の窒化ホウ素を 8.5 質量％含むポリウレタンアクリレート分散液を調製した。次に、エアの圧力でタンク内の分散液を、ノズルを挟んで配置した 2 つの電極より支持体の移動方向に電界を印加しながら、ノズル先端から吐出した。このとき、ノズルの先端部に掛かる電界は、周波数 10 kHz、強度 10 kV/mm の正弦波とし、ノズルの吐出口のギャップ幅を調整することにより、吐出量を 5 g/分

10

20

30

40

50

とした。また、ノズルから吐出された分散液が支持体に塗布されるが、塗布厚さは、移動速度で決定される。本実施例では、支持体の移動速度を80 mm / 分とし、塗布厚さは200 μ mであった。支持体に塗布された分散液を直ちにUV照射して硬化させた。UV照射は、装置に林時計工業製LA-410UV-1を、UVランプに200 Wオゾンレス水銀キセノンランプ(UV強度: 4500 mW / cm²)を用い、距離10 mmで7.6秒間行った。

【0040】

最後に、分散液の硬化物を支持体から剥離して、窒化ホウ素-ポリウレタンアクリレートの複合フィルムを得た。このフィルムの厚さ方向および面方向の熱伝導率を、後述の方法により測定したところ、それぞれ、0.41 W / mK、0.30 W / mKであった。また、フィルムの断面を、走査電子顕微鏡(SEM)により観察したところ、窒化ホウ素フィラーの長径方向がフィルムの厚み方向に沿うような状態でフィラーの配向が起こっており、さらに、数個のフィラーが連なって配列を起こしているのが観察された(図2参照)。

10

【0041】

実施例2

印加する電界の周波数を0.1 kHzに代えた以外は実施例1と同様にして、複合フィルムを作製した。このフィルムの厚さ方向および面方向の熱伝導率を測定したところ、それぞれ、0.37 W / mK、0.31 W / mKであった。

20

【0042】

比較例1

電界を印加しなかった以外は実施例1と同様にして、複合フィルムを作製した。このフィルムの厚さ方向および面方向の熱伝導率を測定したところ、それぞれ、0.33 W / mK、0.34 W / mKであった。

【0043】

【表1】

UV硬化ポリウレタンアクリレート (ビームセット550B: 荒川化学)	100質量部
窒化ホウ素フィラー (MBN-010T: 三菱化学)	10質量部
光重合開始剤 (ダロキュア1173: 荒川化学)	5質量部
酢酸エチル	2.5質量部

30

【0044】

〔熱伝導率〕

複合フィルムの熱拡散率を、ブルカー・エイエックスエス製装置を用いてXeフラッシュ法により求めた。また、比熱を、SIIナノテクノロジー製DSC装置を用いて昇温速度10 / 分で求めた。また、比重を、ブタノール浸漬法により求めた。そして、熱伝導率を、熱伝導率 = 熱拡散率 × 比熱 × 比重より算出した。

40

【0045】

結果を表2にまとめた。表2より明らかなように、分散液に電界を印加する本発明の製造方法により、厚さ方向の熱伝導率が高くなることがわかる。

【0046】

【表 2】

	電界の周波数	(1) 厚さ方向の 熱伝導率(W/mK)	(2) 面方向の 熱伝導率(W/mK)	(1) / (2)
実施例 1	10kHz	0.41	0.30	1.4
実施例 2	0.1kHz	0.37	0.31	1.2
比較例 1	電界なし	0.33	0.34	1.0

【図面の簡単な説明】

【0047】

10

【図 1】本発明の製造方法の実施態様の一例を示す概略図である。

【図 2】実施例 1 で得られた複合フィルムの断面の走査電子顕微鏡 (SEM) 写真である。
写真の縦方向が、複合フィルムの厚さ方向に相当する。

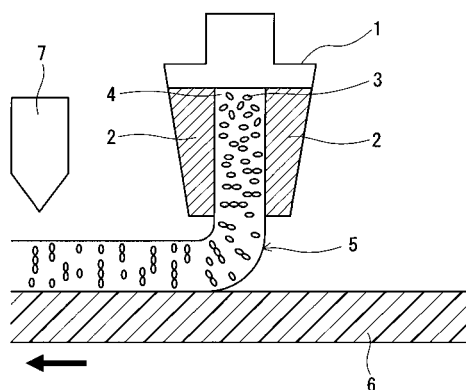
【符号の説明】

【0048】

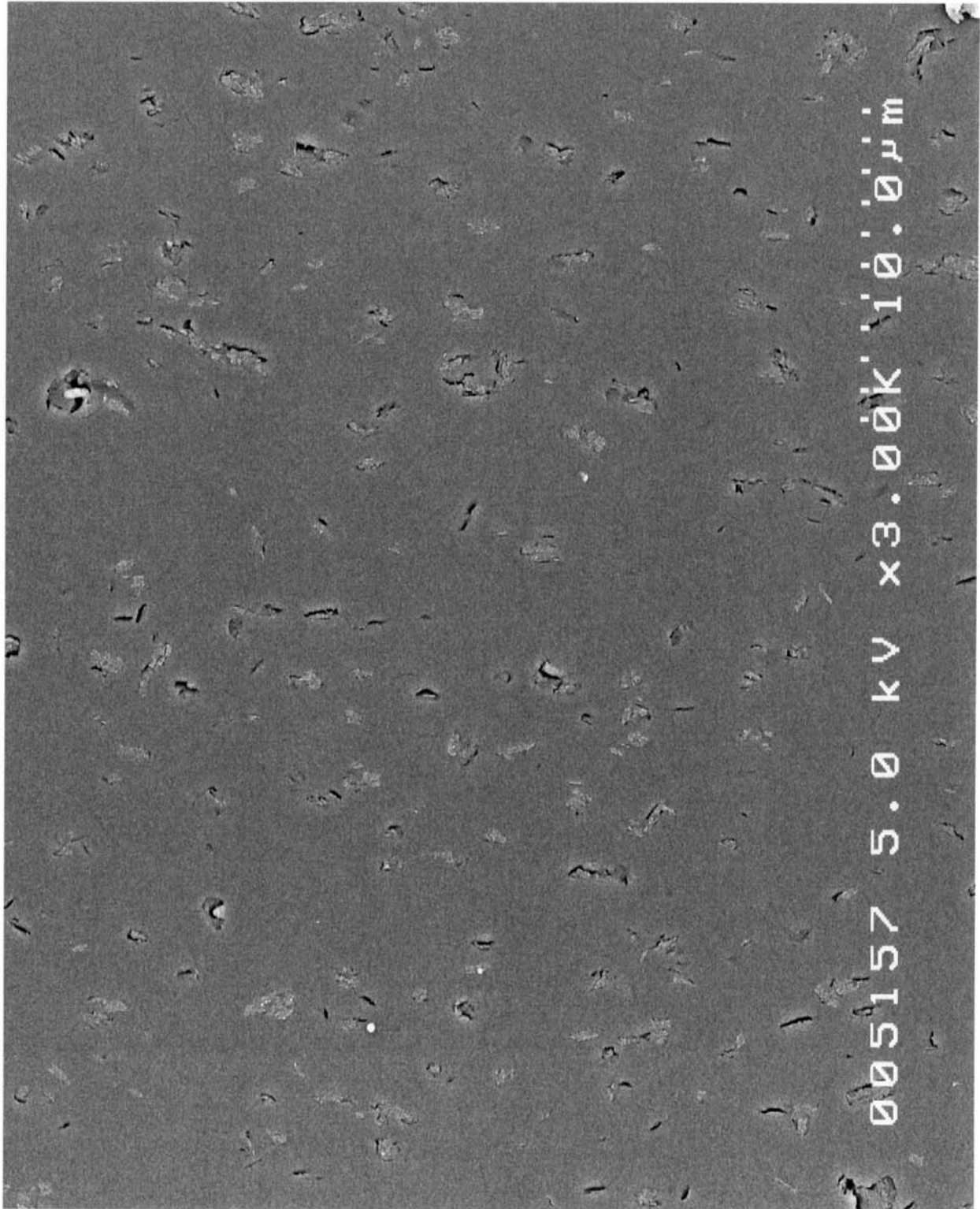
- 1 ノズル
- 2 電極
- 3 誘電体フィラー
- 4 光硬化性樹脂
- 5 分散液
- 6 支持体
- 7 UVランプ

20

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

F ターム(参考) 4F071 AA01 AA33X AA53X AB27 AE22 AF44 AH12 AH16 AH17 BA03
BB02 BB12 BB13 BC01 BC10
4F205 AA44 AB11 AC05 AG01 AH33 GA07 GB02 GF24
4J002 BQ001 DE146 DE186 DF016 DJ006 DK006 FD116 GQ00