

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号
特表2022-517694
(P2022-517694A)

(43)公表日 令和4年3月9日(2022.3.9)

(51)国際特許分類

F I

テーマコード (参考)

C 0 8 L 63/00 (2006.01) C 0 8 L 63/00 Z 4 J 0 0 2

C 0 8 K 3/013(2018.01) C 0 8 K 3/013

C 0 8 K 9/06 (2006.01) C 0 8 K 9/06

C 0 9 K 5/14 (2006.01) C 0 9 K 5/14

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全20頁)

(21)出願番号	特願2021-547612(P2021-547612)	(71)出願人	391008825
(86)(22)出願日	平成30年10月29日(2018.10.29)		ヘンケル・アクチェンゲゼルシャフト・
(85)翻訳文提出日	令和3年4月28日(2021.4.28)		ウント・コムパニー・コマンディットゲ
(86)国際出願番号	PCT/CN2018/112319		ゼルシャフト・アウフ・アクチェン
(87)国際公開番号	WO2020/087196		Henkel AG & Co. KGaA
(87)国際公開日	令和2年5月7日(2020.5.7)		ドイツ連邦共和国 デュッセルドルフ ヘ
(81)指定国・地域	AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA ,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,A T,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR ,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC, MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK ,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,G N,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG), AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,B		ンケルシュトラッセ 67 Henkelstrasse 67, D - 40589 Duesseldorf , Germany
	最終頁に続く	(74)代理人	100106518 弁理士 松谷 道子
		(74)代理人	100104592 弁理士 森住 恵一
		(72)発明者	レイ・ホアン
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 熱伝導性注封組成物

(57)【要約】

本発明は熱伝導性注封組成物に関する。特に、本発明は、低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性、および新エネルギー車にとって優れた熱衝撃性能を有する熱伝導性注封組成物に関する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

- A) 少なくとも $500 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の 25 での粘度を有するエポキシ樹脂、
 B) 少なくとも 3 個のエポキシ官能基を有し、少なくとも $10 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ かつ $1000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下の 25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、
 C) その 20 重量%は $0.01 \sim 1 \mu\text{m}$ の粒度を有するコアシェルナノ粒子、
 D) D1) $15 \mu\text{m}$ より大きく $100 \mu\text{m}$ 以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および
 D2) $0.01 \mu\text{m}$ より大きく $15 \mu\text{m}$ 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体
 を含んでなる充填材、並びに
 E) 硬化剤
 を含んでなる熱伝導性注封組成物。

10

【請求項 2】

成分 A) の含有量は組成物の総重量に基づいて $1 \sim 40$ 重量%である、請求項 1 に記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 3】

成分 B) の含有量は組成物の総重量に基づいて $0.1 \sim 20$ 重量%である、請求項 1 または 2 に記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 4】

成分 B) は 3 個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂である、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

20

【請求項 5】

成分 C) の含有量は組成物の総重量に基づいて $1 \sim 50$ 重量%である、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 6】

成分 D1) の含有量は組成物の総重量に基づいて $30 \sim 80$ 重量%である、請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 7】

成分 D1) は $0.001 \sim 5$ 重量%のシランを含有する、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

30

【請求項 8】

成分 D2) の含有量は組成物の総重量に基づいて $5 \sim 80$ 重量%である、請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 9】

成分 E) の含有量は組成物の総重量に基づいて $1 \sim 20$ 重量%である、請求項 1 ～ 8 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 10】

硬化促進剤を更に含んでなる、請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物。

【請求項 11】

二成分熱伝導性注封組成物であって、
 パート A は、

40

- A) 少なくとも $500 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ の 25 での粘度を有するエポキシ樹脂、
 B) 少なくとも 3 個のエポキシ官能基を有し、少なくとも $10 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ かつ $1000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下の 25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、
 C) その 20 重量%は $0.01 \sim 1 \mu\text{m}$ の粒度を有するコアシェルナノ粒子、
 D) D1) $15 \mu\text{m}$ より大きく $100 \mu\text{m}$ 以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および
 D2) $0.01 \mu\text{m}$ より大きく $15 \mu\text{m}$ 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体
 を含んでなる充填材
 を含んでなり、

50

パート B は、
E) 硬化剤
を含んでなる、二成分熱伝導性注封組成物。

【請求項 12】

新エネルギー車のための、請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物または請求項 11 に記載の二成分熱伝導性注封組成物の使用。

【請求項 13】

請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の熱伝導性注封組成物または請求項 11 に記載の二成分熱伝導性注封組成物の硬化生成物を含んでなる、新エネルギー車。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は熱伝導性注封組成物に関する。特に、本発明は、低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性（即ち、優れた接合強度）、および新エネルギー車にとって優れた熱衝撃性能を有する熱伝導性注封組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

石油依存度、大気汚染、二酸化炭素排出量を削減するために、近年、例えば電池式電気自動車（BEV）およびプラグインハイブリッド電気自動車（PHEV）といった一部または全てを電気で駆動する自動車である新エネルギー車（NEV）の開発が世界的に、特に中国で急速に進んでいる。例えば、中国における新エネルギー車の累計販売台数は、2011年には8,159台にすぎなかったが、2017年には1,728,447台に増加している。

【0003】

新エネルギー車産業の発展に伴い、高馬力には、電池、モーターおよび発電機などの電気部品からの高い電力密度が必要とされる。より小さくてより軽くてより安価な部品は、今後ますます人気を集めるであろう。そのような部品により、省スペース化だけでなく、作業効率の向上に加えてコスト削減が可能となる。従来の含浸加工では、新たな熱伝導性の要求に応えることはできなかった。熱伝導性注封組成物の供給は、電力部品からヒートシンクに熱を効果的に伝導させるための理想的な方法である。

【0004】

新エネルギー車では通常、コイル装置全体が、例えばエポキシ樹脂に基づく注型用樹脂に封入されている。導体間の全てのスペースは、空洞または気泡を伴わずに含浸されている。注封組成物であってよい注型用樹脂は、多種多様な性質を有する。それらは例えば、導体間全てのスペースが（例えば空洞または気泡を伴わずに）完全に含浸されるような加工時の低い粘度、および全体的に高い剛性を提供し、それによって各巻線のより正確な位置決めを提供するための高弾性率を包含する。注型用樹脂は、導体構造から冷却層への効率的な熱移動をもたらすために、良好な熱伝導率を有し得る。注型用樹脂は、使用温度範囲で可能な限り一定の特性プロファイルが達成されるように、高いガラス転移温度に反映される高い耐熱性を有し得る。注型用樹脂は、（使用時と硬化温度からの冷却時の両方で加熱された際にコイルユニットにクラックおよび剥離を招き得る）機械的応力を抑制し、それによって単純なクラック形成を抑制するために、〔例えば、可能であれば、使用される他の材料（銅の導体、絶縁層）の熱膨張係数と同等の〕低い熱膨張係数を有し得る。このような観点から、高い耐クラック性にも言及すべきである。また、高い部分放電抵抗、低い誘電損率、難燃性、および経済性にも言及すべきである。

【0005】

エポキシ系注型用樹脂を注封組成物として使用できる。例えば、US 9,074,108 B2には、少なくとも1種のポリマーナノ粒子性充填材が分散した支持マトリックスからなり、電子部品、特に勾配コイルのような大容量コイルの注封に適した注封組成物が開示されている。この注封組成物は、良好な難燃性および低い粘度を有するが、新エネルギー車の熱

10

20

30

40

50

管理の要求を満たすことはできず、新エネルギー車にとっての接合の要求および耐熱衝撃性の要求を同時に満たすこともできない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】US 9,074,108 B2

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性および優れた熱衝撃性能を有する熱伝導性注封組成物 10
に対する要求が存在する。

【0008】

本発明の目的は、低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性および優れた熱衝撃性能を有する熱伝導性注封組成物を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明は、

A) 少なくとも500 mPa・sの25 での粘度を有するエポキシ樹脂、

B) 少なくとも3個のエポキシ官能基を有し、少なくとも10 mPa・sかつ1000 mPa・s以下の25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、 20

C) その20重量%は0.01~1 μmの粒度を有するコアシェルナノ粒子、

D) D1) 15 μmより大きく100 μm以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および

D2) 0.01 μmより大きく15 μm以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

を含んでなる充填材、並びに

E) 硬化剤

を含んでなる熱伝導性注封組成物を提供する。

【0010】

本発明はまた、二成分熱伝導性注封組成物であって、

パートAは、 30

A) 少なくとも500 mPa・sの25 での粘度を有するエポキシ樹脂、

B) 少なくとも3個のエポキシ官能基を有し、少なくとも10 mPa・sかつ1000 mPa・s以下の25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、

C) その20重量%は0.01~1 μmの粒度を有するコアシェルナノ粒子、

D) D1) 15 μmより大きく100 μm以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および

D2) 0.01 μmより大きく15 μm以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

を含んでなる充填材

を含んでなり、

パートBは、 40

E) 硬化剤

を含んでなる、二成分熱伝導性注封組成物を提供する。

【0011】

本発明は更に、本発明の熱伝導性注封組成物または本発明の二成分熱伝導性注封組成物の新エネルギー車のための使用を提供する。

【0012】

本発明はまた、本発明の熱伝導性注封組成物または本発明の二成分熱伝導性注封組成物の硬化生成物を含んでなる新エネルギー車を提供する。

【0013】

本発明の熱伝導性注封組成物は、低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性（即ち、優れた接合 50

強度)、および新エネルギー車にとって優れた熱衝撃性能を有する。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】図1は、実施例1～5および比較例1～6の組成物の耐熱衝撃性を測定するためのデバイスの写真である。

【発明を実施するための形態】

【0015】

以下の段落で、本発明をより詳細に説明する。記載された各実施態様は、反対であることが明示されていない限り、他の実施態様と組み合わせてもよい。特に、好ましいまたは有利であると記載されている全ての特徴は、好ましいまたは有利であると記載されている他の全ての特徴と組み合わせてよい。

【0016】

本明細書において、使用されている用語は、特に記載のない限り、下記定義に従って解釈されるものとする。

【0017】

本明細書において、単数形「a」、「an」および「the」は、明細書に明らかに記載されていない限り、単数形および複数形の両方を包含する。

【0018】

本明細書において、「含んでなり」、「含んでなる」および「含まれている」という用語は、「包含し」、「包含する」または「含有し」、「含有する」と同義であり、包括的またはオープンエンドであり、追加の記載されていない部材、要素、またはプロセスステップを除外するものではない。

【0019】

数値の終点の記載には、記載された終点だけでなく、各範囲内に含まれる数値および分数の全てが含まれる。

【0020】

本明細書に記載した全ての参考文献は、その全体を引用してここに組み込まれる。

【0021】

特に記載のない限り、技術用語および科学用語を含む本明細書で使用されている全ての用語は、本発明が属する技術分野における当業者によって一般的に理解される意味を有する。更なるガイダンスにより、本発明の教示をよりよく理解するために、用語の定義は含まれる。

【0022】

本発明において、熱伝導性注封組成物は、

A) 少なくとも500 mPa・sの25 での粘度を有するエポキシ樹脂、

B) 少なくとも3個のエポキシ官能基を有し、少なくとも10 mPa・sかつ1000 mPa・s以下の25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、

C) その20重量%は0.01～1 μmの粒度を有するコアシェルナノ粒子、

D) D1) 15 μmより大きく100 μm以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および

D2) 0.01 μmより大きく15 μm以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

を含んでなる充填材、並びに

E) 硬化剤

を含んでなる。

【0023】

A) エポキシ樹脂

本発明において、エポキシ樹脂は、少なくとも500 mPa・s、好ましくは少なくとも1000 mPa・s、より好ましくは少なくとも5000 mPa・s、特に好ましくは少なくとも10000 mPa・sの25 での粘度を有する。本明細書では、特に記載のない限り、粘度値の全てはBrookfield Viscometerを用いて測定した値である。

【 0 0 2 4 】

好ましくは、エポキシ樹脂は、ビスフェノール - A エポキシ樹脂、ビスフェノール - F エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂およびフェノール系エポキシ樹脂からなる群から選択されてよい。より好ましくは、エポキシ樹脂はビスフェノール - A エポキシ樹脂であってよい。

【 0 0 2 5 】

本発明に適したエポキシ樹脂は、例えば、NPEL-127、NPEL-127E、NPEL-127H、NPEL-128、NPEL-128E、NPEL-128G、NPEL-128R、NPEL-128S、NPEF-170、NPEF-180、NPEF-185、NPEF-187、NPEF-198、NPPN-630L、NPPN-630、およびNPPN-631（全てNAN YA EPOXY RESINから市販）；850（Blue Star New Chemical Materials Co., Ltd.から市販）；CYD 128（Baling Petrochemical Corporationから市販）；YD 128（日鉄ケミカル&マテリアル株式会社から市販）；EP4100（株式会社ADEKAから市販）；R140（三井化学株式会社から市販）；D.E.R. 331（Dow Chemical Companyから市販）；NPEL128（Nanya Epoxy Resinから市販）；およびYD128（Kukdo Chemical Co., Ltd.から市販）を包含する。好ましくは、市販のエポキシ樹脂の例はNPEL-128である。

10

【 0 0 2 6 】

エポキシ樹脂は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、1～40重量%、好ましくは5～25重量%の量で存在する。エポキシ樹脂の含有量が1%未満であると、熱伝導性注封組成物は良好な接合強度および良好な耐熱衝撃性を示さない。エポキシ樹脂の含有量が40重量%より大きいと、熱伝導性注封組成物の粘度は高すぎ、熱伝導性充填材を組成物に添加できず、従って、組成物は低い粘度および高い熱伝導率を示すことはできない。

20

【 0 0 2 7 】

B) 少なくとも3個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂

本発明では、少なくとも3個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂は、少なくとも10 mPa・sかつ1000 mPa・s以下の、好ましくは50～800 mPa・s、好ましくは100～600 mPa・sの25 での粘度を有する。

【 0 0 2 8 】

好ましい実施態様では、変性エポキシ樹脂は3個のエポキシ官能基を含む。

【 0 0 2 9 】

本発明の熱伝導性注封組成物において、少なくとも3個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂は、エポキシ反応性希釈剤として作用し、組成物の粘度を低下するだけでなく、硬化反応に参与する。好ましくは、変性エポキシ樹脂は、トリグリシジルエーテルからなる群から選択され得る。より好ましくは、変性エポキシ樹脂は、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテルである。

30

【 0 0 3 0 】

本発明に適した変性エポキシ樹脂は、例えば、Heloxy™ Modifier 48、Heloxy™ Modifier 84およびHeloxy™ Modifier 505（全てHexion Specialty Chemicals, Incから市販）；Epodil（登録商標）733およびEpodil（登録商標）762（いずれもEvonik Industries AGから市販）を包含する。好ましくは、市販の変性エポキシ樹脂の例はHeloxy™ Modifier 48である。

40

【 0 0 3 1 】

変性エポキシ樹脂は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、0.1～20重量%、好ましくは0.5～10重量%、より好ましくは1.5～5重量%の量で存在する。変性エポキシ樹脂の含有量が0.1%未満であると、熱伝導性注封組成物の粘度は低減されない。変性エポキシ樹脂の含有量が20%より大きいと、熱伝導性注封組成物は物性に劣り、注封組成物の硬化生成物は非常に脆くなる。

【 0 0 3 2 】

C) コアシェルナノ粒子

本発明において、コアシェルナノ粒子の20重量%は、0.01～1 μm、好ましくは0

50

． 1 ~ 0 . 8 μm 、より好ましくは 0 . 3 ~ 0 . 7 μm の粒度を有する。

【 0 0 3 3 】

本発明の熱伝導性注封組成物において、コアシェルナノ粒子は、強化剤として作用する。本発明に適したコアシェルナノ粒子は、本発明の目的のために使用できるものである限り、いずれのコアシェルナノ粒子であってもよい。好ましくは、コアシェルナノ粒子は、カルボキシル末端ブタジエンアクリロニトリル (C T B N) 液状ゴム、アミン末端ブタジエンアクリロニトリル (A T B N) 液状ゴム、ビニル末端ブタジエンアクリロニトリル (V T B N) 液状ゴムのような反応性液状ゴム；エラストマーラテックス製のコアシェルポリマーまたは熱可塑性粉体のような予備成形粒子；コアシェル構造を有する Interpenetrating Polymer Network (I P N) 強化剤からなる群から選択され得る。

10

【 0 0 3 4 】

本発明に適した変性エポキシ樹脂は、例えば、HypoxTM RA840 (CVC Thermoset Specialties から市販) ； Kane AceTM MX267、Kane AceTM MX120、Kane AceTM MX125、Kane AceTM MX153、Kane AceTM MX154、Kane AceTM MX156、Kane AceTM MX257、Kane AceTM MX960、Kane AceTM MX170、Kane AceTM MX135、Kane AceTM MX136、Kane AceTM MX416、Kane AceTM MX451、Kane AceTM MX217 および Kane AceTM MX717 (全て株式会社カネカから市販) を包含する。

【 0 0 3 5 】

コアシェルナノ粒子は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、1 ~ 50 重量 %、好ましくは 2 ~ 20 重量 % の量で存在する。コアシェルナノ粒子の含有量が 1 % 未満であると、熱伝導性注封組成物の靱性が改善され得ず、注封組成物が非常に硬質になり、耐熱衝撃性を示さない。コアシェルナノ粒子の含有量が 50 % より大きいと、熱伝導性注封組成物の粘度が高くなりすぎ、その耐熱性が低くなる。

20

【 0 0 3 6 】

D) 充填材

D 1) 15 μm より大きく 100 μm 以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ

本発明において、シラン表面変性球状アルミナは、15 μm より大きく 100 μm 以下の平均粒度、好ましくは 15 μm より大きく 70 μm 以下の平均粒度、より好ましくは 17 μm より大きく 35 μm 以下の平均粒度を有する。

30

【 0 0 3 7 】

本発明において、シラン表面変性球状アルミナは、様々なタイプの多官能性シランにより変性されていてよい。本発明に適したシラン表面変性球状アルミナは、HypoxTM RA840 (CVC Thermoset Specialties から市販) ； Kane AceTM MX267 (株式会社カネカから市販) ； 並びに dynasylan 1146 および 9496 (いずれも Evonik Industries AG から市販) を含する。好ましくは、シラン表面変性球状アルミナは、HypoxTM RA840 および Kane AceTM MX267 からなる群から選択される。

【 0 0 3 8 】

好ましくは、成分 D 1) は 0 . 001 ~ 5 重量 % のシランを含有する。

40

【 0 0 3 9 】

成分 D 1) は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、30 ~ 80 重量 %、好ましくは 42 ~ 75 重量 %、より好ましくは 45 ~ 68 重量 % の量で存在する。

【 0 0 4 0 】

D 2) 0 . 01 μm より大きく 15 μm 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

本発明において、熱伝導性粉体は、0 . 01 μm より大きく 15 μm 以下の平均粒度、好ましくは 2 μm より大きく 10 μm 以下の平均粒度、より好ましくは 3 μm より大きく 5 μm 以下の平均粒度を有する。

【 0 0 4 1 】

本発明に適した熱伝導性粉体は、本発明の目的のために使用できるものである限り、いず

50

れの、 $0.01\mu\text{m}$ より大きく $15\mu\text{m}$ 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体であってもよい。例えば、本発明の熱伝導性粉体は、 Al_2O_3 、 MgO 、 SiO_2 、 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 、 BN 、 AlN 、 SiC 、 SiN 、またはそれらの組み合わせであってもよい。好ましくは、本発明の熱伝導性粉体は球状アルミナ粉体である。例えば、熱伝導性粉体の例は、BAK-2、BAK-5およびBAK-10（全てBestry Performance Materials Corporationから市販）を包含する。

【0042】

熱伝導性粉体は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、5～80重量%、好ましくは8～50重量%、より好ましくは10～25重量%の量で存在する。熱伝導性粉体の含有量が5%未満であると、熱伝導性注封組成物の熱伝導率は低くなりすぎ、この場合、熱伝導性粉体はデバイスの熱を効果的に分散できない。熱伝導性粉体の含有量が80%より大きいと、熱伝導性注封組成物の粘度が高くなりすぎ、これは、注封組成物の加工にとって不利である。

10

【0043】

E) 硬化剤

本発明において、硬化剤は、本発明の目的のために使用できるものである限り、いずれの硬化剤であってもよい。本発明に適した硬化剤は、無水物およびアミン硬化剤を包含する。好ましくは、硬化剤は、低い粘度の無水物およびアミン硬化剤から選択され得る。より好ましくは、硬化剤は、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸およびポリエーテルアミンからなる群から選択され得る。例えば、硬化剤の例は、MHHPA（Shangdong QING YAN G Corporationから市販）；D230（Huntsman Corporationから市販）を包含する。

20

【0044】

硬化剤は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づいて、1～20重量%、好ましくは5～15重量%の量で存在する。硬化剤の含有量が1%未満または20%超であると、熱伝導性注封組成物は硬化できない。

【0045】

本発明の熱伝導性注封組成物は、必要に応じて、様々な他の添加剤を含有してよい。成分A)～E)のそれぞれおよび/または成分A)～E)の任意の2以上の混合物に所望の物理的および化学的特性をもたらすため、およびそれから得られる注封組成物の硬化反応生成物に所望の物理的および化学的特性をもたらすために、注封組成物における任意の添加剤は、例えば、1以上のタイプの硬化促進剤、接着促進剤、チキソトロップ、他の助剤；またはそれらの組み合わせを包含する。もちろん、添加剤は、用途での使用を可能にする硬化反応生成物の特性に悪影響を与えてはならない。

30

【0046】

硬化促進剤

硬化促進剤は、ゲル化時間を大幅に短縮する、および/または硬化の完了を促進する材料である。第三級アミン、イミド、ポリアミン、環状アミンおよびアリアルアミンのような様々な化合物を、本発明の熱伝導性注封組成物に配合できる。潜在的な促進剤として下記種も包含されるが、これらに限定されない：強酸、有機酸および無機酸、フルオロ酸、フルオロスルホン酸、フルオロ酢酸、水、アルコール、フェノール、フルオロフェノール、サリチル酸、アミン、カルシウム、および上記のいずれかまたは全ての酸の金属塩、ポリオール、活性水素材料、並びにそれらの塩および/または錯体等。例えば、本発明に適した硬化促進剤は、DMP-30（Huntsman Corporationから市販）を包含する。

40

【0047】

硬化促進剤の有用な量は、典型的には、組成物全体の0～30重量%の範囲内である。好ましくは、硬化促進剤は、組成物全体の0.001～10重量%の量で存在する。

【0048】

接着促進剤

本発明の熱伝導性注封組成物は、基材表面に対する、注封組成物の反応生成物の接着性の改善を助けるために、1以上の生成物を含むことができる。有用な接着促進材料は、エポ

50

キシ樹脂とキレート官能基含有化合物との反応生成物（ここでは「キレート変性エポキシ樹脂」と称する）、および官能性シランを包含する。

【0049】

そのような反応生成物は、一般的に「キレートエポキシ」または「キレートエポキシ樹脂」と称されている物質を包含する。キレート官能基は、それ自体で、または同じ分子に配置された他の官能基と協力して、二価または多価の金属原子とキレート結合を形成できる官能基を包含する。本発明に適したキレート官能基は、例えば、リン含有酸基（例えば、 $-\text{PO}(\text{OH})_2$ ）、カルボン酸基（ $-\text{CO}_2\text{H}$ ）、イオウ含有酸基（例えば、 $-\text{SO}_3\text{H}$ ）、アミノ基、ヒドロキシル基（特に、芳香環上で互いに隣接するヒドロキシル基）を包含する。そのような反応生成物の調製は、当業者に公知の方法、例えば、米国特許第4,702,962号および第4,340,716号、欧州特許第EP 342 035号、並びにJP 58-063758およびJP 58-069265に記載されている方法により実施してよい（前記特許文献の各々は、その全体を引用してここに組み込む）。エポキシ樹脂とキレート官能基含有化合物との反応生成物は市販もされており、その例は、ADEKA Resins EP-49-10N、EP-49-55C、EP-49-10、EP-49-20、EP-49-23およびEP-49-25（株式会社旭電化から販売）である。

【0050】

金属キレート特性を有する他の化合物を、基材表面に対する、注封組成物の反応生成物の接着性の強化を助けるために使用してもよく、そのような他の化合物は、例えば、米国特許出願第2005/0129955号に記載されている接着促進剤を包含する（前記特許文献は、その全体を引用してここに組み込む）。また、K-FLEX XM-B301の商品名でKing Industriesにより販売されているアセト酢酸官能化変性樹脂も、接着促進剤としての使用に適している。

【0051】

いくつかの官能性シランは、組成物と結合または相互作用できる反応性成分、基材と反応できるシラン成分、および/または他のシラン変性材料および加水分解性成分を包含する。いくつかのエポキシ反応性成分含有官能性シランは、Momentive Performance Materials Inc.（コネチカット在）により販売されている。

【0052】

本発明の熱伝導性注封組成物は、例えば、6重量%までの接着促進剤を含有してよい。接着促進剤は、必要に応じて、成分A)～E)の任意の1、2またはそれ以上に配合できる。

【0053】

チキソトロープ

任意の適当なチキソトロープを本発明の熱伝導性注封組成物に配合できる。本発明に適したチキソトロープ剤は、例えば、Disparlon 6100、Disparlon 6200〔King Industries, Science Rd.（コネチカット州ノーウォーク在）〕、有機クレイ、ヒュームドシリカ、不活性および/または機能性充填材、プラスチック充填材、およびポリアミド粉末を包含する。チキソトロープの有用な量は、典型的には、組成物全体の0～30重量%の範囲内である。好ましくは、チキソトロープは、組成物全体の1～10重量%の量で存在する。

【0054】

助剤

本発明の熱伝導性注封組成物は、注封組成物および/または注封組成物から得られる硬化反応生成物の物理的および化学的特性を更に変更するために、任意に、流動助剤、カップリング剤（例えばシラン）、粘着付与剤、難燃剤、レオロジー調整剤、阻害剤、腐食防止剤、酸化防止剤、安定剤、増粘剤、可塑剤、エラストマー、熱可塑性樹脂、着色剤、貯蔵寿命延長剤（例えば塩化亜鉛）、工業用マイクロバイオスタット、界面活性剤または湿潤剤（例えば、DuPontから販売されているZonyl（登録商標）FSO）、重合禁止剤、その他のよく知られている添加剤のような他の一般的な助剤、およびそれらの組み合わせを含

むことができる。

【 0 0 5 5 】

必要な特性に応じて、個々の成分の割合は、比較的広い範囲内で変更してよい。助剤は、必要に応じて、成分の任意の 1、2 またはそれ以上に配合できる。

【 0 0 5 6 】

本発明の熱伝導性注封組成物は、熱伝導性注封組成物を製造する公知の方法を用いて、必要に応じて他の添加剤と共に、成分 A) ~ E) を混合することにより製造してよい。例えば、上述した量で上述した成分を混合することにより製造してよい。各成分の添加の順は、本発明の目的に応じた熱伝導性注封組成物が得られる限り、特に限定されない。

【 0 0 5 7 】

本発明の熱伝導性注封組成物において、成分 A) ~ D) および成分 E) は別個に貯蔵できる。使用直前に、上記成分の全てを均一に混合して注封組成物を生成できる。減圧により脱気すると成分の混合により気泡が除去されるので、好ましい実施態様では、混合物を減圧により脱気する。混合した組成物は、室温または高温で、好ましくは 60 で適用され得る。別の好ましい実施態様では、それから得られた生成物を、20 ~ 60 分以内に 60 で減圧を伴って注封のために使用する。

【 0 0 5 8 】

好ましい実施態様では、本発明の熱伝導性注封組成物は、

A) 1 ~ 40 重量%の、少なくとも 500 mPa · s の 25 での粘度を有するエポキシ樹脂、

B) 0 . 1 ~ 20 重量%の、少なくとも 3 個のエポキシ官能基を有し、少なくとも 10 mPa · s かつ 1000 mPa · s 以下の 25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、

C) 1 ~ 50 重量%の、その 20 重量%は 0 . 01 ~ 1 μm の粒度を有するコアシェルナノ粒子、

D) 30 ~ 80 重量%の、D 1) 15 μm より大きく 100 μm 以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および

5 ~ 80 重量%の、D 2) 0 . 01 μm より大きく 15 μm 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

を含んでなる充填材、並びに

E) 1 ~ 20 重量%の硬化剤

を含んでなり、成分の重量比は、熱伝導性注封組成物の総重量に基づく。

【 0 0 5 9 】

本発明はまた、二成分熱伝導性注封組成物であって、

パート A は、

A) 少なくとも 500 mPa · s の 25 での粘度を有するエポキシ樹脂、

B) 少なくとも 3 個のエポキシ官能基を有し、少なくとも 10 mPa · s かつ 1000 mPa · s 以下の 25 での粘度を有する変性エポキシ樹脂、

C) その 20 重量%は 0 . 01 ~ 1 μm の粒度を有するコアシェルナノ粒子、

D) D 1) 15 μm より大きく 100 μm 以下の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナ、および

D 2) 0 . 01 μm より大きく 15 μm 以下の平均粒度を有する熱伝導性粉体

を含んでなる充填材

を含んでなり、

パート B は、

E) 硬化剤

を含んでなる、二成分熱伝導性注封組成物を提供する。

【 0 0 6 0 】

存在する場合の上記添加剤は、パート A および B の一方または両方に存在してよい。

【 0 0 6 1 】

パート A およびパート B は分離して貯蔵されている。2つのパートおよび存在する場合の

10

20

30

40

50

上記添加剤は、使用直前に均一に混合されて本発明の熱伝導性注封組成物を形成することができる。減圧により脱気するとパートAおよびBの混合により気泡が除去されるので、好ましい実施態様では、混合物を減圧により脱気する。混合した組成物は、室温または高温で、好ましくは60℃で適用され得る。別の好ましい実施態様では、それから得られた生成物を、20～60分以内に60℃で減圧を伴って注封のために使用する。

【0062】

一実施態様では、パートAおよびパートBはそれぞれ、2パート注封パッケージの成分であってよい。各パートは、使い勝手が良いように、化学的に分離され、パッケージ化されている。

【0063】

本発明の熱伝導性注封組成物は、電池式電気自動車(BEV)およびプラグインハイブリッド電気自動車(PHEV)を包含する新エネルギー車、産業機器、および航空宇宙用・民生用電子機器などの用途に使用することができる。

【0064】

従って、本発明は、本発明の熱伝導性注封組成物または本発明の二成分熱伝導性注封組成物の、新エネルギー車、産業機器、航空宇宙用および民生用電子機器のための使用を提供する。また、本発明は、本発明の熱伝導性注封組成物または本発明の二成分熱伝導性注封組成物の硬化生成物を含んでなる新エネルギー車も提供する。

【0065】

本発明の熱伝導性注封組成物は、低い粘度、高い熱伝導率、高い靱性(即ち、優れた接合強度)、および新エネルギー車にとって優れた熱衝撃性能を有する。

【0066】

以下の実施例は、当業者が本発明をよりよく理解し、実施するのを助けることを意図している。本発明の範囲は、実施例によって限定されるものではなく、添付の特許請求の範囲に定義されている。全ての部およびパーセントは、特に記載のない限り、重量に基づく。

【実施例】

【0067】

下記材料を実施例で使用した。

NPEL 128は、NAN YA EPOXY RESINから市販されており、12000～15000 mPa・sの25℃での粘度を有する液状ビスフェノールAエポキシ樹脂である。

HELOXY™ Modifier 48は、Hexion Specialty Chemicals, Inc.から市販されており、125～250 mPa・sの25℃での粘度を有し、3個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂である、トリメチロールプロントリグリシジルエーテルである。

HELOXY™ Modifier 8は、Hexion Specialty Chemicals, Inc.から市販されており、6～9 mPa・sの25℃での粘度を有し、1個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂である。

ED523Tは、株式会社ADEKAから市販されており、18 mPa・sの25℃での粘度を有し、2個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂である。

AEROSIL(登録商標)R974は、Evonik Industries AGから市販されており、170±20 m²/gのBET表面積および3.7～4.7のpHを有するヒュームドシリカである。

Hypox™ RA840は、CVC Thermoset Specialtiesから市販されており、150,000～230,000 mPa・sの52℃での粘度を有し、液状エラストマー変性ビスフェノールAエポキシ樹脂およびその20重量%が0.01～1 μmの粒度を有するコアシェルナノ粒子を含有するアクリロニトリルである。

【0068】

Kane Ace™ MX267は、株式会社カネカから市販されており、7000 mPa・sの50℃での粘度を有し、その20重量%が0.01～1 μmの粒度を有するコアシェルゴムナノ粒子である。

Fortegra 202は、Dow Chemical Companyから市販されており、4500～100

10

20

30

40

50

0 0 m P a ・ s の、ISO 3219に準拠して測定された25 での粘度を有する強化剤である。

QS-N12は、BEIJING JIN DAO QI SHI MATERIAL TECHNOLOGY CO., LTD.から市販されており、4 0 0 0 m P a ・ s 未満の25 での粘度を有する淡黄色の透明液状強化剤である。

QS-VA-3は、BEIJING JIN DAO QI SHI MATERIAL TECHNOLOGY CO., LTD.から市販されており、8 0 0 0 m P a ・ s 未満の25 での粘度を有する黄色から淡茶色の透明液状強化剤である。

BAK-20は、Yaan Bestry Performance Materials Corporationから市販されており、 $20 \pm 2.0 \mu\text{m}$ の平均粒度を有するシラン表面変性球状アルミナである。

10

SJR-20は、AnHui Estone Materials Technology Co., Ltd.から市販されており、 $20 \mu\text{m}$ の平均粒度を有する結晶水晶である。

【0069】

BAH-20H4は、Yaan Bestry Performance Materials Corporationから市販されており、 $20 \mu\text{m}$ の平均粒度を有する球状アルミナ粉体である。

BAH-40は、Yaan Bestry Performance Materials Corporationから市販されており、 $40 \mu\text{m}$ の平均粒度を有する球状アルミナ粉体である。

BAK-5は、Yaan Bestry Performance Materials Corporationから市販されており、 $5.0 \pm 1.0 \mu\text{m}$ の平均粒度を有する球状アルミナ粉体である。

DMP-30は、Huntsman Corporationから市販されているトリス（ジメチルアミノメチル）フェノールである。

20

MHHPAは、Shangdong QING YANG Corporationから市販されているメチルヘキサヒドロ無水フタル酸である。

D230は、Huntsman Corporationから市販されているポリエーテルアミンである。

【0070】

実施例1（Ex 1）

3.2 gのNPEL 128、0.8 gのHELOXY™ Modifier 48、および2 gのHypox™ RA840をSpeedmixer DC600に導入し、2000 rpmで2分間混合した。次いで、4.6 gのBAK-5および0.1 gのAEROSIL（登録商標）R974を混合器に添加し、2000 rpmで3分間混合した。続いて、18.4 gのBAK-20を混合器に添加し、2000 rpmで3分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000 rpmで2分間混合した。次いで、0.1 gのDMP 30および3.54 gのMHHPAを混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにヘイブン（haven）に投入した。

30

【0071】

実施例2（Ex 2）

3.2 gのNPEL 128、0.8 gのHELOXY™ Modifier 48、および2 gのKane Ace™ MX267をSpeedmixer DC600に導入し、2000 rpmで2分間混合した。次いで、4.6 gのBAK-5および0.1 gのAEROSIL（登録商標）R974を混合器に添加し、2000 rpmで3分間混合した。続いて、18.4 gのBAK-20を混合器に添加し、2000 rpmで3分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000 rpmで2分間混合した。次いで、0.1 gのDMP 30および3.74 gのMHHPAを混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにヘイブンに投入した。

40

【0072】

実施例3（Ex 3）

3.2 gのNPEL 128、0.8 gのHELOXY™ Modifier 48、および2 gのHypox™ RA840をSpeedmixer DC600に導入し、2000 rpmで2分間混合した。次いで、4.6 gのBAK-5および0.1 gのAEROSIL（登録商標）R974を混合器に添加し、2000 rpmで3分間混合した。続いて、18.4 gのBAH-20H4を混合器に添加

50

し、2000rpmで3分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000rpmで2分間混合した。次いで、0.1gのDMP 30および3.54gのMHHPAを混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

【0073】

実施例4 (Ex 4)

3.2gのNPEL 128、0.8gのHELOXY™ Modifier 48、および2gのHypox™ RA840をSpeedmixer DC600に導入し、2000rpmで2分間混合した。次いで、4.6gのBAK-5および0.1gのAEROSIL (登録商標) R974を混合器に添加し、2000rpmで3分間混合した。続いて、18.4gのBAK-20を混合器に添加し、2000rpmで3分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000rpmで2分間混合した。次いで、0.1gのDMP 30および3.54gのD230を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

【0074】

実施例5 (Ex 5)

3.2gのNPEL 128、0.8gのHELOXY™ Modifier 48、および2gのHypox™ RA840をSpeedmixer DC600に導入し、2000rpmで2分間混合した。次いで、4.6gのBAK-5および0.1gのAEROSIL (登録商標) R974を混合器に添加し、2000rpmで3分間混合した。続いて、18.4gのBAH-40を混合器に添加し、2000rpmで3分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000rpmで2分間混合した。次いで、0.1gのDMP 30および3.54gのMHHPAを混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

【0075】

実施例1～5の成分およびそれらの量をそれぞれ、表1に示す。

【表1】

表1：実施例の成分

成分		EX1	EX2	EX3	EX4	EX5
樹脂	NPEL 128	3.2 g	3.2 g	3.2 g	3.2 g	3.2 g
	HELOXY™ Modifier 48	0.8 g	0.8 g	0.8 g	0.8 g	0.8 g
希釈剤	HELOXY™ Modifier 8					
	ED523T					
	AEROSIL (登録商標) R974	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g
強化剤	Hypox™ RA840	2 g		2 g	2 g	2 g
	Kane Ace™ MX267		2 g			
	Fortegra 202					
	QS-N12					
	QS-VA-3					
充填材1	BAK-20	18.4 g	18.4 g			
	SJR-20					
	BAH-20H4			18.4 g	18.4 g	
	BAH-40					18.4 g
充填材2	BAK-5	4.6 g	4.6 g	4.6 g	4.6 g	4.6 g
硬化促進剤	DMP-30	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g
硬化剤	MHHPA	3.54 g	3.74 g	3.54 g		3.54 g
	D230				3.54 g	

10

20

30

40

50

【 0 0 7 6 】

比較例 1 (C E 1)

3 . 2 g の N P E L 1 2 8、0 . 8 g の H E L O X Y T M Modifier 8、および 2 g の H y p o x T M R A 8 4 0 を S p e e d m i x e r D C 6 0 0 に導入し、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、4 . 6 g の B A K - 5 および 0 . 1 g の A E R O S I L (登録商標) R 9 7 4 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。続いて、1 8 . 4 g の B A K - 2 0 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、0 . 1 g の D M P 3 0 および 3 . 2 g の M H H P A を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

10

【 0 0 7 7 】

比較例 2 (C E 2)

3 . 2 g の N P E L 1 2 8、0 . 8 g の E D 5 2 3 T、および 2 g の H y p o x T M R A 8 4 0 を S p e e d m i x e r D C 6 0 0 に導入し、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、4 . 6 g の B A K - 5 および 0 . 1 g の A E R O S I L (登録商標) R 9 7 4 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。続いて、1 8 . 4 g の B A K - 2 0 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、0 . 1 g の D M P 3 0 および 3 . 5 4 g の M H H P A を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

20

【 0 0 7 8 】

比較例 3 (C E 3)

3 . 2 g の N P E L 1 2 8、0 . 8 g の H E L O X Y T M Modifier 4 8、および 2 g の F o r t e g r a 2 0 2 を S p e e d m i x e r D C 6 0 0 に導入し、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、4 . 6 g の B A K - 5 および 0 . 1 g の A E R O S I L (登録商標) R 9 7 4 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。続いて、1 8 . 4 g の B A K - 2 0 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、0 . 1 g の D M P 3 0 および 3 . 3 5 g の M H H P A を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

30

【 0 0 7 9 】

比較例 4 (C E 4)

3 . 2 g の N P E L 1 2 8、0 . 8 g の H E L O X Y T M Modifier 4 8、および 2 g の H y p o x T M R A 8 4 0 を S p e e d m i x e r D C 6 0 0 に導入し、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、4 . 6 g の B A K - 5 および 0 . 1 g の A E R O S I L (登録商標) R 9 7 4 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。続いて、1 8 . 4 g の S J R - 2 0 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。続いて、0 . 1 g の D M P 3 0 および 3 . 5 4 g の M H H P A を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

40

【 0 0 8 0 】

比較例 5 (C E 5)

3 . 2 g の N P E L 1 2 8、0 . 8 g の H E L O X Y T M Modifier 4 8、および 2 g の Q S - N 1 2 を S p e e d m i x e r D C 6 0 0 に導入し、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、4 . 6 g の B A K - 5 および 0 . 1 g の A E R O S I L (登録商標) R 9 7 4 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。続いて、1 8 . 4 g の B A K - 2 0 を混合器に添加し、2 0 0 0 r p m で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2 0 0 0 r p m で 2 分間混合した。次いで、0 . 1 g の D M P 3 0 および 3 . 5 4 g の M H H P A を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにハイブunに投入した。

【 0 0 8 1 】

比較例 6 (C E 6)

50

3.2 g の NPEL 128、0.8 g の HELOXY™ Modifier 48、および 2 g の QS-VA-3 を Speedmixer DC600 に導入し、2000 rpm で 2 分間混合した。次いで、4.6 g の BAK-5 および 0.1 g の AEROSIL (登録商標) R974 を混合器に添加し、2000 rpm で 3 分間混合した。続いて、18.4 g の BAK-20 を混合器に添加し、2000 rpm で 3 分間混合した。このようにして得た混合物を減圧下、2000 rpm で 2 分間混合した。次いで、0.1 g の DMP 30 および 3.54 g の MHHPA を混合物に添加し、混合した。その後、このようにして得た組成物を硬化のためにヘイブンに投入した。

【0082】

比較例 1 ~ 6 の成分およびそれらの量をそれぞれ、表 2 に示す。

【表 2】

表 2：比較例の成分

成分		CE1	CE2	CE3	CE4	CE5	CE6
樹脂	NPEL 128	3.2 g	3.2 g	3.2 g	3.2 g	3.2 g	3.2 g
希釈剤	HELOXY™ Modifier 48			0.8 g	0.8 g	0.8 g	0.8 g
	HELOXY™ Modifier 8	0.8 g					
	ED523T		0.8 g				
シリカ	AEROSIL (登録商標) R974	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g
強化剤	Hypox™ RA840	2 g	2 g		2 g		
	Kane Ace™ MX267						
	Fortegra 202			2 g			
	QS-N12					2 g	
	QS-VA-3						2 g
充填材1	BAK-20	18.4 g	18.4 g	18.4 g		18.4 g	18.4
	SJR-20				18.4 g		
	BAH-20H4						
	BAH-40						
充填材2	BAK5	4.6 g	4.6 g	4.6 g	4.6 g	4.6 g	4.6 g
硬化促進剤	DMP-30	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g	0.1 g
硬化剤	MHHPA	3.2 g	3.54 g	3.35 g	3.54 g	3.54 g	3.54 g
	D230						

【0083】

性能評価

粘度：

実施例 1 ~ 5 および比較例 1 ~ 6 の組成物の粘度を、Rheometer MCR 301 を用いて、25 および 51 / s で試験した。

【0084】

熱伝導率：

実施例 1 ~ 5 および比較例 1 ~ 6 の組成物の熱伝導率を、NETZSCH から市販されている LFA 467 を用い、American Society for Testing and Materials の ASTM E146 1 に従って、25 で試験した。

【0085】

重ね剪断強度：

実施例 1 ~ 5 および比較例 1 ~ 6 の組成物の重ね剪断強度を、A1 および A1 を用い、Instron 5569 を用いて、American Society for Testing and Materials の ASTM D1002 に従って、25 で試験した。

【0086】

耐熱衝撃性：

試験を以下のように実施した：図 1 に示すように、アルミ製蓋、スチール製リングおよび絶縁紙を用いて、モーターの固定子をシミュレートするデバイスを作製し；アルミ製蓋が見えなくなるまで、実施例 1 ～ 5 および比較例 1 ～ 6 の各組成物をデバイスに注入、次いで、それらを硬化のためにオーブンに投入した。その後、組成物の硬化生成物を伴ったデバイスを、-40 で 1 時間および 150 で 1 時間のサイクルでの衝撃のために熱衝撃機に投入した。衝撃サイクルは、硬化生成物にクラックが発生するまで継続した。組成物の耐熱衝撃性をサイクル数で測定した。サイクル数が高いほど、組成物の耐熱衝撃性は優れる。

【0087】

10

実施例および比較例の熱伝導性注封組成物についての性能評価の試験結果をそれぞれ、表 3 および 4 に示す。

【0088】

【表 3】

表 3：実施例の試験結果

試験項目	EX1	EX2	EX3	EX4	EX5
25℃、5 1/sでの粘度 Pa.s	66.8	18.4	67.5	40.7	111
熱伝導率 w/m.k	0.73	0.78	0.73	0.8	0.75
Al/Al重ね剪断強度 Mpa	6.4	12.5	10.8	10.2	4.8
耐熱衝撃性 -40℃ 1h、150℃ 1h	285cy x	345cy x	> 380cy	270cy x	> 380cy

20

【0089】

表 3 に示されているように、本発明の熱伝導性注封組成物は、低い粘度を有し、優れた接合性能および耐熱衝撃性を同時に示した。

【0090】

【表 4】

30

表 4：比較例の試験結果

試験項目	CE1	CE2	CE3	CE4	CE5	CE6
25℃、5 1/sでの粘度 Pa.s	35	41	32.1	251	14.7	31.98
熱伝導率 w/m.k	0.68	0.65	0.68	0.8	0.76	0.74
Al/Al重ね剪断強度 Mpa	5.4	6.7	3.3	4.7	1.5	4.3
耐熱衝撃性 -40℃ 1h、150℃ 1h	228cy x	120cy x	80cy x	300cy x	300cy x	228cy x

40

【0091】

表 4 に示されているように、1 個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂を含有する比較例の組成物（CE1）または 2 個のエポキシ官能基を有する変性エポキシ樹脂を含有する比較例の組成物（CE2）は、低い耐熱衝撃性を示し；Fortegra 202 を含有する比較例の組成物（CE3）または QS-VA-3 を含有する比較例の組成物（CE6）は、低い接合性能および耐熱衝撃性を示し；QS-N12 を含有する比較例の組成物（CE5）は低い接合性能を示し；SJR-20 を含有する比較例の組成物（CE4）は非常に高い粘度を有しており、この注封組成物は加工できなかった。要約すると、本発明の範囲から逸脱する熱伝導性注封組成物は、低い粘度、並びに優れた接合性能および耐熱衝撃性を同時に示す

50

ことはできなかった。

【 0 0 9 2 】

いくつかの好ましい実施態様を記載したが、それらに対し、上記教示に照らして、多くの修正および変更がなされてもよい。従って、本発明は、添付の特許請求の範囲から逸脱することなく、具体的に記載された以外の方法で実施できると理解すべきである。

【 図 面 】

【 図 1 】

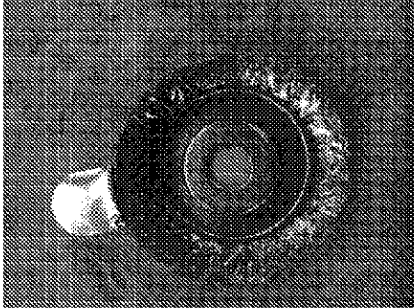


Fig. 1

10

20

30

40

50

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/CN2018/112319									
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08L 63/00(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08L 51/04(2006.01)i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC											
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08L; C09J; C08K Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CNABS, VEN, CNKI, CA, epoxy, triglycidyl, alumina, aluminum, oxide, conductive											
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category*</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>CN 106753143 A (NANJING NUOBANG NEW MATERIAL CO LTD) 31 May 2017 (2017-05-31) claims</td> <td>1-13</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>EP 1887033 A1 (NAT STARCH CHEM INVEST) 13 February 2008 (2008-02-13) the whole document</td> <td>1-13</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	CN 106753143 A (NANJING NUOBANG NEW MATERIAL CO LTD) 31 May 2017 (2017-05-31) claims	1-13	A	EP 1887033 A1 (NAT STARCH CHEM INVEST) 13 February 2008 (2008-02-13) the whole document	1-13
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.									
X	CN 106753143 A (NANJING NUOBANG NEW MATERIAL CO LTD) 31 May 2017 (2017-05-31) claims	1-13									
A	EP 1887033 A1 (NAT STARCH CHEM INVEST) 13 February 2008 (2008-02-13) the whole document	1-13									
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.											
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family											
Date of the actual completion of the international search 18 July 2019		Date of mailing of the international search report 05 August 2019									
Name and mailing address of the ISA/CN National Intellectual Property Administration, PRC 6, Xitucheng Rd., Jimen Bridge, Haidian District, Beijing 100088 China Facsimile No. (86-10)62019451		Authorized officer XIAO, Gang Telephone No. 62084458									

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

10

20

30

40

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/CN2018/112319

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
CN	106753143	A	31 May 2017	None			
EP	1887033	A1	13 February 2008	KR	20080014654	A	14 February 2008
				JP	2008045123	A	28 February 2008
				TW	200833770	A	16 August 2008
				CN	101121878	A	13 February 2008
				US	2008039555	A1	14 February 2008

10

20

30

40

50

フロントページの続き

G,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE
,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA
,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,R
W,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW
中華人民共和国 2 0 1 2 0 3 シャンハイ、プ・ドン、ヤオ・ホア・ロード、5 5 0 ノン、ナンバー
5 3、5 0 2 ルーム

(72)発明者 ウー・ハオ
中華人民共和国 2 0 0 0 3 2 シャンハイ、シューホイ、シャオムーチャオ・ロード、4 4 0 ノン、
ナンバー 3 2、ルーム 2 0 2

(72)発明者 チウ・シュエユー
中華人民共和国 2 0 1 2 9 9 シャンハイ、プドン・ニュー・エリア、ウエスト・シンドゥ・ロード
、レイン 2 0 7、ナンバー 7 6、ルーム 2 0 1

(72)発明者 シエ・シュエ
中華人民共和国 2 0 1 2 9 9 シャンハイ、プドン・ニュー・エリア、チョン・フォン・ロード、レ
イン 5 9 9、ナンバー 1 1、ルーム 1 0 0 1

F ターム (参考) 4J002 BN142 CD013 CD051 DE146 DE147 DJ018 EL139 EN109 FA086 FA087
FB096 FD016 FD017 FD018 FD149 FD159 GQ00 HA01