

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4898191号

(P4898191)

(45) 発行日 平成24年3月14日(2012.3.14)

(24) 登録日 平成24年1月6日(2012.1.6)

(51) Int.Cl.		F I	
C09J	1/00	(2006.01)	C O 9 J 1/00
H01J	5/50	(2006.01)	H O 1 J 5/50 J
H01K	1/46	(2006.01)	H O 1 K 1/46 X

請求項の数 5 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2005-315841 (P2005-315841)	(73) 特許権者	000213840
(22) 出願日	平成17年10月31日(2005.10.31)		朝日化学工業株式会社
(65) 公開番号	特開2007-119662 (P2007-119662A)		大阪府大阪市中央区高麗橋四丁目6番17号
(43) 公開日	平成19年5月17日(2007.5.17)	(74) 代理人	100113000
審査請求日	平成20年4月21日(2008.4.21)		弁理士 中山 亨
		(72) 発明者	矢内 啓介
			大阪市此花区春日出中3丁目1番98号
			朝日化学工業株式会社内
		(72) 発明者	瀧本 満
			大阪市此花区春日出中3丁目1番98号
			朝日化学工業株式会社内
		審査官	木村 拓哉

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着性組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

累積質量百分率50%相当粒子径(D50)が4 μ m～90 μ mであり、該累積質量百分率50%相当粒子径(D50)に対して累積質量百分率10%相当粒子径(D10)が1/20～1/4倍、累積質量百分率90%相当粒子径(D90)が4倍～10倍である球状アルミナ粉末、コロイダルシリカ、無機分散剤およびシランカップリング剤を含むことを特徴とする接着性組成物。

【請求項2】

球状アルミナ粉末が、質量基準の粒度分布曲線において粒子径60 μ m～110 μ mの範囲に極大ピークを有するものである請求項1に記載の接着性組成物。

【請求項3】

球状アルミナ粉末100質量部あたり、コロイダルシリカをSiO₂換算で3質量部～15質量部、無機分散剤を0.1質量部～1.5質量部およびシランカップリング剤を0.1質量部～1.5質量部含む請求項1または請求項2に記載の接着性組成物。

【請求項4】

ガラスバルブが、口金と接着されてなる電球の製造方法であり、前記ガラスバルブと、前記口金との間の隙間に、請求項1～請求項3のいずれかに記載の接着性組成物を充填し、加熱して硬化させることを特徴とする前記電球の製造方法。

【請求項5】

ガラスバルブが、口金と、請求項1～請求項3のいずれかに記載の接着性組成物の加熱硬

化物により接着されてなることを特徴とする電球。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、接着性組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

光源装置などに用いられる電球を構成するガラスバルブを口金、ミラー材料、磁製ベースなどと接着する方法としては、ガラスバルブと口金等との間の隙間に接着性組成物を充填し、硬化させる方法が一般的であり、接着性組成物としては、隙間への充填が容易で、硬化後には十分な接着力を示し、ガラスバルブ内のフィラメントや、これを支えるリード線からの熱を外部に伝えて放熱するための高い熱伝導性を示すことが求められている。

10

【0003】

このような接着性組成物として、例えば特許文献1〔特開平11-116899号公報〕には、耐火物粉末として窒化アルミニウム粉末を、無機バインダーとして燐酸アルミニウムを含む接着性組成物が開示されている。特許文献2〔特開2001-316638号公報〕には、耐火物粉末として炭化珪素粉末を、無機バインダーとしてコロイダルシリカを含む接着性組成物が開示されている。

【0004】

しかし、特許文献1に記載の接着性組成物は、無機バインダーとして燐酸アルミニウムを用いているため、十分な接着力を示すよう硬化させるには、充填後、24時間、室温で保持した後に加熱する必要がある、実用的ではない。特許文献2に記載の接着性組成物は、高価な炭化珪素粉末を使用するものであり、経済性の点で実用的ではない。

20

【0005】

このようなことから、隙間へ容易に充填でき、硬化後には十分な接着力と高い熱伝導性を示すとともに、比較的安価な原材料から製造でき、短時間で硬化し得る接着性組成物が求められている。

【0006】

【特許文献1】特開平11-116899号公報

【特許文献2】特開2001-316638号公報

30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

このような状況の下で本発明者は、ガラスバルブと口金等との接着に使用し得る接着性組成物について鋭意検討した結果、本発明に至った。

【課題を解決するための手段】

【0008】

すなわち本発明は、累積質量百分率50%相当粒子径(D50)が $4\mu\text{m}$ ～ $90\mu\text{m}$ であり、該累積質量百分率50%相当粒子径(D50)に対して累積質量百分率10%相当粒子径(D10)が $1/20$ ～ $1/4$ 倍、累積質量百分率90%相当粒子径(D90)が4倍～10倍である球状アルミナ粉末、コロイダルシリカ、無機分散剤およびシランカップリング剤を含むことを特徴とする接着性組成物を提供するものである。

40

【発明の効果】

【0009】

本発明の接着性組成物は、比較的安価な原材料から製造でき、また短時間で硬化し得、硬化後の接着力および熱伝導性に優れているので、電球を構成するガラスバルブと、口金、ミラー材料、磁製ベースなどを接着するための接着性組成物として有用である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0010】

本発明の接着性組成物に適用される球状アルミナ粉末は、外形が球状であるアルミナ粒子

50

であって、通常は球状の α -アルミナ粉末が用いられる。球状アルミナ粉末は、十分な接着力を示す点で、最小粒子径が通常 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上であり、ガラスバルブと口金等との間に充填し易い点で、最大粒子径が通常 $200\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $160\text{ }\mu\text{m}$ を超える粒子の含有量が1質量%以下である。

【0011】

アルミナ粉末の累積質量百分率50%相当粒子径(D50)は、十分な接着力が得られ易く、硬化後の熱伝導性に優れている点で通常 $4\text{ }\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上であり、ガラスバルブと口金等との間の隙間に充填しやすい点で、通常 $90\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $70\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。

【0012】

累積質量百分率10%相当粒子径(D10)は、高い熱伝導性を示す点で、D50の $1/20$ 倍以上、D50の $1/4$ 倍以下である。累積質量百分率90%相当粒子径(D90)は、高い熱伝導性を示す点で、D50の4倍以上であり、隙間へ充填し易い点で、10倍以下である。

【0013】

球状アルミナ粉末は、質量基準の粒度分布曲線において粒子径 $60\text{ }\mu\text{m}\sim 110\text{ }\mu\text{m}$ の範囲に極大ピークを有するものであることが好ましい。

【0014】

本発明で規定するD50、D10およびD90を示す球状アルミナ粉末は、例えば互いに粒度分布の異なる複数の球状アルミナ粉末を混合することにより調製することができ、具体的にはD50が $80\text{ }\mu\text{m}\sim 90\text{ }\mu\text{m}$ の球状アルミナ粉末、D50が $6\text{ }\mu\text{m}\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ の球状アルミナ粉末およびD50が $1\text{ }\mu\text{m}\sim 5\text{ }\mu\text{m}$ の球状アルミナ粉末を適宜混合する方法により調製することができる。

【0015】

コロイダルシリカは、シリカ $[\text{SiO}_2]$ の微細な粒子であり、その含有量(SiO_2 換算)は、アルミナ粉末100質量部あたり、十分な接着力が得られる点で3質量部以上、好ましくは5質量部以上であり、ガラスバルブと口金等との間の隙間に必要量の接着性組成物を保持することが容易である点で、15質量部以下、好ましくは10質量部以下である。

【0016】

無機分散剤は、接着性組成物中にアルミナ粉末およびコロイダルシリカを均一に分散させる機能を示す無機化合物であり、例えばモンモリロナイトなどが好ましく用いられ、その使用量は、上記アルミナ粉末100質量部あたり 0.1 質量部 ~ 1.5 質量部、好ましくは 0.3 質量部 ~ 1 質量部である。

【0017】

シランカップリング剤は、加水分解により分子中に2個以上のシラノール基を生ずる化合物であり、例えば γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエチルエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシランなどが挙げられる。シランカップリング剤は、その一部または全部が加水分解されていてもよい。シランカップリング剤の使用量は、上記アルミナ粉末100質量部あたり 0.1 質量部 ~ 1.5 質量部、好ましくは 0.2 質量部 ~ 1 質量部である。

【0018】

本発明の接着性組成物は、通常、水で希釈された状態で用いられる。水の使用量は、接着性組成物を加熱して硬化させた後の固形分に対して、隙間への充填が容易である点で通常 0.2 質量倍以上であり、充填した後に必要量の接着性組成物を隙間に保持しやすい点で通常 0.4 質量倍以下である。

【0019】

本発明の接着性組成物は、例えば球状アルミナ粉末、コロイダルシリカ、無機分散剤およびシランカップリング剤を混合する方法により容易に製造することができる。コロイダルシリカは、通常、水に分散された水分散液として市販されているので、このコロイダルシリカ的水分散液に、球状アルミナ粉末、無機分散剤およびシランカップリング剤を加えて

10

20

30

40

50

混合することにより、本発明の接着性組成物を調製することができ、通常は、無機分散剤およびシランカップリング剤を加え、攪拌して均一に混合した後に、球状アルミナ粉末を加えて攪拌混合することにより調製できる。

【0020】

本発明の接着性組成物を用いて、ガラスバルブと、金属製の口金、金属製のミラー材料または磁製ベースとが接着された電球を製造するには、例えばガラスバルブと、口金、ミラー材料または磁製ベースとの間の隙間に、本発明の接着性組成物を充填し、加熱すればよい。加熱温度は通常150℃～200℃であり、通常は5℃/分～30℃/分の昇温速度で昇温する。加熱時間は通常10分～1時間である。加熱することにより、接着性組成物が硬化して、ガラスバルブと口金等とが、本発明の接着性組成物の加熱硬化物により接着

10

【実施例】

【0021】

以下、実施例によって本発明をより詳細に説明するが、本発明は、かかる実施例によって限定されるものではない。

【0022】

なお、各実施例で用いた粉末および得られた接着性組成物は、以下の方法で評価した。

(1) 粒度分布

レーザー回折式粒度分布測定装置〔(株)島津製作所製、「SALD2200」〕を用いて粒子径0.03μmから1000μmの範囲で粒子径を測定し、粒度分布曲線を求めた。また、0.03μmからの累積質量が全質量の50%となる粒子径を累積質量百分率50%相当粒子径(D50)、10%となる粒子径を累積質量百分率10%相当粒子径(D10)、90%となる粒子径を累積質量百分率90%相当粒子径(D90)として、それぞれ求めた。

20

(2) 粘度

粘度計〔リオン(株)製、「ビスコテスターVT-04」〕を用い、同装置に付属のNo.2号ローターを用いて25℃にて1分後の粘度を測定した。

(3) 固形分濃度

各実施例で得た接着性組成物約50g(W)を300mLビーカーに秤取り、加熱して10℃/分の昇温速度で150℃まで昇温し、同温度で16時間保持して硬化させた後の加熱硬化物の質量(W150)から、式(1)

30

$$\text{固形分濃度 (\%)} = (W150 - W) / W \times 100 \cdots (1)$$

に従い求めた。

(4) 接着力

内径12mmのガラス管内に、外径9mmのガラス製の丸棒を入れ、管と丸棒との間に接着性組成物1.5gを均一に充填し、150℃にて1時間保持して硬化させた。その後、精密万能試験機〔(株)島津製作所製、「オートグラフAGS1000B型」〕にて丸棒をガラス管から押し抜くに要する力(N)を測定して、接着力とした。

(5) 自動充填性

ステンレス製ニードルバルブ〔岩下エンジニアリング(株)製、「AV-501」〕およびニードルノズル〔JIS規格に規定の13G型のニードル(内径1.5mm、外径2.0mm、長さ40mm、ステンレス製、電解研磨注射針)〕を備え、コントローラー〔岩下エンジニアリング(株)製、「AD-3000」〕により吐出時間および吐出サイクルを調整可能に構成した定量供給装置を用いて、ニードルノズルから、吐出時間1.2秒、吐出間隔7秒で繰り返し連続して2000ショット、接着性組成物を吐出し、その間の1回あたりの吐出量(g)を測定して自動充填性を評価した。吐出量の振れが小さいほど、自動充填性が良好であることを示す。

40

【0023】

実施例1

コロイダルシリカ液〔旭電化(株)製「アデライトAT-40」、SiO₂換算含有量40質量%〕360g(SiO₂換算144g)に、無機分散剤〔(株)ホーゲン製「ベンゲ

50

ル」、モンモリロナイトの粉末、 $E_{2/3}Si_8(Al_{10/3}Mg_{2/3})O_{20} \cdot (OH)_4$ 、(Eはナトリウム、カリウムなどでイオン交換可能な原子を示す。)〕9.0 gおよびシランカップリング剤〔東レダウコーニングシリコン(株)製「SH6040」、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン〕3.6 gを加え、3時間、攪拌混合した。

【0024】

次いで、以下の球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)を第1表に示す量だけ加え、30分間、攪拌混合して、接着性組成物を得た。なお、球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)を上記と同じ量比で混合した混合物の粒度分布曲線(質量基準)を図1に示す。この混合物は、粒子径分布曲線において粒子径約90 μm の位置に極大ピークを示す。また、この粒度分布曲線から求めた累積質量百分率50%相当粒子径(D50)、累積質量百分率10%相当粒子径(D10)および累積質量百分率90%相当粒子径(D90)をそれぞれ第1表に示す。

【0025】

球状アルミナ粉末(A)：(株)マイクロン製「AW70-125」、 α -アルミナ、
粒子径は50 μm ~155 μm 、D50は87 μm

球状アルミナ粉末(B)：(株)マイクロン製「AX10-32」、 α -アルミナ、
粒子径は0.3 μm ~55 μm 、D50は8 μm

球状アルミナ粉末(C)：(株)マイクロン製「AX3-32」、 α -アルミナ、
粒子径は0.2 μm ~45 μm 、D50は4 μm

【0026】

JDRタイプ電球〔定格電圧12 V、定格電力150 W〕に用いられ、モリブデン製リード線が封止されたガラスバルブの封止部分に、上記で得た接着性組成物により熱電対を取り付け、予め150 $^{\circ}C$ に加熱した炉内に入れて接着性組成物を硬化させることにより、熱電対をガラスバルブに固定した。次いで、このガラスバルブを口金にセットし、口金との間の隙間に上記で得た接着性組成物を充填したのち、150 $^{\circ}C$ で30分間加熱して、電球を得た。このようにして得た電球5個について、それぞれ消費電力150 W(電圧は約12 V)で点灯させ、JIS C7501に準拠して上記熱電対によりリード線封止部分の温度を測定し、その平均温度を求めた。結果を第1表に示す。

【0027】

実施例2

コロイダルシリカ液〔アデライトAT-40〕、無機分散剤〔ベンゲル〕、シランカップリング剤、球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)の使用量を第1表のとおりとする以外は実施例1と同様に操作して接着性組成物を得た。結果を第1表に示す。

【0028】

第 1 表

例		実施例 1	実施例 2
球状アルミナ粉末(A)	[g]	9 0 0	7 2 0
球状アルミナ粉末(B)	[g]	5 4 0	7 2 0
球状アルミナ粉末(C)	[g]	3 6 0	3 6 0
D50	[μm]	2 5 . 3	1 6 . 2
D10	[μm]	1 . 5 1	1 . 2 7
D90	[μm]	1 0 8 . 3	1 0 3 . 2
極大ピークの位置	[μm]	9 0	9 0
コロイダルシリカ(SiO_2 算)	[g]	1 4 4	1 0 2
無機分散剤	[g]	9 . 0	6 . 4
シランカップリング剤	[g]	3 . 6	2 . 6
粘度	[cP]	2 0 0 0 0	2 0 0 0 0
固形分濃度	[%]	8 9 . 8	9 1 . 5
接着力	[N]	3 0 0	3 0 0
吐出量	[g]	0 . 5 $\pm$ 0 . 1	—
封止部分の温度	[$^{\circ}\text{C}$]	2 5 9	2 5 9

【0029】

比較例 1～比較例 3

コロイダルシリカ液〔アデライト A T-40〕、無機分散剤〔ベンゲル〕、シランカップリング剤、球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)の使用量を第 2 表のとおりとする以外は実施例 1 と同様に操作して接着性組成物を得た。結果を第 2 表に示す。

【0030】

第 2 表

10

20

30

40

50

例	比較例 1	比較例 2	比較例 3
球状アルミナ粉末(A)	[g] 1 8 0 0	0	0
球状アルミナ粉末(B)	[g] 0	1 8 0 0	0
球状アルミナ粉末(C)	[g] 0	0	1 8 0 0
D50	[μ m] 8 6 . 7	8 . 2	4 . 1
D10	[μ m] 6 5 . 7	2 . 9	0 . 8
D90	[μ m] 1 1 7 . 9	2 4 . 1	1 0 . 9
コロイダルシリカ(SiO ₂ 算)[g]	1 9 4	1 8 0	2 1 6
無機分散剤	[g] 1 2 . 1	1 1 . 3	1 3 . 5
シランカップリング剤	[g] 4 . 9	4 . 5	5 . 4
粘度	[cP] 2 1 0 0 0	2 0 0 0 0	2 0 0 0 0
固形分濃度	[%] 8 7 . 2	8 8 . 0	8 6 . 2
接着力	[N] 2 0 0	2 5 0	2 0 0
吐出量	[g] 0 . 5 $\pm$ 0 . 1	—	—
封止部分の温度	[$^{\circ}$ C] 2 8 3	2 8 0	2 9 2

10

20

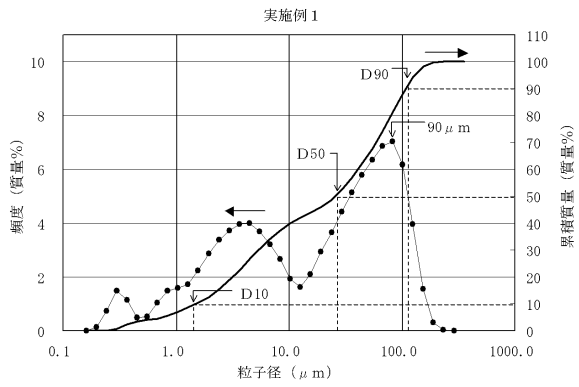
【図面の簡単な説明】

【0031】

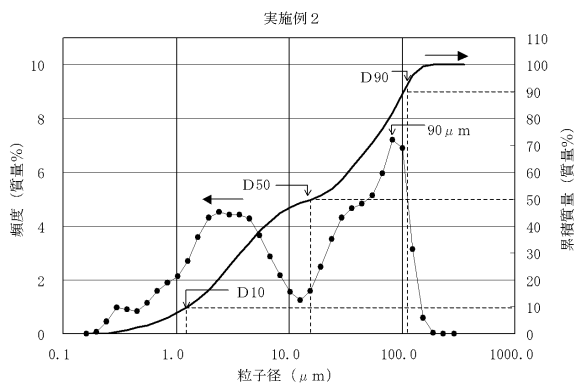
【図1】球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)を実施例1と同じ質量比で混合した混合物の粒度分布曲線（質量基準）である。

【図2】球状アルミナ粉末(A)、球状アルミナ粉末(B)および球状アルミナ粉末(C)を実施例2と同じ質量比で混合した混合物の粒度分布曲線（質量基準）である。

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

- (56)参考文献 特開平03-232757 (JP, A)
特開平05-082109 (JP, A)
特公昭56-034194 (JP, B1)
特開平02-256134 (JP, A)
特開平03-074483 (JP, A)
特開平08-041426 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C09J	1/00~201/10
H01J	5/50
H01K	1/46