

(52) CPC특허분류

C08L 83/04 (2013.01)

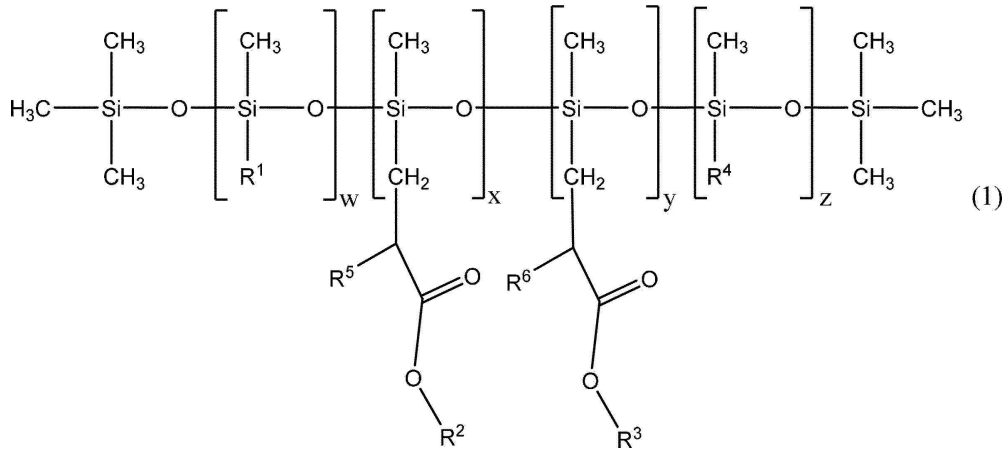
C09K 5/10 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

하기 일반식 (1)로 표시되는, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.



(식 (1)에 있어서, R¹은 수소 원자 또는 알케닐기이고, R²는 탄소수 1~14의 알킬기 I이며, R³은 탄소수 15~18의 알킬기 II이고, R⁵ 및 R⁶은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기이며, R⁴는 에틸기이고, w, x, y, z는 각각의 구성 단위의 유닛 수를 나타내며, w, x, y, z는 각각 0이어도 되고, x, y는 동시에 0이 되는 경우는 없으며, w, x, y, z의 합계에 대한 x와 y의 합계의 비율이 80~100%이다.)

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 식 (1)에 있어서, w, x, y, z의 합계에 대한 x의 비율이 20~80%이고, y의 비율이 15~75%인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 3

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 R² 및 R³이 직쇄상의 알킬기인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 4

청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 있어서,

식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 w의 비율이 0% 초과 20% 이하인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 5

청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 있어서,

식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 w의 비율이 0%인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 6

청구항 1 내지 청구항 5 중 어느 한 항에 있어서,

식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 z의 비율이 0% 초과 20% 이하인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 7

청구항 1 내지 청구항 5 중 어느 한 항에 있어서,

식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 z의 비율이 0%인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 8

청구항 1 내지 청구항 7 중 어느 한 항에 있어서,

중량 평균 분자량이 5,000~20,000인, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

청구항 9

청구항 1 내지 청구항 8 중 어느 한 항에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지와, 절연성 열전도 필러를 함유하는, 수지 복합 재료.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지 및 당해 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지를 포함하는 수지 복합 재료에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 최근, 전자 기기는, 회로의 고집적화에 따른 발열량의 증가로부터 열 대책이 중요해져, 그를 위한 방열 재료의 수요가 높아지고 있다. 방열용 실리콘 그리스는, 각종 전자 기기로부터 발생하는 열을 방출하는 용도 등으로서 사용되며, 일반적으로 실리콘 수지(매트릭스 수지)와 필러를 함유하는 재료이고, 높은 열전도성 및 유연성이 요구되고 있다. 방열용 실리콘 그리스의 열전도성을 향상시키기 위해서는, 열전도율이 높은 필러를 사용하는 것, 필러의 충전율을 높이는 것, 매트릭스 수지의 열전도율을 향상시키는 것 등을 생각할 수 있다.

[0003] 그러나, 열전도율이 높은 필러로서 질화 붕소, 질화 알루미늄, 다이아몬드 등이 알려져 있는데, 이들 필러는 실리콘 수지에 대한 친화성이나 분산성이 낮아, 충전율을 높이면 유연성이 나빠지는 경향이 있다. 또, 필러의 충전율을 높이려고 하면, 방열용 실리콘 그리스와 같은 복합 재료의 비중이 무거워지기 때문에, 전자 기기를 경량화할 수 없다.

[0004] 한편, 매트릭스 수지의 열전도성을 개선하는 방법으로서, 실리콘쇄에 알킬기를 도입한 예(특허문헌 1~5), 실리콘쇄에 액정 부위를 도입한 예(비특허문헌 1) 등도 보고되고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0005] (특허문헌 0001) 일본국 특허공개 평10-110179호 공보
- (특허문헌 0002) 일본국 특허공개 평11-049958호 공보
- (특허문헌 0003) 일본국 특허공개 2005-154532호 공보
- (특허문헌 0004) 일본국 특허공개 2007-277387호 공보
- (특허문헌 0005) 일본국 특허공개 2009-209230호 공보

비특허문헌

[0006] (비특허문헌 0001) Ying Li, Chenggong Li, Liang Zhang, Wenying Zhou., Journal of Materials Science : Materials in Electronics, Published online : 18 March 2019(<https://doi.org/10.1007/s10854-019-01150-1>)

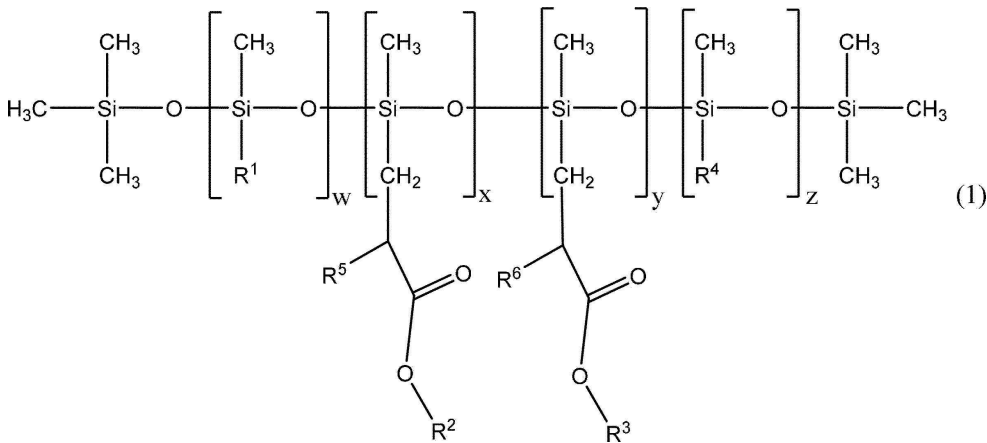
발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 그러나, 특허문헌 1~5에는, 실리콘 수지에 도입하는 알킬기의 종류 및 알킬기의 도입율과, 열전도율의 관계에 대해서 어떠한 기재도 되어 있지 않고, 구체적으로 어떻게 하여 실리콘 수지의 열전도율을 향상시키는지가 분명하지 않다. 또, 비특허문헌 1에서는 실리콘쇄에 액성 부위를 도입함으로써 결정성을 높여 열전도율을 향상시키고 있지만, 수지가 너무 가교되기 때문에 고체가 되어 버려 유연성을 잃고 있다.
- [0008] 이상과 같이, 실리콘 수지 자체의 열전도율을 향상시키는 구체적 수법에 대해서, 거의 예가 없고 해결 수단이 부족한 상황이다.
- [0009] 그래서 본 발명에서는, 유연성을 유지하면서, 열전도율이 높은 실리콘 수지를 제공하는 것을 과제로 한다.

과제의 해결 수단

- [0010] 본 발명자들은, 상기 목적을 달성하기 위해 예의 연구를 거듭한 결과, 알킬기 또는 메타크릴기에서 유래하는 쇠를 통해 알킬기를 도입한 식 (1)로 표시되는 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지에 의해 상기 과제를 해결할 수 있는 것을 발견하여, 본 발명을 완성시켰다.
- [0011] 즉, 본 발명은, 하기 [1]~[9]에 관한 것이다.
- [0012] [1] 하기 일반식 (1)로 표시되는, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.



- [0013]
- [0014] (식 (1)에 있어서, R¹은 수소 원자 또는 알케닐기이고, R²는 탄소수 1~14의 알킬기 I이며, R³은 탄소수 15~18의 알킬기 II이고, R⁵ 및 R⁶은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기이며, R⁴는 에틸기이고, w, x, y, z는 각각의 구성 단위의 유닛 수를 나타내며, w, x, y, z는 각각 0이어도 되고, x, y는 동시에 0이 되는 경우는 없으며, w, x, y, z의 합계에 대한 x와 y의 합계의 비율이 80~100%이다.)
- [0015] [2] 상기 식 (1)에 있어서, w, x, y, z의 합계에 대한 x의 비율이 20~80%이고, y의 비율이 15~75%인, 상기 [1]에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0016] [3] 상기 R² 및 R³이 직쇄상의 알킬기인, 상기 [1] 또는 [2]에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0017] [4] 식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 w의 비율이 0% 초과 20% 이하인, 상기 [1]~[3] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0018] [5] 식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 w의 비율이 0%인, 상기 [1]~[3] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0019] [6] 식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 z의 비율이 0% 초과 20% 이하인, 상기 [1]~[5] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0020] [7] 식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해 z의 비율이 0%인, 상기 [1]~[5] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.
- [0021] [8] 중량 평균 분자량이 5,000~20,000인, 상기 [1]~[7] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지.

[0022] [9] 상기 [1]~[8] 중 어느 하나에 기재된 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지와, 절연성 열전도 필러를 함유하는, 수지 복합 재료.

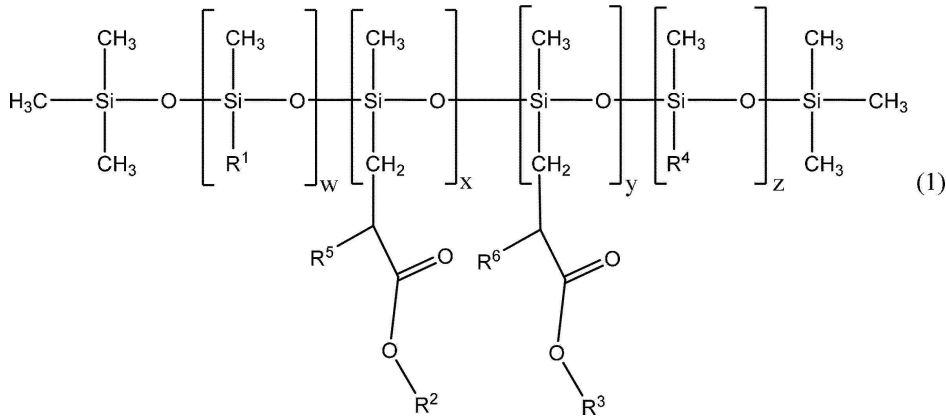
발명의 효과

[0023] 본 발명에 의하면, 유연성을 유지하면서, 열전도율이 높은 실리콘 수지를 제공할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0024] [측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지]

[0025] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는, 하기 일반식 (1)로 표시된다.



[0026]

[0027] 식 (1)에 있어서, R¹은 수소 원자 또는 알케닐기이고, R²는 탄소수 1~14의 알킬기 I이며, R³은 탄소수 15~18의 알킬기 II이고, R⁵ 및 R⁶은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기이며, R⁴는 에틸기이다. w, x, y, z는 각각의 구성 단위의 유닛 수를 나타내며, w, x, y, z는 각각 0이어도 되고, x, y는 동시에 0이 되는 경우는 없으며, w, x, y, z의 합계에 대한 x와 y의 합계의 비율이 80~100%이다.

[0028] 또한, 본 명세서에 있어서, w로 나타내는 괄호 안의 구성 단위를 「R¹을 갖는 구성 단위」로 기재하는 경우가 있고, x로 나타내는 괄호 안의 구성 단위를 「R²를 갖는 구성 단위」로 기재하는 경우가 있으며, y로 나타내는 괄호 안의 구성 단위를 「R³을 갖는 구성 단위」로 기재하는 경우가 있고, z로 나타내는 괄호 안의 구성 단위를 「R⁴를 갖는 구성 단위」로 기재하는 경우가 있다.

[0029] 또, 본 명세서에 있어서, 「측쇄형」이란, 화학종이 폴리머 주쇄 분자의 중심 부분에 결합하고 있는 형태를 의미한다.

[0030] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는, 일반식 (1)의 구조를 가짐으로써, 유연성을 유지하면서 열전도율이 향상된다. 열전도율이 향상되는 이유는 확실하지 않지만, 이하와 같이 추정된다.

[0031] 수지의 열전도율을 향상시키려면, 폴리머쇄의 포논 전파를 높이는 것이 효과적이다. Si-O-Si 결합으로부터 형성되는 실리콘쇄보다, C-C-C 결합으로부터 형성되는 알킬쇄가, 결합각이 넓어 변형이 적기 때문에 포논 전파가 개선된다. 또한, 식 (1)로 나타내는 바와 같이, 알킬기는 실리콘쇄의 측쇄에 도입되어 있으므로, 말단에 도입하는 것보다 알킬기의 도입율을 높일 수 있다. 이에 더하여, 알킬기는 아크릴기 또는 메타크릴기에서 유래하는 쇄를 통해 도입되고 있다. 아크릴기 또는 메타크릴기에서 유래하는 쇄는 산소 결합을 갖고 있다는 점에서, 수소 결합에 의해 폴리머 간의 그래인이 형성되기 쉬워져, 열전도율이 보다 향상된다고 생각된다. 또, 측쇄에 도입된 알킬기에 의해 폴리머 분자의 회전 반경이 커지는 것이나, 분자 지속 길이가 길어짐으로써, 열전도율이 향상된다고 생각된다.

[0032] 이와 같이, 포논 전파를 높일 수 있는 알킬기를, 아크릴기 또는 메타크릴로일기에서 유래하는 쇄를 통해 많이 도입하고 있기 때문에, 열전도율이 향상된다고 추정된다.

[0033] <R¹>

- [0034] 식 (1)에 있어서 R^1 은 수소 원자 또는 알케닐기이다. 알케닐기로서는, 바람직하게는 탄소수 2~10의 알케닐기이며, 예를 들면, 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 부틸기, 펜틸기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥틸기, 노닐기, 데세닐기 등을 들 수 있다.
- [0035] 식 (1)에 있어서, w 는 R^1 을 갖는 구성 단위의 유닛 수를 나타내고, 0~10인 것이 바람직하며, 0~5인 것이 보다 바람직하다.
- [0036] 또, 식 (1)에 있어서 w , x , y , z 의 합계에 대한 w 의 비율은, 바람직하게는 0%이거나 또는 0% 초과 20% 이하이며, 보다 바람직하게는 0%이거나 또는 0% 초과 10% 이하이다. w 의 비율이 이러한 범위이면, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 응집을 억제할 수 있어, 유연성을 양호하게 유지할 수 있다.
- [0037] R^1 은 규소 원자에 결합한 수소 원자 또는 알케닐기를 나타내기 때문에, 반응성이 높은 부위가 된다. 그 때문에, 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는 R^1 을 가짐으로써, 알케닐기 함유 오르가노폴리실록산이나 하이드로젠 오르가노폴리실록산 등과 부가 반응에 의한 경화물을 형성시킬 수 있다.
- [0038] 식 (1)에 있어서 R^1 은 존재하고 있지 않아도 된다(즉, $w=0$ 이어도 된다). R^1 이 존재하지 않는 경우는, 응집물의 형성을 효과적으로 억제할 수 있다.
- [0039] $\langle R^2 \rangle$
- [0040] 식 (1)에 있어서 R^2 는 탄소수 1~14의 알킬기 I이다. 측쇄에 이러한 장쇄 알킬기 I를 도입함으로써, 열전도율을 높일 수 있다. R^2 는 탄소수 6~12의 알킬기인 것이 바람직하고, 탄소수 8~12의 알킬기인 것이 보다 바람직하며, 탄소수 12의 알킬기인 것이 더 바람직하다.
- [0041] 식 (1)에 있어서, x 는 R^2 를 갖는 구성 단위의 유닛 수를 나타내고, 0~100인 것이 바람직하며, 5~80인 것이 보다 바람직하고, 10~60인 것이 더 바람직하다.
- [0042] 식 (1)에 있어서 w , x , y , z 의 합계에 대한 x 의 비율은 0~100%이고, 바람직하게는 60~100%이며, 보다 바람직하게는 80~100%이다.
- [0043] 식 (1)이 후술하는 R^3 을 갖는 구성 단위를 갖는 경우, 예를 들면 w , x , y , z 의 합계에 대한 y 의 비율이 15~75%인 경우는, x 의 비율은 20~80%의 범위여도 되고, 이러한 경우에도 열전도율을 높일 수 있다.
- [0044] R^2 로 표시되는 알킬기 I는, 열전도율 향상의 관점에서 직쇄상의 알킬기인 것이 바람직하다. 직쇄상의 알킬기로서는, 메틸기, 에틸기, n-프로필기, n-부틸기, n-펜틸기, n-헥실기, n-헵틸기, n-옥틸기, n-노닐기, n-데실기, n-운데실기, n-도데실기, n-트리데실기, n-테트라데실기를 들 수 있다.
- [0045] 식 (1)에 있어서 복수의 R^2 는 동일해도 되고 상이해도 되지만, 제조의 용이성 등에서 동일한 것이 바람직하다.
- [0046] $\langle R^3 \rangle$
- [0047] 식 (1)에 있어서 R^3 은 탄소수 15~18의 알킬기 II이다. 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는, 알킬기 II를 도입함으로써, 열전도율을 높일 수 있다.
- [0048] R^3 은 탄소수 16~18의 장쇄 알킬기인 것이 바람직하고, 탄소수 18의 장쇄 알킬기인 것이 보다 바람직하다.
- [0049] 식 (1)에 있어서, y 는 R^3 을 갖는 구성 단위의 유닛 수를 나타내고, 0~100인 것이 바람직하며, 10~70인 것이 보다 바람직하고, 20~50인 것이 더 바람직하다.
- [0050] 또, 식 (1)에 있어서 w , x , y , z 의 합계에 대한 y 의 비율은, 0~100%이고, 바람직하게는 15~75%이며, 보다 바람직하게는 20~70%이다. y 의 비율을 이들 하한값 이상으로 함으로써, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 열전도율이 높아지기 쉬워진다. 또 y 의 비율을 이들 상한값 이하로 함으로써, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 성상이 실온(23℃)에 있어서 액상이 되기 쉬워, 취급성이 양호해진다.
- [0051] 또, 식 (1)에 있어서 w , x , y , z 의 합계에 대한 x 와 y 의 합계의 비율은 80~100%이다. x 와 y 의 합계의 비율이

80% 미만이면, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지에 있어서의 알킬기의 수가 적어지고, 그 때문에 열전도율이 저하된다. x와 y의 합계의 비율은, 바람직하게는 85~100%이고, 보다 바람직하게는 90~100%이며, 더 바람직하게는 95~100%이다.

[0052] 식 (1)에 있어서, x, y는 각각 0이어도 되지만, x, y는 동시에 0이 되는 경우는 없으며, 바람직하게는 x, y는 모두 0이 아닌 것이 바람직하다. 즉, 알킬기 I 및 알킬기 II를 둘 다 도입하는 것이 바람직하고, 이로 인해, 보다 열전도율이 향상되기 쉬워진다.

[0053] R³으로 표시되는 알킬기 II는, 열전도율 향상의 관점에서 직쇄상의 알킬기인 것이 바람직하다. 직쇄상의 알킬기로서는, n-펜타데실기, n-헥사데실기, n-헵타데실기, n-옥타데실기를 들 수 있다.

[0054] 식 (1)에 있어서 복수의 R³은 동일해도 되고 상이해도 되지만, 제조의 용이성 등에서 동일한 것이 바람직하다.

[0055] <R⁵, R⁶>

[0056] R⁵ 및 R⁶은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기이다. 그 중에서도, 열전도율 향상의 관점에서, R⁵ 및 R⁶은 모두 메틸기인 것이 바람직하다.

[0057] <R⁴>

[0058] 식 (1)에 있어서 R⁴는 에틸기이다. 식 (1)에 있어서, z는 R⁴를 갖는 구성 단위의 유닛 수를 나타내고, 0~10인 것이 바람직하며, 0~5인 것이 보다 바람직하다.

[0059] 또, 식 (1)에 있어서 w, x, y, z의 합계에 대해, z의 비율은, 바람직하게는 0%이거나 또는 0% 초과 20% 이하이며, 보다 바람직하게는 0%이거나 또는 0% 초과 10% 이하이다.

[0060] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지를 제조할 때에, R⁴를 도입함으로써, R¹의 양을 조정하기 쉬워진다. 또한, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 제조 과정에 있어서, R¹의 양이 적절하게 조정된다면 R⁴는 도입하지 않아도 되다(즉 z=0이어도 된다).

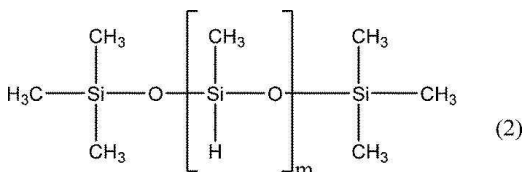
[0061] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는, R¹을 갖는 구성 단위, R²를 갖는 구성 단위, R³을 갖는 구성 단위, R⁴를 갖는 구성 단위의 비율이 상기한 바와 같으면 되고, 분자쇄 내에서의 각 구조 단위의 나열 방법은 한정되지 않는다. 즉, 분자 내에 각 구조 단위가 블록적으로 존재하고 해도 되고, 랜덤적으로 존재해도 된다.

[0062] <분자량>

[0063] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 중량 평균 분자량은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 5,000~20,000이며, 보다 바람직하게는 7,000~18,000이다. 중량 평균 분자량이 이러한 범위이면, 적절한 점도로 조정할 수 있어, 유연성을 유지하기 쉬워진다. 중량 평균 분자량은, 겔 투과 크로마토그래피(GPC) 측정을 행하고, 폴리스티렌 환산에 의해 구해지는 값이다.

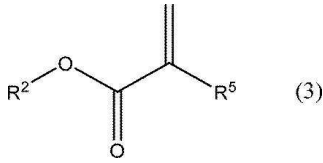
[0064] [측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 제조 방법]

[0065] 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 제조 방법은, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들면 하기 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물을, 백금 촉매의 존재 하에서, 하기 식 (3)으로 나타내는 알킬(메타)아크릴레이트 I 및 하기 식 (4)로 나타내는 알킬(메타)아크릴레이트 II로부터 선택되는 적어도 한쪽과 반응시키는 공정을 구비하는 방법을 들 수 있다.



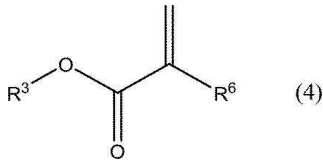
[0066]

[0067] (식 (2)에 있어서, m은 10~200이고, 바람직하게는 10~120이며, 보다 바람직하게는 15~80이다.)



[0068]

[0069] (식 (3)에 있어서의 R² 및 R⁵는 식 (1)의 것과 동의이다)



[0070]

[0071] (식 (4)에 있어서의 R³ 및 R⁶는 식 (1)의 것과 동의이다)

[0072] 이러한 공정을 구비함으로써, 식 (2)의 히드로실릴기(SiH)의 일부 또는 전부가, 알킬(메타)아크릴레이트 I 및 알킬(메타)아크릴레이트 II 중 적어도 어느 하나와 반응하여, 식 (1)에 있어서의 R²를 갖는 구성 단위 및 R³를 갖는 구성 단위를 형성할 수 있다. 이 때, R² 및 R³의 도입량은, 알킬(메타)아크릴레이트 I 및 알킬(메타)아크릴레이트 II의 배합량을 조절함으로써, 원하는 양으로 조정할 수 있다.

[0073] 본 공정에 있어서, 반응 온도, 반응 시간은 적절히 조정하면 되고, 예를 들면 반응 온도를 40~120℃로 하는 것이 바람직하며, 반응 시간은 1~24시간으로 하는 것이 바람직하다.

[0074] 반응은 용매의 존재 하에서 행해도 된다. 용매의 종류는 특별히 한정되지 않고, 불포화 이중 결합을 갖는 탄화수소의 종류에 따라 적절히 조정하면 되는데, 합성물의 용해성이나 반응 온도 등의 관점에서, 톨루엔이 바람직하다.

[0075] 상기한 반응 후, 필요에 따라 식 (2)에 있어서의 잔존한 히드로실릴기의 수를 저감시키기 위해, 추가로 에틸렌이나 메틸메타크릴레이트, 에틸메타크릴레이트, 메틸아크릴레이트, 에틸아크릴레이트를 첨가하여 반응시켜도 된다. 에틸렌을 첨가하여 반응시킨 경우는, 식 (1)에 있어서의 R⁴를 갖는 구성 단위가 형성된다. 메틸메타크릴레이트, 에틸메타크릴레이트, 메틸아크릴레이트, 에틸아크릴레이트를 첨가하여 반응시킨 경우는, 식 (1)에 있어서의 R²를 갖는 구성 단위가 형성된다.

[0076] 상기한 바와 같이 하여, 식 (1)로 표시되는 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지를 얻을 수 있다. 또한, R¹을 알케닐기로 하는 경우는, 불포화 이중 결합을 2개 갖는 탄화수소, 바람직하게는 양 말단에 불포화 이중 결합을 갖는 탄소수 4~18의 탄화수소를 첨가하여, 히드로실릴기와 반응시키면 된다.

[0077] [수지 복합 재료]

[0078] 본 발명의 수지 복합 재료는, 상기한 일반식 (1)로 표시되는 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지와 절연성 열전도 필러를 함유한다. 당해 수지 복합 재료는, 측쇄형 알킬 변성 수지가 매트릭스 수지가 되어, 당해 매트릭스 수지 중에 절연성 열전도 필러가 분산되어 있다.

[0079] 상기한 바와 같이, 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는 열전도성이 우수하므로, 절연성 열전도 필러를 병용함으로써, 보다 효과적으로 열전도율이 향상된다.

[0080] 수지 복합 재료 중의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지의 함유량은, 특별히 제한되지 않고, 절연성 열전도 필러의 분산성, 열전도성을 고려하면서 적절히 조정하면 되는데, 바람직하게는 10~97질량%이며, 보다 바람직하게는 50~95질량%이다.

[0081] <절연성 열전도 필러>

[0082] 본 발명의 수지 복합 재료는, 절연성 열전도 필러를 함유한다. 절연성 열전도 필러를 함유함으로써, 수지 복합 재료의 절연성 및 열전도성을 향상시킬 수 있다.

- [0083] 절연성 열전도 필러의 평균 입경은, 특별히 한정되지 않지만, 0.1 μ m 이상 250 μ m 이하인 것이 바람직하고, 0.2 μ m 이상 100 μ m 이하인 것이 보다 바람직하다.
- [0084] 또한, 평균 입경은, 예를 들면, 레이저 회절법 등에 의해 측정할 수 있으며, 누적 체적이 50%일 때의 입자경 (d50)을 평균 입경으로 하면 된다.
- [0085] 절연성 열전도 필러는, 예를 들면, 20℃에서의 체적 저항률이 바람직하게는 1.0 $\times 10^{10}$ $\Omega \cdot \text{cm}$ 이상의 절연성, 및 열전도율이 바람직하게는 10W/m \cdot K 이상의 열전도성을 갖는다.
- [0086] 체적 저항률은, JIS C2141에 준거하여 측정할 수 있다.
- [0087] 열전도율은, 예를 들면, 크로스 섹션 폴리셔로 절삭 가공한 필러 단면에 대해, 주식회사 베텔 제조 서멀 마이크 로스코프를 이용하여, 주기 가열 서모 리플렉턴스법에 의해 측정할 수 있다.
- [0088] 절연성 열전도 필러의 함유량은, 특별히 제한되지 않지만, 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지 100질량부에 대해, 바람직하게는 10~97질량부이고, 보다 바람직하게는 50~95질량부이다. 절연성 열전도 필러의 함유량이 이들 하한 값 이상이면, 수지 복합 재료의 열전도성이 높아진다. 한편, 절연성 열전도 필러의 함유량이 이들 상한값 이하 이면, 수지 복합 재료가 필요 이상으로 딱딱해지거나, 취급성이 나빠지는 것을 방지할 수 있다.
- [0089] 절연성 열전도 필러의 종류로서는, 특별히 제한되지 않지만, 예를 들면, 산화 알루미늄, 산화 마그네슘, 질화 붕소, 질화 붕소 나노 튜브, 질화 알루미늄, 및 다이아몬드 등을 들 수 있다.
- [0090] 절연성 열전도 필러는 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0091] <그 밖의 성분>
- [0092] 수지 복합 재료는, 본 발명의 효과를 저해하지 않는 범위에서 필요에 따라, 상기한 일반식 (1)로 표시되는 측쇄 형 알킬 변성 실리콘 수지 이외의 그 밖의 실리콘 수지를 포함하고 있어도 된다.
- [0093] 그 밖의 실리콘 수지로서는, 알케닐기, 히드로실틸기, 알콕시기 등의 반응성기를 갖는 실리콘 수지여도 되고, 반응기를 갖지 않는 실리콘 수지여도 된다.
- [0094] 그 밖의 실리콘 수지를 함유시키는 경우, 그 함유량은, 수지 복합 재료에 대해, 바람직하게는 50질량% 이하, 보다 바람직하게는 30질량% 이하, 더 바람직하게는 10질량% 이하이다.
- [0095] 또, 본 발명의 수지 복합 재료는, 필요에 따라, 분산제, 산화 방지제, 열 안정제, 착색제, 난연제, 대전 방지제 등의 첨가제를 함유해도 된다.
- [0096] 본 발명의 수지 복합 재료의 용도는 특별히 한정되지 않지만, 방열용 실리콘 그리스로서 각종 방열 용도로 사용할 수 있다. 예를 들면, 상기 수지 복합 재료를, 반도체 소자 등의 전자 부품과 히트 싱크 사이에 배치하여, 전자 부품으로부터 발생하는 열을 효과적으로 방열할 수 있다.
- [0097] **실시예**
- [0098] 이하, 본 발명의 구체적인 실시예 및 비교예를 드는 것으로 인해, 본 발명을 명확히 한다. 또한, 본 발명은 이하의 실시예로 한정되지 않는다.
- [0099] 각 실시예, 비교예의 각 화합물(실리콘 수지)의 평가 방법은 이하와 같다.
- [0100] [열전도율]
- [0101] 각 실시예, 비교예의 각 화합물의 열전도율의 측정을 C-Therm사 제조의 TCi에 의해 행하고, 이하의 평가 기준에 의거하여 평가했다.
- [0102] (평가)
- [0103] AA $\cdot\cdot\cdot$ 0.165W/mK 이상
- [0104] A $\cdot\cdot\cdot$ 0.160W/mK 이상 0.165W/mK 미만
- [0105] B $\cdot\cdot\cdot$ 0.150W/mK 이상 0.160W/mK 미만
- [0106] C $\cdot\cdot\cdot$ 0.150W/mK 미만

- [0107] [초기 형상]
- [0108] 각 실시예, 비교예의 각 화합물(실리콘 수지)의 성상이 실온(23℃)에 있어서 액체이면 「A」, 고체이면 「B」로서 평가했다.
- [0109] [실리콘에 대한 용해성]
- [0110] 25℃에 있어서, 각 실시예 및 비교예의 화합물 3g과 실리콘 7g을 혼합하여 각 화합물의 용해성을 확인했다. 또한, 실리콘으로서는 디메틸실리콘오일(신에츠 화학 제조 「KF-96-100cst」)을 이용했다.
- [0111] 용해된 경우를 「A」, 용해되지 않은 경우를 「C」로서 평가했다.
- [0112] [경시 변화(겔화)]
- [0113] 각 실시예, 비교예의 각 화합물(실리콘 수지)에 대해서, 120℃, 85% 습도로 24시간 경과시킨 후의 겔화의 유무를 확인했다.
- [0114] (평가)
- [0115] A · · 겔화가 확인되지 않았다.
- [0116] C · · 겔화가 확인되었다.
- [0117] 실시예 및 비교예에서 사용한 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지는, 다음에 나타내는 화합물 1~21, 비교 화합물 1~10으로 하여 준비했다.
- [0118] (화합물 1)
- [0119] 화합물 1은 이하와 같이 제조했다.
- [0120] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 메틸기, R^5 는 메틸기) 7.5g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여, 화합물 1을 얻었다.
- [0121] 화합물 1을 Si-NMR로 분석하여, 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지를 제조할 수 있음을 확인했다. 또한, 후술하는 각 화합물에 대해서도 동일한 방법으로 동정했다.
- [0122] (화합물 2)
- [0123] 화합물 2는 이하와 같이 제조했다.
- [0124] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=24) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 12.2g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 2를 얻었다.
- [0125] 화합물 2는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0126] (화합물 3)
- [0127] 화합물 3은 이하와 같이 제조했다.
- [0128] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=35) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 12.49g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 3을 얻었다.
- [0129] 화합물 3은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0130] (화합물 4)
- [0131] 화합물 4는 이하와 같이 제조했다.
- [0132] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 12.81g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서

12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 4를 얻었다.

[0133] 화합물 4는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0134] (화합물 5)

[0135] 화합물 5는 이하와 같이 제조했다.

[0136] 식 (2)의 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 탄소수 8의 분기 알킬기, R^5 는 메틸기) 14.9g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 5를 얻었다. 화합물 5는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0137] (화합물 6)

[0138] 화합물 6은 이하와 같이 제조했다.

[0139] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-옥틸기, R^5 는 메틸기) 14.9g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 6을 얻었다.

[0140] 화합물 6은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0141] (화합물 7)

[0142] 화합물 7은 이하와 같이 제조했다.

[0143] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 에틸기, R^5 는 메틸기) 8.59g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 7을 얻었다. 화합물 7은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0144] (화합물 8)

[0145] 화합물 8은 이하와 같이 제조했다.

[0146] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-부틸기, R^5 는 메틸기) 10.7g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 8을 얻었다. 화합물 8은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0147] (화합물 9)

[0148] 화합물 9는 이하와 같이 제조했다.

[0149] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 12.81g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 반응시켜 화합물 9를 얻었다. 화합물 9는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0150] (화합물 10)

[0151] 화합물 10은 이하와 같이 제조했다.

[0152] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-옥틸기, R^5 는 메틸기) 14.92g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90°C에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 10을 얻었다. 화합물 10은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0153] (화합물 11)

[0154] 화합물 11은 이하와 같이 제조했다.

- [0155] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-도데실기, R^5 는 메틸기) 19.14g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 11을 얻었다. 화합물 11은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0156] (화합물 12)
- [0157] 화합물 12는 이하와 같이 제조했다.
- [0158] 식 (2)의 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (4)의 알킬메타아크릴레이트(R^3 은 n-옥타데실기, R^6 은 메틸기) 25.48g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 12를 얻었다. 화합물 12는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0159] (화합물 13)
- [0160] 화합물 13은 이하와 같이 제조했다.
- [0161] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 12.81g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 13을 얻었다. 화합물 13은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0162] (화합물 14)
- [0163] 화합물 14는 이하와 같이 제조했다.
- [0164] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-도데실기, R^5 는 메틸기) 19.14g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 14를 얻었다. 화합물 14는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0165] (화합물 15)
- [0166] 화합물 15는 이하와 같이 제조했다.
- [0167] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 5g과, 식 (4)의 알킬메타아크릴레이트(R^3 은 n-옥타데실기, R^6 은 메틸기) 0.4g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 15를 얻었다. 화합물 15는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0168] (화합물 16)
- [0169] 화합물 16은 이하와 같이 제조했다.
- [0170] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 4.74g과, 식 (4)의 알킬메타아크릴레이트(R^3 은 n-옥타데실기, R^6 은 메틸기) 0.96g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 16을 얻었다. 화합물 16은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.
- [0171] (화합물 17)
- [0172] 화합물 17은 이하와 같이 제조했다.
- [0173] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 4.35g과, 식 (4)의 알킬메타아크릴레이트(R^3 은 n-옥타데실기, R^6 은 메틸기) 1.73g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화

합물 17을 얻었다. 화합물 17은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0174] (화합물 18)

[0175] 화합물 18은 이하와 같이 제조했다.

[0176] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R²는 n-도데실기, R⁵는 메틸기) 6.21g과, 식 (4)의 알킬메타크릴레이트(R³는 n-옥타데실기, R⁶는 메틸기) 2.11g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 18을 얻었다. 화합물 18은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0177] (화합물 19)

[0178] 화합물 19는 이하와 같이 제조했다.

[0179] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R²는 n-도데실기, R⁵는 메틸기) 3.9g과, 식 (4)의 알킬메타크릴레이트(R³는 n-옥타데실기, R⁶는 메틸기) 5.38g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 19를 얻었다. 화합물 19는 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0180] 화합물 20은 이하와 같이 제조했다.

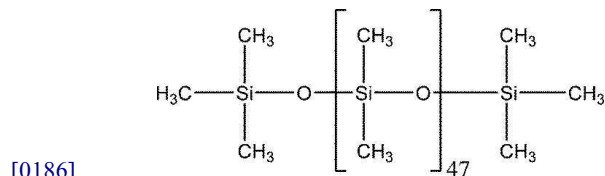
[0181] 식 (2)의 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 2g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R²는 n-도데실기, R⁵는 메틸기) 2.17g과, 식 (4)의 알킬메타크릴레이트(R³는 n-옥타데실기, R⁶는 메틸기) 7.69g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시켰다. 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 20을 얻었다. 화합물 20은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0182] 화합물 21은 이하와 같이 제조했다.

[0183] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R²는 n-옥틸기, R⁵는 메틸기) 13g을 드라이 톨루엔, 질소 분위기, 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 12시간 반응시키고, 반응 후 증발기 및 진공 건조기로 용매 제거하여 화합물 21을 얻었다. 화합물 21은 표 1에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

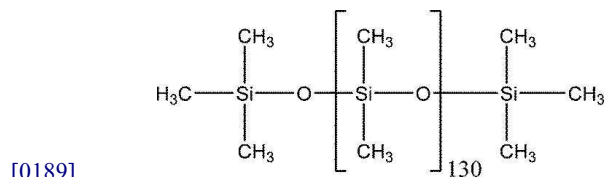
[0184] (비교 화합물 1)

[0185] 비교 화합물 1로서는, 이하의 구조를 갖는 시판품 1(신에츠 화학사 제조 「KF-96-50cst」)을 이용했다.



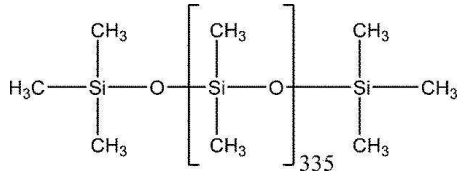
[0187] (비교 화합물 2)

[0188] 비교 화합물 2로서는, 이하의 구조를 갖는 시판품 2(신에츠 화학사 제조 「KF-96-200cst」)를 이용했다.



[0190] (비교 화합물 3)

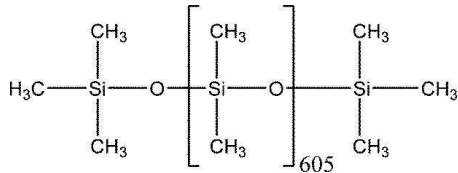
[0191] 비교 화합물 3으로서, 이하의 구조를 갖는 시판품 3(신에츠 화학사 제조 「KF-96-1000cst」)을 이용했다.



[0192]

[0193] (비교 화합물 4)

[0194] 비교 화합물 4로서, 이하의 구조를 갖는 시판품 4(신에츠 화학사 제조 「KF-96H-6000cst」)를 이용했다.



[0195]

[0196] (비교 화합물 5)

[0197] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=24)을 비교 화합물 5로 했다.

[0198] (비교 화합물 6)

[0199] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56)을 비교 화합물 6으로 했다.

[0200] (비교 화합물 7)

[0201] 비교 화합물 7은 이하와 같이 제조했다.

[0202] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-헥실기, R^5 는 메틸기) 2.42g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 반응시켜 비교 화합물 7을 얻었다. 비교 화합물 7은 표 2에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0203] (비교 화합물 8)

[0204] 비교 화합물 8은 이하와 같이 제조했다.

[0205] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-도데실기, R^5 는 메틸기) 5.06g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 반응시켜 비교 화합물 8을 얻었다. 비교 화합물 8은 표 2에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0206] (비교 화합물 9)

[0207] 비교 화합물 9는 이하와 같이 제조했다.

[0208] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-도데실기, R^5 는 메틸기) 9.03g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 반응시켜 비교 화합물 9를 얻었다. 비교 화합물 9는 표 2에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0209] (비교 화합물 10)

[0210] 비교 화합물 10은 이하와 같이 제조했다.

[0211] 식 (2)로 표시되는 히드로실릴기를 갖는 오르가노폴리실록산 화합물(m=56) 5g과, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^2 는 n-도데실기, R^5 는 메틸기) 5.4g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 90℃에서 반응시켰다. 그 후, 식 (3)의 알킬메타아크릴레이트(R^3 의 탄소수는 30, R^6 은 메틸기) 10.2g을 백금 촉매 존재 하에 있어서 120℃에서 반응시킨 후, 비교 화합물 10을 얻었다. 비교 화합물 10은 표 2에 기재된 구조의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지였다.

[0212] [실시에 1]

[0213] 상기한 바와 같이 제조한 본 발명의 측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지인 화합물 1을 시료로 하여, 열전도율, 초기

형상, 실리콘에 대한 용해성 및 경시 변화(겔화)에 관한 각 평가를 행했다. 결과를 표 3에 나타냈다.

[0214] [실시예 2~21, 비교예 1~10]

[0215] 화합물 1 대신에 표 3에 기재된 각 화합물을 사용한 것 이외에는, 실시예 1과 동일하게 하여 각 평가를 행했다. 결과를 표 3에 나타냈다.

표 1

시 (2)의 화합물	원료		합성물																				
	식 (2)의 화합물 m의 값	합테타에크릴레이트		특제형 알킬 변성 실리콘 수지																			
		R ² 의 탄소수	R ¹ 의 탄소수	R ¹ 의 종류	w	w비율 (%)	R ² 의 종류	R ² 의 탄소수	x	x비율 (%)	R ² 의 종류	R ² 의 탄소수	y	y비율 (%)	x·y합계 비율 (%)	R ¹ 의 종류	R ¹ 의 탄소수	z	z비율 (%)	증량 평균 분자량	성상		
화합물 1	56	1	H	3	5	직쇄 알킬	1	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	9000	액체	
화합물 2	24	6	H	1	4	직쇄 알킬	6	23	96	—	—	—	—	—	96	—	—	—	—	—	5500	액체	
화합물 3	35	6	H	2	6	직쇄 알킬	6	33	94	—	—	—	—	—	94	—	—	—	—	—	7800	액체	
화합물 4	56	6	H	3	5	직쇄 알킬	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	12500	액체	
화합물 5	56	8	H	3	5	분기 알킬	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	14000	액체	
화합물 6	56	8	H	3	5	직쇄 알킬	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	14000	액체	
화합물 7	56	2	H	3	5	직쇄 알킬	2	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	9500	액체	
화합물 8	56	4	H	5	9	직쇄 알킬	4	51	91	—	—	—	—	—	91	—	—	—	—	—	11000	액체	
화합물 9	56	6	H	3	5	직쇄 알킬	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	12500	액체	
화합물 10	56	8	H	3	5	직쇄 알킬	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	14000	액체	
화합물 11	56	12	H	3	5	직쇄 알킬	12	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	18000	액체	
화합물 12	56	18	H	3	5	—	—	—	—	—	직쇄 알킬	18	53	95	95	—	—	—	—	—	—	21000	고체
화합물 13	56	6	H	3	5	직쇄 알킬	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	12000	액체	
화합물 14	56	12	H	3	5	직쇄 알킬	12	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	—	—	17000	액체	
화합물 15	56	6	H	2	4	직쇄 알킬	6	52	93	—	—	—	—	—	96	—	—	—	—	—	13000	액체	
화합물 16	56	6	H	2	4	직쇄 알킬	6	49	88	—	—	—	—	—	9	—	—	—	—	—	13500	액체	
화합물 17	56	6	H	2	4	직쇄 알킬	6	45	80	—	—	—	—	—	16	—	—	—	—	—	14000	액체	
화합물 18	56	12	H	2	4	직쇄 알킬	12	43	77	—	—	—	—	—	20	—	—	—	—	—	18000	액체	
화합물 19	56	12	H	1	2	직쇄 알킬	12	27	48	—	—	—	—	—	50	—	—	—	—	—	20000	액체	
화합물 20	56	12	H	1	2	직쇄 알킬	12	15	27	—	—	—	—	—	71	—	—	—	—	—	21000	액체	
화합물 21	56	8	H	10	18	직쇄 알킬	8	46	82	—	—	—	—	—	82	—	—	—	—	—	12000	액체	

표 중의 w 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 w의 비율을 의미한다. 표 중의 x 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 x의 비율을 의미한다.
 표 중의 y 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 y의 비율을 의미한다. 표 중의 z 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 z의 비율을 의미한다.
 표 중의 x, y 합계 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 x와 y의 합계의 비율을 의미한다.

[0216]

표 2

비교 화합물	원료		합성물																			
	식 (2)의 화합물 m의 값	결정화도	R ² 의 탄소수	R ¹ 의 탄소수	R ¹ 의 종류	w	w 비율 (%)	R ² 의 탄소수	R ² 의 종류	x	x 비율 (%)	R ³ 의 탄소수	R ³ 의 종류	y	y 비율 (%)	x,y 합계 비율 (%)	R ⁴ 의 종류	z	z 비율 (%)	증량 평균 분자량	상상	
비교 화합물 1			시판품 1																			
비교 화합물 2			시판품 2																			
비교 화합물 3			시판품 3																			
비교 화합물 4			시판품 4																			
비교 화합물 5	24	—	—	H	24	100	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0	—	—	—	1600	액체
비교 화합물 6	56	—	—	H	56	100	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0	—	—	—	3500	액체
비교 화합물 7	56	6	—	H	46	82	직쇄 알킬	6	10	18	—	—	—	—	—	18	—	—	—	—	11000	액체
비교 화합물 8	56	12	—	H	42	75	직쇄 알킬	12	25	25	—	—	—	—	—	25	—	—	—	—	12500	액체
비교 화합물 9	56	12	—	H	31	55	직쇄 알킬	12	25	45	—	—	—	—	—	45	—	—	—	—	14000	액체
비교 화합물 10	56	12	30	H	31	55	직쇄 알킬	12	15	27	직쇄 알킬	30	10	18	45	45	—	—	—	—	22000	고체

표 중의 w 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 w의 비율을 의미한다. 표 중의 x 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 x의 비율을 의미한다.
 표 중의 y 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 y의 비율을 의미한다. 표 중의 z 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 z의 비율을 의미한다.
 표 중의 x, y 합계 비율(%)은, w, x, y, z의 합계에 대한 x와 y의 합계의 비율을 의미한다.

[0217]

표 3

	측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지	열전도율 (W/mK)	열전도율 평가	초기 형상	실리콘에 대한 용해성	경시 변화 (겔화)
실시예 1	화합물 1	0.158	B	A	A	A
실시예 2	화합물 2	0.158	B	A	A	A
실시예 3	화합물 3	0.158	B	A	A	A
실시예 4	화합물 4	0.156	B	A	A	A
실시예 5	화합물 5	0.153	B	A	A	A
실시예 6	화합물 6	0.159	B	A	A	A
실시예 7	화합물 7	0.158	B	A	A	A
실시예 8	화합물 8	0.156	B	A	A	A
실시예 9	화합물 9	0.156	B	A	A	A
실시예 10	화합물 10	0.159	B	A	A	A
실시예 11	화합물 11	0.163	A	A	A	A
실시예 12	화합물 12	0.492	AA	B	A	A
실시예 13	화합물 13	0.156	B	A	A	A
실시예 14	화합물 14	0.163	A	A	A	A
실시예 15	화합물 15	0.159	B	A	A	A
실시예 16	화합물 16	0.159	B	A	A	A
실시예 17	화합물 17	0.160	A	A	A	A
실시예 18	화합물 18	0.163	A	A	A	A
실시예 19	화합물 19	0.166	AA	A	A	A
실시예 20	화합물 20	0.167	AA	A	A	A
실시예 21	화합물 21	0.158	B	A	A	A
비교예 1	비교 화합물 1	0.145	C	A	A	A
비교예 2	비교 화합물 2	0.147	C	A	A	A
비교예 3	비교 화합물 3	0.148	C	A	A	A
비교예 4	비교 화합물 4	0.149	C	A	A	A
비교예 5	비교 화합물 5	0.132	C	A	A	C
비교예 6	비교 화합물 6	0.134	C	A	A	C
비교예 7	비교 화합물 7	0.140	C	A	A	C
비교예 8	비교 화합물 8	0.150	B	A	A	C
비교예 9	비교 화합물 9	0.159	B	A	A	C
비교예 10	비교 화합물 10	0.2	AA	B	C	C

[0218]

[0219] 본 발명의 요건을 만족하는 각 실시예의 화합물(측쇄형 알킬 변성 실리콘 수지)은, 열전도율이 높고, 또, 실리콘에 대한 용해성 및 경시 변화의 결과가 양호함에 따라 유연성이 우수했다.

[0220] 한편, 각 비교예의 화합물은, 실시예의 화합물보다 열전도율이 낮거나 또는 경시 변화의 결과가 나빠져, 높은 열전도성 및 유연성의 양립이 어려웠다.