

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 17 年 9 月 22 日 (2005.9.22)

【公開番号】特開 2003-301189 (P2003-301189A)

【公開日】平成 15 年 10 月 21 日 (2003.10.21)

【出願番号】特願 2002-107423 (P2002-107423)

【国際特許分類第 7 版】

C 1 0 M 169/02

C 1 0 M 107/50

C 1 0 M 125/02

C 1 0 M 125/04

C 1 0 M 125/10

C 1 0 M 125/26

// C 1 0 N 10:02

C 1 0 N 10:04

C 1 0 N 10:06

C 1 0 N 10:16

C 1 0 N 20:00

C 1 0 N 20:06

C 1 0 N 50:10

【F I】

C 1 0 M 169/02

C 1 0 M 107/50

C 1 0 M 125/02

C 1 0 M 125/04

C 1 0 M 125/10

C 1 0 M 125/26

C 1 0 N 10:02

C 1 0 N 10:04

C 1 0 N 10:06

C 1 0 N 10:16

C 1 0 N 20:00 A

C 1 0 N 20:06 Z

C 1 0 N 50:10

【手続補正書】

【提出日】平成 17 年 4 月 18 日 (2005.4.18)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) チキソ度が 1.03 ~ 1.50 であると共に 25 における粘度が 100 ~ 1,000, 000 mPa・s であるオルガノポリシロキサン 100 重量部、及び、(B) 平均粒径が 0.1 ~ 100 μm の熱伝導性無機充填剤 100 ~ 2,000 重量部とからなる放熱用シリコングリース組成物。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0004

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明の上記の目的は、(A)チキソ度が $1.03 \sim 1.50$ であると共に25における粘度が $100 \sim 1,000,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ であるオルガノポリシロキサン100重量部、及び、(B)平均粒径が $0.1 \sim 100 \mu\text{m}$ の熱伝導性無機充填剤100～2000重量部とからなる放熱用シリコングリース組成物によって達成された。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0006】

上記チキソ度は、 $\eta = \eta_1 / \eta_2$ の式から計算することが出来る。ここで η_1 及び η_2 は、B型回転粘度計による25における測定粘度であり、 η_1 はローターの回転数を $r \text{ rpm}$ として測定した値、 η_2 は $2 \times r \text{ rpm}$ の回転数で測定した値である。

またこのオルガノポリシロキサンの、25における粘度は、 $100 \sim 1,000,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の範囲であることが必要であり、特に $1000 \sim 100,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ であることが好ましい。 $100 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ より小さいと得られるシリコングリース組成物の安定性が乏しいものとなり、 $1,000,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ より大きいと成分(B)との混合が困難となる。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0011】

これらのオルガノポリシロキサンの製造方法は特に限定されるものではないが、例えば、(ア) $(\text{CH}_3)_3\text{SiCl}$ 、 $(\text{CH}_3)_2\text{SiCl}_2$ 、 $(\text{CH}_3)\text{SiCl}_3$ 、などを加水分解、縮合するか、(イ)この縮合物と環状低分子シロキサンとを、アルカリ金属水酸化物、アルカリ金属シラノレートあるいはテトラアルキルホスホニウムヒドロキシド、テトラアルキルアンモニウムヒドロキシドなどの水酸化物、あるいは硫酸、有機スルホン酸などの強酸などから選ばれる触媒の存在下に、室温あるいは加熱下で反応させるか、(ウ)あるいは、水酸基を有すると共に、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位と SiO_2 単位とからなるオルガノポリシロキサンとシラノール基を有するポリジオルガノシロキサン等を、アミン触媒、錫触媒などの縮合触媒存在下で、室温あるいは加熱下で反応させる方法等が挙げられる。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

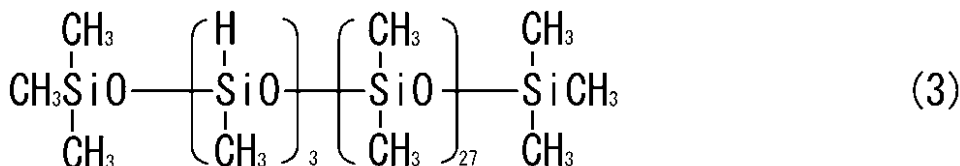
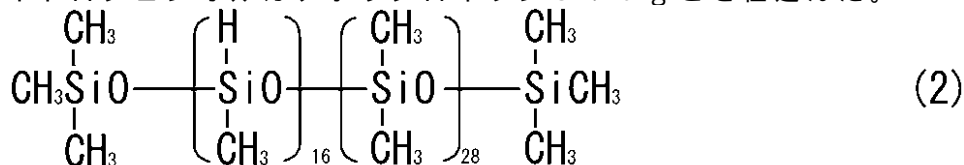
【補正の内容】

【0017】

<合成例1：成分(A)のオルガノポリシロキサンA-1の合成>

攪拌機、温度計、冷却管及び窒素ガス導入管を設けた内容積 $1,000 \text{ ml}$ のフラスコに、両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖され主鎖の5モル%がフェニル基で、残り95モル%がメチル基である、25における粘度が $700 \text{ mm}^2/\text{s}$ のオリガノポリシロ

キサン (商品名 V M F - 5 - 7 0 0 信越化学工業株式会社製) 5 0 0 g と、下記式 2 で表されるハイドロジェンオルガノポリシロキサン 3 . 0 g 及び下記式 3 で表されるハイドロジェンオルガノポリシロキサン 5 . 0 g とを仕込んだ。



【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 1 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 8】

次に、白金原子を 1 重量% 含有する白金 - ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体のジメチルビニルシリル末端封鎖のジメチルポリシロキサン溶液を 0 . 2 5 g 投入した後、1 2 0 で 1 時間混合攪拌してオルガノポリシロキサン A - 1 を得た。得られたオルガノポリシロキサンの粘度を測定したところ、下記の粘度が得られた。

粘度測定結果：2 6 , 0 0 0 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No . 4 / 6 rpm)、
2 2 , 5 0 0 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No . 4 / 1 2 rpm)
= τ_1 / τ_2 の式から得られたチキソ度 は 1 . 1 6 であった。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 0

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 2 0】

< 合成例 2 : 成分 (A) のオルガノポリシロキサン A - 2 の合成 >

攪拌機、温度計、冷却管及び窒素ガス導入管を設けた内容積 5 0 0 mL のフラスコに、得られたベースオイル X 1 0 g、粘度が 1 0 mm^2 / s のトリメチルシリル末端封鎖ポリジメチルシロキサン (商品名 K F - 9 6 (1 0 cS) 信越化学工業株式会社製) 2 2 g 及びオクタメチルシクロテトラシロキサン 3 0 0 g を入れ、窒素ガスを通気しながら 1 2 0 まで加熱した。次いで、水酸化カリウム 0 . 3 g を加え、さらに 1 5 0 まで昇温させて 4 時間攪拌した後 1 0 0 まで冷却した。エチレンクロロヒドリン 2 g を添加し、未反応の低分子シロキサンを除去してオルガノポリシロキサン A - 2 を得た。粘度は下記の通りであった。

粘度測定結果：3 6 , 0 0 0 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No . 4 / 6 rpm)、
2 7 , 3 0 0 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No . 4 / 1 2 rpm)

上記粘度に基いて計算した結果、チキソ度 は 1 . 3 2 であった。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 1

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 2 1】

< 合成例 3 : 成分 (A) のオルガノポリシロキサン A - 3 の合成 >

オイル X を 25 g、及びオクタメチルシクロテトラシロキサンを 308 g 使用したこと以外は、合成例 2 と全く同様にしてオルガノポリシロキサン A - 3 を得た。この粘度を測定したところ下記の値が得られ、チキソ度は 1.05 であった。

粘度測定結果 : $2,200 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 2 / 6 rpm)、
 $2,100 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 2 / 12 rpm)

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

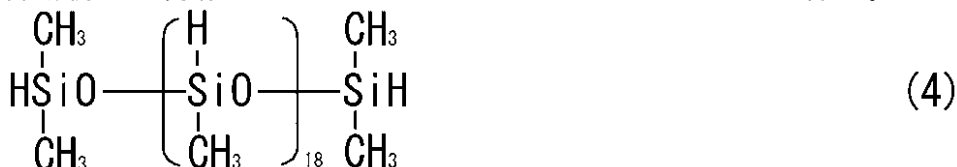
【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

< 合成例 4 : 成分 (A) のオルガノポリシロキサン A - 4 の合成 >

原料として、両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖され、25 における粘度が $600 \text{ mm}^2 / \text{s}$ のジメチルポリシロキサン (商品名 VF-600N 信越化学工業株式会社製) 500 g と前記式 (3) で表されるハイドロジェンオルガノポリシロキサン 23 g 及び下記式 (4) で表されるオルガノポリシロキサン 33 g を仕込んだこと以外は、全て合成例 1 と同様にしてオルガノポリシロキサン A - 4 を得た。



この粘度を測定したところ下記の値が得られ、チキソ度は 1.57 であった。

粘度測定結果 : $72,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 4 / 3 rpm)、
 $46,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 4 / 6 rpm)

【手続補正 10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0023

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0023】

< 合成例 5 : 成分 (A) のオルガノポリシロキサン A - 5 の合成 >

原料としてオイル X を 100 g、及びオクタメチルシクロテトラシロキサンを 200 g 用いたこと以外は、合成例 2 と全く同様にしてオルガノポリシロキサン A - 5 を得た。この粘度を測定したところ下記の値が得られ、チキソ度は 1.02 であった。

粘度測定結果 : $450 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 1 / 6 rpm)、
 $440 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ (ロータ No. 1 / 12 rpm)

【手続補正 11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0024】

< 放熱用シリコングリース組成物の製造 >

合成例 1 ~ 5 で得られたオルガノポリシロキサン A 1 ~ 5、及び下記式 (5) で表され、チキソ度が 1.01 であるジメチルポリシロキサン A - 6 の 6 種類を用い、表 1 及び表 2 に示した組成で配合し、プラネタリミキサー (井上製作所 (株) 製) を用いて 120 で 1 時間混合し、実施例 1 ~ 6、比較例 1 ~ 3 の放熱用シリコン組成物を得た。但し、表中の B - 1 ~ B - 3 は各々次の通りである。

B - 1 : 酸化亜鉛粉末 (不定形、平均粒径 : 2 μm)

B - 2 : 銀粉末 (不定形、平均粒径 : 5 μm)

B - 3 : アルミニウム粉末 (不定形、平均粒径 7 μm)

尚、上記ジメチルポリシロキサン A - 6 の粘度の測定結果を下記に示す。

粘度測定結果 : 9 , 8 0 0 mPa · s (ロータ No . 3 / 6 r p m) 、
9 7 0 0 mPa · s (ロータ No . 3 / 1 2 r p m)

