

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5619487号
(P5619487)

(45) 発行日 平成26年11月5日(2014.11.5)

(24) 登録日 平成26年9月26日(2014.9.26)

(51) Int.Cl.

F I

C O 8 L 83/07 (2006.01)

C O 8 L 83/07

C O 8 K 3/22 (2006.01)

C O 8 K 3/22

C O 8 K 3/36 (2006.01)

C O 8 K 3/36

C O 8 K 5/5419 (2006.01)

C O 8 K 5/5419

C O 8 G 77/20 (2006.01)

C O 8 G 77/20

請求項の数 5 (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2010-143357 (P2010-143357)
 (22) 出願日 平成22年6月24日(2010.6.24)
 (65) 公開番号 特開2012-7057 (P2012-7057A)
 (43) 公開日 平成24年1月12日(2012.1.12)
 審査請求日 平成25年6月13日(2013.6.13)

(73) 特許権者 000110077
 東レ・ダウコーニング株式会社
 東京都千代田区大手町一丁目5番1号
 (72) 発明者 加藤 智子
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング株式会社内
 (72) 発明者 中吉 和己
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング株式会社内

審査官 小森 勇

(56) 参考文献 特開2009-286855 (JP, A)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱伝導性シリコングリース組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A) 平均組成式：

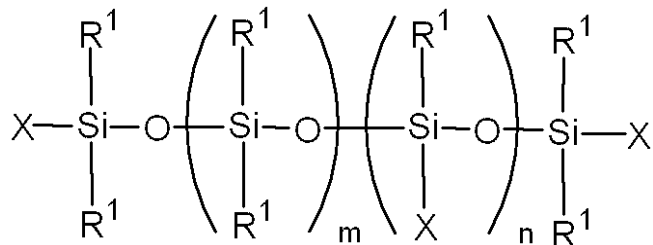
 $R^{1-a}SiO_{(4-a)/2}$ (式中、 R^1 は一価炭化水素基であり、 a は1.8～2.2の数である。)

で表され、25 で液状のオルガノポリシロキサン 100質量部、

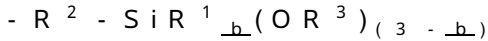
(B) 下記(B₁)成分～(B₃)成分からなる熱伝導性充填剤 800～6,000質量部、(B₁) 平均粒子径が15～55 μmである球状の酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、40～80質量%}(B₂) 平均粒子径が2～10 μmである球状酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、5～45質量%}(B₃) 平均粒子径が1 μm以下である酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、5～25質量%}

(C) 一般式：

【化 1】



{ 式中、 R^1 は同一または異なる一価炭化水素基であり、 X は同一または異なる、一価炭化水素基もしくは一般式：



(式中、 R^1 は前記と同じであり、 R^2 は酸素原子またはアルキレン基であり、 R^3 はアルキル基であり、 b は 0 ~ 2 の整数である。)

で表されるアルコキシシリル含有基であり、 m 、 n はそれぞれ 0 以上の整数である。 }

で表されるオルガノポリシロキサン 10 ~ 300 質量部から少なくともなる熱伝導性シリコングリース組成物。

【請求項 2】

(A) 成分の 25 における粘度が 100 ~ 1,000,000 mPa・s である、請求項 1 記載の熱伝導性シリコングリース組成物。

【請求項 3】

(A) 成分が (A₁) アリール基を有さないオルガノポリシロキサンと (A₂) アルキル基を有するオルガノポリシロキサンとからなり、(A) 成分中、前記 (A₂) 成分を 10 ~ 50 質量% 含有する、請求項 1 記載の熱伝導性シリコングリース組成物。

【請求項 4】

さらに、(D) シリカ系充填剤を、(A) 成分 100 質量部に対して 1 ~ 50 質量部含有する、請求項 1 記載の熱伝導性シリコングリース組成物。

【請求項 5】

さらに、(E) 一般式：



(式中、 R^5 は一価炭化水素基、エポキシ基含有有機基、メタクリル基含有有機基、又はアクリル基含有有機基であり、 R^6 はアルキル基であり、 e は 1 ~ 3 の整数である。)
で表されるシラン化合物またはその部分加水分解縮合物を、(A) 成分 100 質量部に対して 1 ~ 100 質量部含有する、請求項 1 記載の熱伝導性シリコングリース組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高熱伝導性を有し、取扱作業性が良好で、摩擦係数が小さい熱伝導性シリコングリース組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

トランジスター、IC、メモリー素子等の電子部品を搭載したプリント回路基板やハイブリッド IC の高密度・高集積化にともなって、これらを効率よく放熱するために、熱伝導性シリコングリース組成物が使用されている。このような熱伝導性シリコングリース組成物では、容易に流動しないように、該組成物中に熱伝導性充填剤が充填されている。さらに近年では、熱伝導性充填剤を高充填して熱伝導率を向上させることが求められている。例えば、特許文献 1 には、オルガノポリシロキサン、熱伝導性充填剤、少なくとも 2 種の加水分解性基含有メチルポリシロキサンからなる熱伝導性シリコングリース組成物が提案されている。また、特許文献 2 には、特定構造を有するオルガノポリシロキサン、アルキレン基を介して片末端にトリオルガノオキシシリル基を有し、ウェッターとして作用するオルガノポリシロキサン、および熱伝導性充填剤からなる熱伝導性シリコング

10

20

30

40

50

リース組成物が提案されている。さらに、特許文献3には、トリアルコキシシリル基とアルケニル基を有するシロキサンオリゴマー、異なる3種の平均粒径を有する熱伝導性充填剤、白金系触媒、オルガノハイドロジェンポリシロキサン、イソパラフィン系溶剤からなる熱伝導性シリコングリース組成物が提案されている。

【0003】

しかし、このような熱伝導性シリコングリース組成物を高熱伝導性とするため、熱伝導性充填剤を多量に配合すると、得られる組成物の摩擦係数が大きくなり、定量吐出装置等を用いて塗布しようとする、該装置が磨耗して、該組成物に異物が混入するという問題があった。

【先行技術文献】

10

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2004-262972号公報

【特許文献2】特開2008-019426号公報

【特許文献3】特開2009-138036号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の目的は、高熱伝導性で、取扱作業性が優れ、摩擦係数、特に、動摩擦係数が小さい熱伝導性シリコングリース組成物を提供することにある。

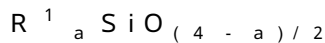
20

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明の熱伝導性シリコングリース組成物は、

(A) 平均組成式：



(式中、 R^1 は一価炭化水素基であり、 a は1.8～2.2の数である。)

で表され、25で液状のオルガノポリシロキサン100質量部、

(B) 下記(B₁)成分～(B₃)成分からなる熱伝導性充填剤 800～6,000質量部、

(B₁) 平均粒子径が15～55μmである球状の酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、40～80質量%}

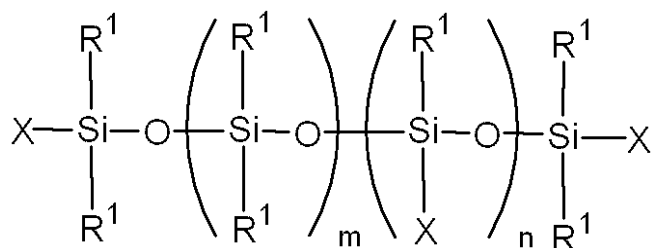
30

(B₂) 平均粒子径が2～10μmである球状酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、5～45質量%}

(B₃) 平均粒子径が1μm以下である酸化アルミニウム粉末 {(B)成分中、5～25質量%}

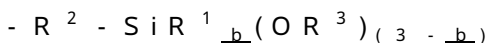
(C) 一般式：

【化1】



40

{式中、 R^1 は同一または異なる一価炭化水素基であり、 X は同一または異なる、一価炭化水素基もしくは一般式：



(式中、 R^1 は前記と同じであり、 R^2 は酸素原子またはアルキレン基であり、 R^3 はアルキル基であり、 b は0～2の整数である。)

で表されるアルコキシシリル含有基であり、 m 、 n はそれぞれ0以上の整数である。}

50

で表されるオルガノポリシロキサン 10 ~ 300 質量部から少なくともなることを特徴とする。

【発明の効果】

【0007】

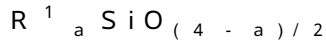
本発明の熱伝導性シリコングリース組成物は、高熱伝導性を有し、取扱作業性が良好であり、摩擦係数、特に、動摩擦係数が小さいという特徴がある。

【発明を実施するための形態】

【0008】

本発明の熱伝導性シリコングリース組成物を詳細に説明する。

(A) 成分は本組成物の主剤であり、平均組成式：



で表されるオルガノポリシロキサンである。式中、 R^1 は一価炭化水素基であり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基、ノナデシル基、エイコシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、ターシャリーブチル基、イソブチル基、2-メチルウンデシル基、1-ヘキシルヘプチル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロドデシル基等の環状アルキル基；ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、2-(2,4,6-トリメチルフェニル)プロピル基等のアラール基；3,3,3-トリフルオロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が挙げられ、好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、ビニル基、フェニル基である。また、式中、 a は 1.8 ~ 2.2 の数である。

【0009】

このような(A)成分の分子構造は限定されず、例えば、直鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、樹枝状(デンドリマー状)が挙げられ、好ましくは直鎖状、一部分岐を有する直鎖状である。(A)成分は、これらの分子構造を有する単一の重合体、これらの分子構造からなる共重合体、又はこれらの重合体の混合物であってもよい。

【0010】

また、(A)成分は25℃で液状であり、その25℃における粘度は特に限定されないが、好ましくは、100 ~ 1,000,000 mPa・s の範囲内であり、さらに好ましくは、200 ~ 1,000,000 mPa・s の範囲内であり、より好ましくは、200 ~ 500,000 mPa・s の範囲内であり、特に好ましくは、300 ~ 100,000 mPa・s の範囲内である。これは、25℃における粘度が上記範囲の下限未満であると、得られる組成物からオイルがブリードしやすくなり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の取扱作業性が著しく低下するからである。

【0011】

このような(A)成分としては、例えば、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端メチルフェニルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン共重合体、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン共重合体、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチル(3,3,3-トリフルオロプロピル)ポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、式： $CH_3SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(CH_3)_2SiO_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： C

10

20

30

40

50

$6\text{H}_5\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{CH}_3\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{CH}_3\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、およびこれらの2種以上の混合物が挙げられる。特に、本組成物を基材から除去する必要がある場合に、該組成物を容易に除去できることから、(A)成分は、(A₁)アリール基を有さないオルガノポリシロキサン、例えば、ジメチルポリシロキサンと、(A₂)アリール基を有するオルガノポリシロキサン、例えば、メチルフェニルポリシロキサンもしくはジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体との混合物であることが好ましい。この場合、(A)成分中の前記(A₂)成分の含有量は10～50質量%の範囲内であることが好ましい。

【0012】

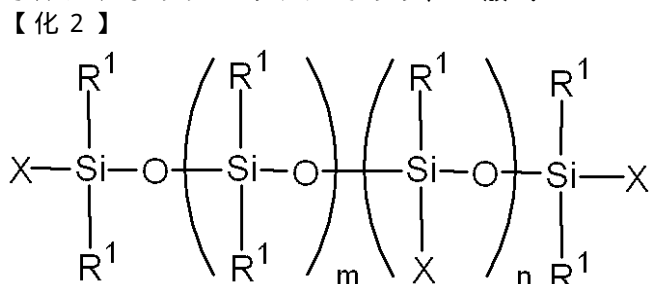
(B)成分は本組成物に熱伝導性を付与するためのアルミニウム粉末であり、(B₁)平均粒子径が15～55μmである球状の酸化アルミニウム粉末 40～80質量%、(B₂)平均粒子径が2～10μmである球状の酸化アルミニウム粉末 5～45質量%、および(B₃)平均粒子径が1μm以下である酸化アルミニウム粉末 5～25質量%からなる混合物である。これは、(B)成分中、(B₁)成分の割合が上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の摩擦係数が大きくなり、定量吐出装置等を用いて電子部品に塗布しようとした際、該装置の摩耗により、塗布された組成物に異物の混入を生じるおそれがあり、一方、上記範囲の下限未満となると、得られる組成物の熱伝導性が低下するからである。また、(B)成分中、(B₂)成分の割合が上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の粘度が高くなり、これを定量吐出装置を用いて電子部品に塗布しようとした際の塗布作業性が低下するからであり、一方、上記範囲の下限未満となると、得られる組成物の熱伝導性が低下するからである。さらに、(B)成分中、(B₃)成分の割合が上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の粘度が高くなり、これを定量吐出装置により電子部品に塗布しようとした際の塗布作業性が低下するからであり、一方、上記範囲の下限未満となると、得られる組成物の熱伝導性が低下するからである。また、(B₁)成分および(B₂)成分の形状は球状であるが、(B₃)成分の形状は特に限定されず、破碎状、丸み状、球状が例示される。

【0013】

(B)成分の含有量は、(A)成分100質量部に対して、800～6,000質量部の範囲内であり、好ましくは、1,000～5,000質量部の範囲内である。これは、(B)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、得られる組成物の熱伝導性が低下するからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の取扱作業性が著しく低下するからである。

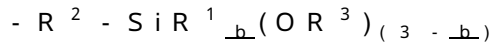
【0014】

(C)成分は本組成物の取扱作業性を低下させないで、(B)成分を高充填するためのオルガノポリシロキサンであり、一般式：



で表される。式中、R¹は同一または異なる一価炭化水素基であり、前記と同様の一価炭

化水素基が例示され、好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、ビニル基、フェニル基である。また、式中、Xは同一または異なる、一価炭化水素基もしくは一般式：



で表されるアルコキシシリル含有基である。Xの一価炭化水素基としては、前記R¹と同様の一価炭化水素基が例示され、好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、ビニル基、フェニル基である。また、Xのアルコキシシリル含有基において、式中、R¹は一価炭化水素基であり、前記と同様の一価炭化水素基が例示される。また、式中、R²は酸素原子またはアルキレン基であり、R²のアルキレン基としては、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基が例示される。また、式中、R³はアルキル基であり、メチル基、エチル基、プロピル基が例示され、好ましくは、メチル基である。また、式中、bは0～2の整数であり、好ましくは、0である。

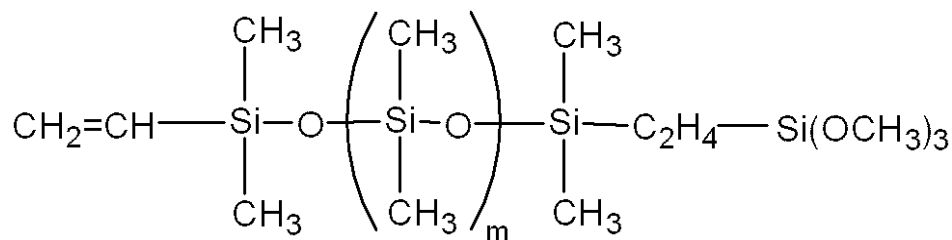
【0015】

また、式中、mは0以上の整数である。但し、上記aが0である場合、式中のmは1以上の整数である。mは、好ましくは、0～500の整数であり、より好ましくは、1～500の整数であり、より好ましくは、5～500の整数であり、さらに好ましくは、10～500の整数であり、特に好ましくは、10～200の整数である。これは、mの値が上記範囲の下限未満であると、(B)成分の表面を(C)成分で十分に処理することができず、得られる組成物に(B)成分を高充填しにくくなるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の取扱作業性が低下するからである。また、式中のnは0以上の整数であり、好ましくは、0～500の整数であり、より好ましくは、0～50の整数であり、特に好ましくは、0～10の整数である。これは、nの値が上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の取扱作業性が低下するからである。

【0016】

このような(C)成分としては、一般式：

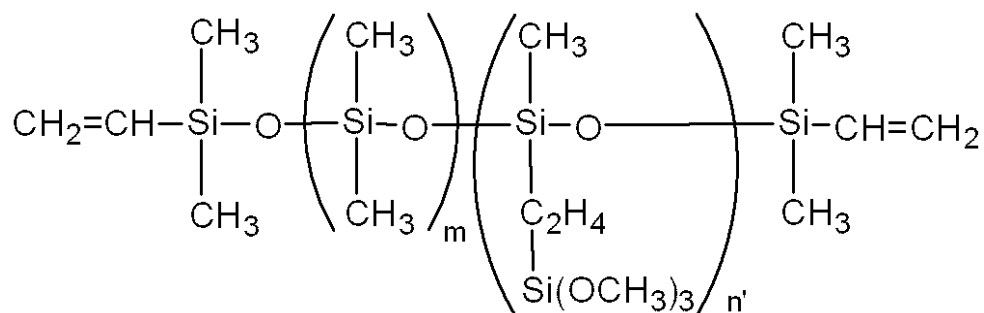
【化3】



(式中、mは0以上の整数)

で表されるオルガノポリシロキサン、一般式：

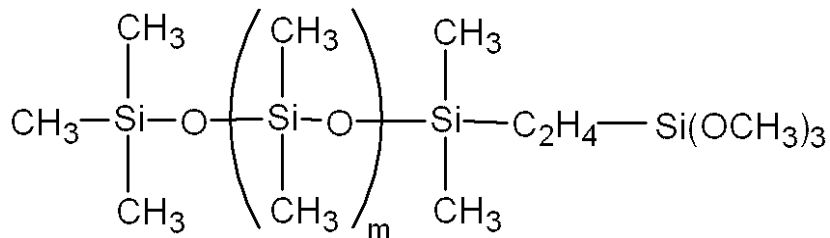
【化4】



(式中、mは0以上の整数、n'は0以上の整数)

で表されるオルガノポリシロキサン、一般式：

【化 5】

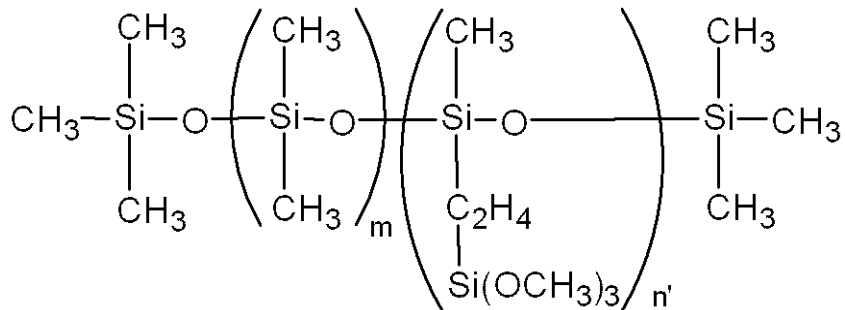


(式中、mは0以上の整数)

で表されるオルガノポリシロキサン、一般式：

10

【化 6】



20

(式中、mは0以上の整数、n'は0以上の整数)

で表されるオルガノポリシロキサンが例示される。

【0017】

(C)成分の含有量は、(A)成分100質量部に対して、10～300質量部の範囲内であり、好ましくは、20～300質量部の範囲内である。これは、(C)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、(B)成分を多量に含有した場合に、得られる組成物の取扱作業性が低下するからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の耐熱性が低下したりするおそれがあるからである。

【0018】

さらに、本組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、(D)シリカ系充填剤を含有してもよい。(D)成分としては、例えば、ヒュームドシリカ、溶融シリカ、沈降性シリカ等のシリカ微粉末；これらの表面を、アルコキシシラン、クロロシラン、シラザン等の有機ケイ素化合物により疎水化处理したシリカ微粉末が例示される。(D)成分のBET比表面積は50m²/g以上であることが好ましく、特に、100m²/g以上であることが好ましい。これは、BET比表面積が上記範囲の下限未満であると、(B)成分の沈降分離を抑制しにくくなるからである。

30

【0019】

(D)成分の含有量は、(A)成分100質量部に対して、1～50質量部の範囲内であり、好ましくは、1～30質量部の範囲内であり、特に好ましくは、1～15質量部の範囲内である。これは、(D)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、得られる組成物の粘度が低い場合には、(B)成分の沈降分離を生じやすくなるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる組成物の粘度が著しく上昇し、その取扱作業性が著しく低下するからである。

40

【0020】

さらに、本組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、(E)一般式：



で表されるシラン化合物又はその部分加水分解縮合物を含有してもよい。この(E)成分は、(C)成分と同様、取扱作業性を低下させないで、(B)成分を高充填するための成分である。式中、R⁵は一価炭化水素基、エポキシ基含有有機基、メタクリル基含有有機

50

基、又はアクリル基含有有機基である。R⁵の一価炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、デシル基、オクタデシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、ターシャリーブチル基、イソブチル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロヘキシル基等の環状アルキル基；ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基等のアルケニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフルオロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が例示される。また、R⁵のエポキシ基含有有機基としては、3-グリシドキシプロピル基、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル基が例示される。また、R⁵のメタクリル基含有有機基としては、3-メタクリロキシプロピル基が例示される。また、R⁵のアクリル基含有有機基としては、3-アクリロキシプロピル基が例示される。また、式中、R⁶はアルキル基であり、前記R³と同様のアルキル基が例示される。また、式中、eは1~3の整数であり、好ましくは、1または2であり、特に好ましくは、1である。

10

【0021】

このような(E)成分のシラン化合物としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、n-プロピルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ペンチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、メチルビニルジメトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、アリルメチルジメトキシシラン、ブテニルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルメチルジメトキシシランが例示される。

20

【0022】

(E)成分の含有量は、(A)成分100質量部に対して、1~100質量部の範囲内であり、好ましくは、5~100質量部の範囲内であり、特に好ましくは、5~50質量部の範囲内である。これは、(E)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、(B)成分を多量に含有した場合に、得られる組成物の粘度が上昇し、取扱作業性が低下したり、得られる組成物の貯蔵中に(B)成分が、凝集したり、沈降分離しやすくなるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、(B)成分の表面処理に寄与しない成分が増加するからである。

30

【0023】

(B)成分の表面を(C)成分と(E)成分で処理する方法としては、例えば、(B)成分の表面を予め(C)成分で処理し、次いで(E)成分で処理する方法；(B)成分の表面を予め(E)成分で処理し、次いで(C)成分で処理する方法；(B)成分の表面を(C)成分と(E)成分で同時に処理する方法；(A)成分中で(B)成分の表面を(C)成分で処理し、次いで、(E)成分で処理する方法；(A)成分中で(B)成分の表面を(E)成分で処理し、次いで、(C)成分で処理する方法；(A)成分中で(B)成分の表面を(C)成分と(E)成分で同時に処理する方法；予め(C)成分で表面処理された(B)成分を(A)成分中で(E)成分で処理する方法；予め(E)成分で表面処理された(B)成分を(A)成分中で(C)成分で処理する方法が挙げられる。このようにして得られた本組成物中、(C)成分と(E)成分は(B)成分の表面を処理した状態で含有されているか、または本組成物中に単に含有されていてもよい。また、(B)成分を(C)成分あるいは(E)成分で処理する際、それらの処理を促進するために、加熱してもよい。

40

【0024】

さらに、本組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、例えば、前記(B)成分以外の、例えば、酸化マグネシウム、酸化チタン、酸化ベリリウム

50

等の酸化亜鉛以外の金属酸化物；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物；窒化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素等の窒化物；炭化ホウ素、炭化チタン、炭化ケイ素等の炭化物；グラファイト、黒鉛等の石墨；銅、ニッケル、銀等のアルミニウム以外の金属、およびこれらの混合物からなる熱伝導性充填剤；その他、顔料、染料、蛍光染料、耐熱添加剤、トリアゾール系化合物以外の難燃性付与剤、可塑剤を含有してもよい。

【 0 0 2 5 】

このような本組成物は、熱伝導率が少なくとも $2 \text{ W / m} \cdot \text{K}$ である熱伝導性シリコーングリース組成物である。

【 実施例 】

【 0 0 2 6 】

本発明の熱伝導性シリコーングリース組成物を実施例により詳細に説明する。なお、実施例中の特性は 25 における値である。また、熱伝導性シリコーングリース組成物の特性を次のようにして測定した。

【 0 0 2 7 】

[粘度]

熱伝導性シリコーングリース組成物の粘度を T A インスツルメンツ社製レオメーター (A R 5 5 0) を用いて測定した。ジオメトリーとして直径 20 mm の平行プレートを用い、ギャップ $200 \mu\text{m}$ 、シェアレート $10.0 (1 / \text{s})$ の条件で測定した。

【 0 0 2 8 】

[熱伝導率]

熱伝導性シリコーングリース組成物を $60 \text{ mm} \times 150 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ の容器に充填し、脱泡した後、その表面を厚さ $10 \mu\text{m}$ のポリ塩化ビニリデンフィルムで被覆した後、該フィルムを介して熱伝導性シリコーングリース組成物の熱伝導率を細線加熱法 (ホットワイヤ法) により京都電子工業株式会社製の迅速熱伝導率測定装置 (Q T M - 5 0 0) を用いて測定した。

【 0 0 2 9 】

[摩擦係数]

水平な S U S 3 0 4 板上に熱伝導性シリコーングリース組成物を薄く均一に塗布し、その上を荷重 490 mN の S U S 3 0 4 板を速度 1200 mm / 分 で引っ張る際の動摩擦力 (mN) を測定することにより、動摩擦係数を求めた。

【 0 0 3 0 】

[拭き取り性]

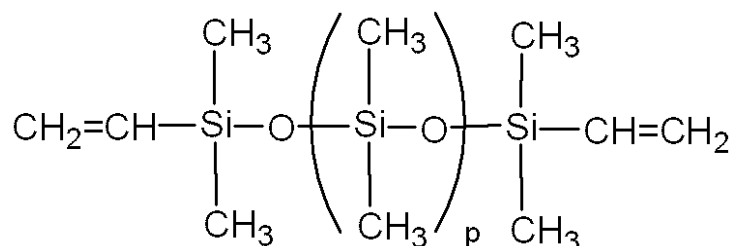
$1 \text{ mm} \times 25 \text{ mm} \times 75 \text{ mm}$ の S U S 3 0 4 板上に熱伝導性シリコーングリース組成物を厚さ 1 mm となるように塗布し、150、240 時間加熱後、熱伝導性シリコーングリース組成物をペーパーで拭き取り、S U S 3 0 4 板上に熱伝導性シリコーングリース組成物の痕跡が全く残らない場合を、わずかに痕跡が残る場合を、痕跡が残る場合を ×、として評価した。

【 0 0 3 1 】

[実施例 1]

式：

【 化 7 】



(式中、p は粘度が $2,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ となる値)

10

20

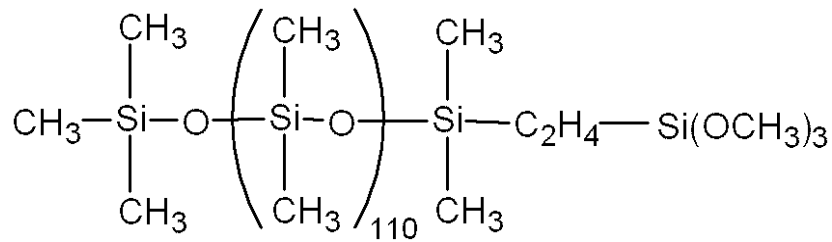
30

40

50

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

【化 8】



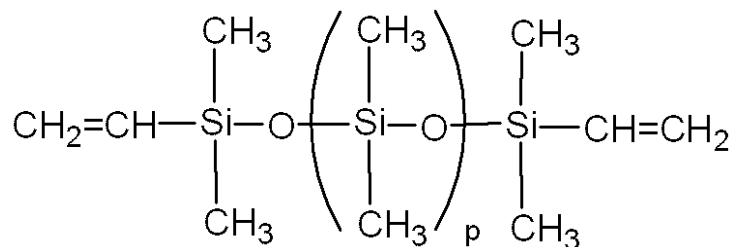
で表されるジメチルポリシロキサン 30 質量部、平均粒子径 20 μm の球状酸化アルミニウム粉末 550 質量部、平均粒子径 3 μm の球状酸化アルミニウム粉末 520 質量部、平均粒子径 0.4 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 220 質量部、ヘキサメチルジシラザンで表面を疎水化処理した BET 比表面積 200 m²/g のヒュームドシリカ 4 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 10 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコングリース組成物を調製した。

【0032】

[実施例 2]

式：

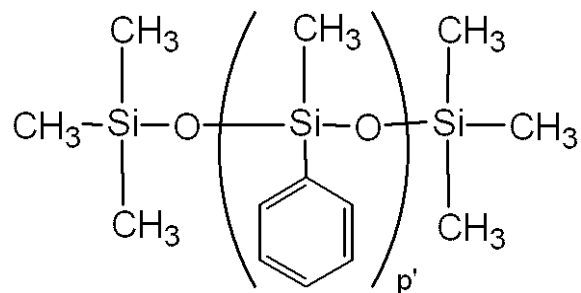
【化 9】



(式中、p は粘度が 400 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

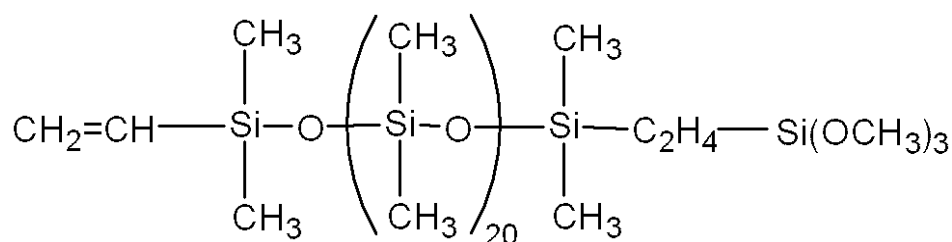
【化 10】



(式中、p' は粘度が 100 mPa・s となる値)

で表されるメチルフェニルポリシロキサン 20 質量部、式：

【化 11】



で表されるジメチルポリシロキサン 250 質量部、平均粒子径 50 μm の球状酸化アルミニウム粉末 3,400 質量部、平均粒子径 3 μm の球状酸化アルミニウム粉末 1,500 質

10

20

30

40

50

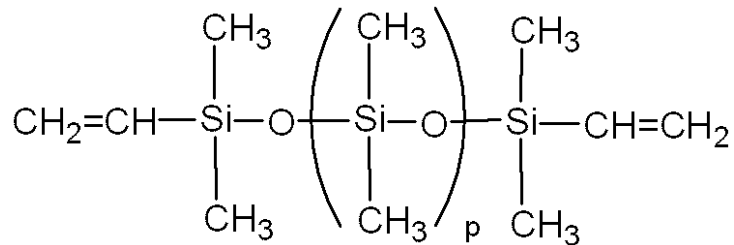
量部、平均粒子径 $0.4 \mu\text{m}$ の粉碎状酸化アルミニウム粉末 600 質量部、ヘキサメチルジシラザンで表面を疎水化処理した BET 比表面積 $200 \text{ m}^2/\text{g}$ のヒュームドシリカ 15 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 10 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、 150°C で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコングリース組成物を調製した。

【0033】

[実施例 3]

式：

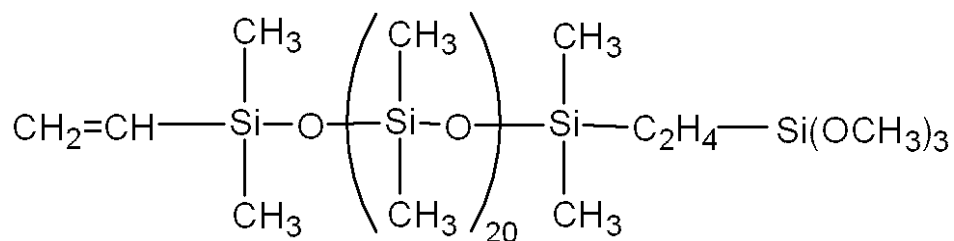
【化 12】



10

(式中、 p は粘度が $50,000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ となる値)
で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

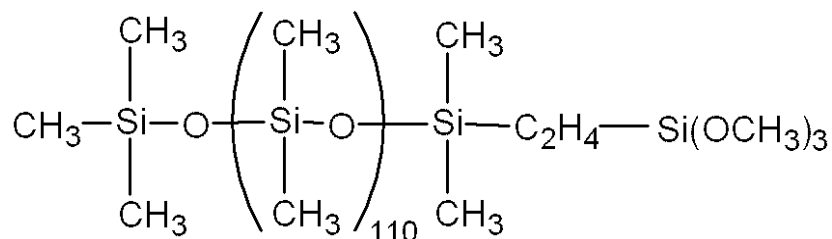
【化 13】



20

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

【化 14】



30

で表されるジメチルポリシロキサン 150 質量部、平均粒子径 $20 \mu\text{m}$ の球状酸化アルミニウム粉末 3,000 質量部、平均粒子径 $4 \mu\text{m}$ の球状酸化アルミニウム粉末 1,200 質量部、平均粒子径 $0.4 \mu\text{m}$ の微細酸化アルミニウム粉末 500 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 30 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、 150°C で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコングリース組成物を調製した。

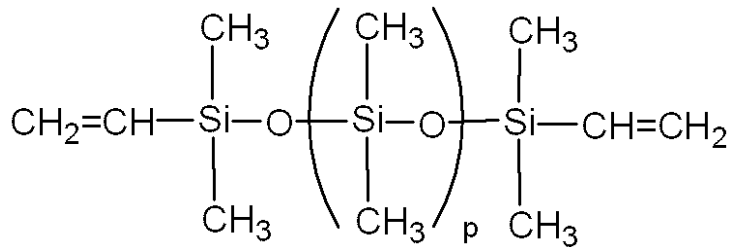
40

【0034】

[実施例 4]

式：

【化 1 5】

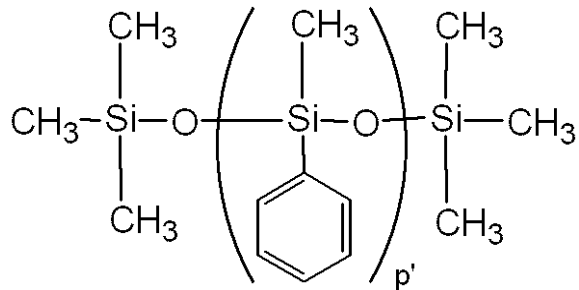


(式中、p は粘度が 400 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

10

【化 1 6】

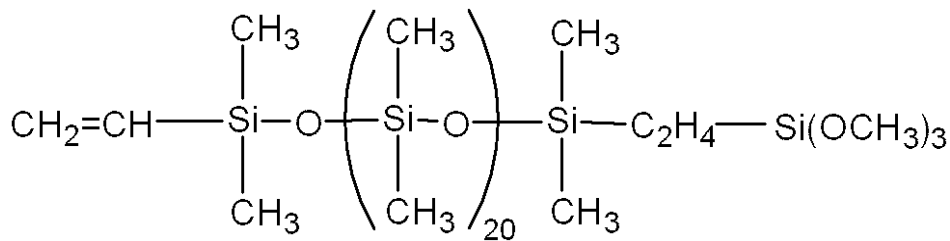


(式中、p' は粘度が 100 mPa・s となる値)

で表されるメチルフェニルポリシロキサン 60 質量部、式：

20

【化 1 7】



で表されるジメチルポリシロキサン 200 質量部、平均粒子径 20 μm の球状酸化アルミニウム粉末 2,800 質量部、平均粒子径 3 μm の球状酸化アルミニウム粉末 1,200 質量部、平均粒子径 0.4 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 600 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 15 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコングリース組成物を調製した。

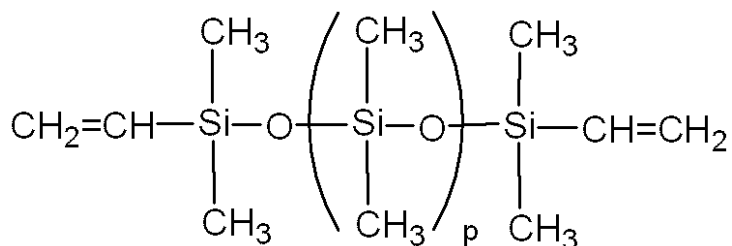
30

【0035】

[比較例 1]

式：

【化 1 8】

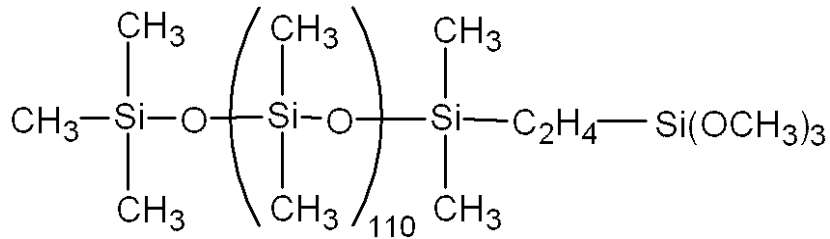


(式中、p は粘度が 2,000 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

40

【化 1 9】



で表されるジメチルポリシロキサン 30 質量部、平均粒子径 18 μm の丸み状酸化アルミニウム粉末 550 質量部、平均粒子径 3 μm の丸み状酸化アルミニウム粉末 520 質量部、平均粒子径 0.4 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 220 質量部、ヘキサメチルジシラザンで表面を疎水化処理した BET 比表面積 200 m²/g のヒュームドシリカ 4 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 10 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコーングリース組成物を調製した。

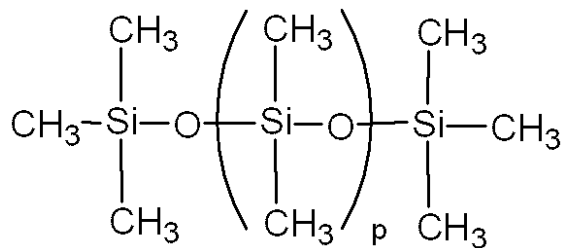
10

【0036】

[比較例 2]

式：

【化 20】

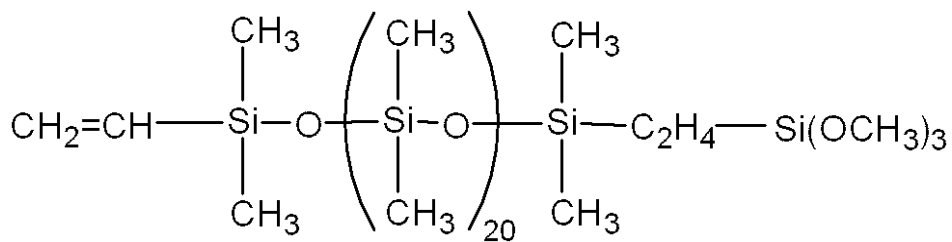


20

(式中、p は粘度が 300 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

【化 21】



30

で表されるジメチルポリシロキサン 30 質量部、平均粒子径 3 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 700 質量部、およびメチルトリメトキシシラン 10 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコーングリース組成物を調製した。

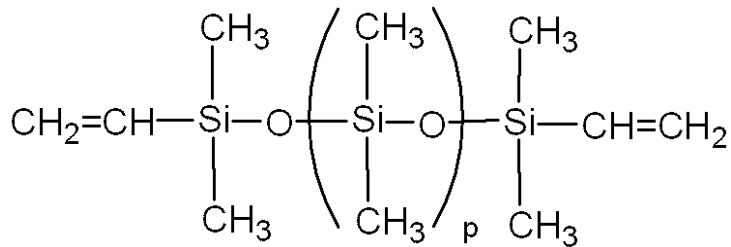
40

【0037】

[比較例 3]

式：

【化 2 2】

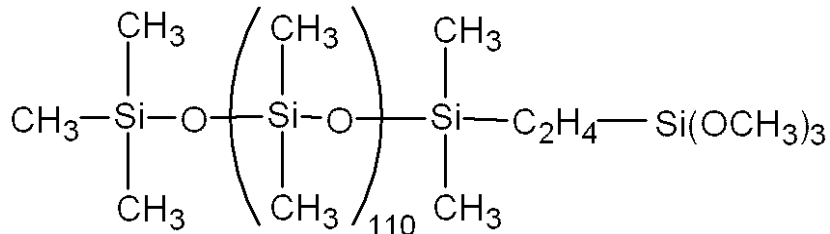


(式中、p は粘度が 400 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、式：

10

【化 2 3】



で表されるジメチルポリシロキサン 50 質量部、平均粒子径 18 μm の丸み状酸化アルミニウム粉末 1,140 質量部、平均粒子径 4 μm の丸み状酸化アルミニウム粉末 380 質量部、および平均粒子径 0.4 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 380 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合した。その後、室温まで冷却して熱伝導性シリコングリース組成物を調製した。

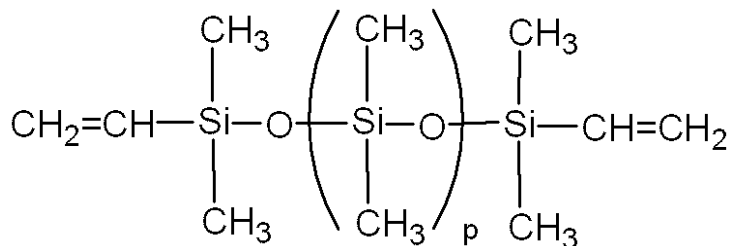
20

【0038】

[比較例 4]

式：

【化 2 4】



30

(式中、p は粘度が 400 mPa・s となる値)

で表されるジメチルポリシロキサン 100 質量部、平均粒子径 20 μm の球状酸化アルミニウム粉末 2,000 質量部、平均粒子径 3 μm の球状酸化アルミニウム粉末 880 質量部、平均粒子径 0.4 μm の粉碎状酸化アルミニウム粉末 350 質量部、メチルフェニルポリシロキサン 20 重量部、およびメチルトリメトキシシラン 50 質量部を室温で 30 分間予備混合した後、減圧下、150 で 60 分間加熱混合しようとしたが、均一な熱伝導性シリコングリース組成物を調製することは困難であった。

40

【0039】

【表 1】

| 項目 | 区分 | 実施例 | | | | 比較例 | | |
|-------|---------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | | 1 | 2 | 3 | 4 | 1 | 2 | 3 |
| 粘度 | (Pa・s) | 315 | 200 | 340 | 180 | 350 | 100 | 420 |
| 熱伝導性 | (W/m・K) | 2.9 | 4.8 | 4.5 | 4.2 | 2.9 | 1.8 | 4.4 |
| 動摩擦係数 | | 0.5 | 0.4 | 0.6 | 0.4 | 1.0 | 0.5 | 1.5 |
| 拭き取り性 | | ○ | ◎ | ○ | ◎ | × | ○ | × |

【産業上の利用可能性】

10

【0040】

本発明の熱伝導性シリコングリース組成物は、高熱伝導率を有し、取扱作業性が優れ、摩擦係数が小さいので、定量吐出装置等を用いて塗布しても、該組成物に異物の混入のおそれがないので、例えば、発熱性素子を搭載した電子部品、高温下に曝される車載用電子部品等に適用可能である。

 フロントページの続き

| | | | |
|---------------------------------|--|----------------|---|
| (51)Int.Cl. | | F I | |
| <i>C 0 9 K 5/08 (2006.01)</i> | | C 0 9 K 5/00 | E |
| <i>C 1 0 M 107/50 (2006.01)</i> | | C 1 0 M 107/50 | |
| <i>C 1 0 M 125/10 (2006.01)</i> | | C 1 0 M 125/10 | |
| <i>C 1 0 M 113/12 (2006.01)</i> | | C 1 0 M 113/12 | |

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

| | |
|---------|-------------|
| C 0 8 L | 8 3 / 0 7 |
| C 0 8 G | 7 7 / 2 0 |
| C 0 8 K | 3 / 2 2 |
| C 0 8 K | 3 / 3 6 |
| C 0 8 K | 5 / 5 4 1 9 |
| C 0 9 K | 5 / 0 8 |
| C 1 0 M | 1 0 7 / 5 0 |
| C 1 0 M | 1 1 3 / 1 2 |
| C 1 0 M | 1 2 5 / 1 0 |