

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：97 1379 93

※ 申請日期：97.10.02

※IPC 分類：C08L 83/08 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

08L 83/08 (2006.01)

可固化矽酮組合物及其固化物

CURABLE SILICONE COMPOSITION AND CURED PRODUCT
THEREOF

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

日本商道康寧東麗股份有限公司

DOW CORNING TORAY CO., LTD.

代表人：(中文/英文)

小林 愈

KOBAYASHI, MASARU

住居所或營業所地址：(中文/英文)

日本國東京都千代田區丸之內一丁目1番3號

1-3, MARUNOUCHI 1-CHOME, CHIYODA-KU, TOKYO, 100-0005,
JAPAN

國 籍：(中文/英文)

日本 JAPAN

三、發明人：(共 2 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 森田 好次

MORITA, YOSHITSUGU

2. 植木 浩

UEKI, HIROSHI

國 籍：(中文/英文)

1. 日本 JAPAN

2. 日本 JAPAN

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 日本；2007年10月16日；特願2007-269034

2.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.

2.

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種可固化矽酮組合物及經固化該組合物得到的一種固化物。

【先前技術】

包含熱傳導填料及用作可有效傳輸電子裝置產生的熱量之膠黏劑與密封劑的可固化環氧樹脂組合物在技術中為已知。通常，可固化環氧樹脂組合物製造具有高彈性模數及因此高硬度的固化物。如日本未審查專利公開案(以下稱 "Kokai") H05-295084與 Kokai H07-53870所揭示，其提出藉由結合包含環氧基的有機聚矽氧烷之可固化環氧樹脂組合物解決此問題。但是，此等組合物之使用係有限的，因其製造的固化物係仍堅硬、可撓性不足，且易彎曲或破裂，或脫層並在其與電子裝置表面之間產生缺口。

另一方面，Kokai H05-320514與 Kokai 2005-154766揭示包含固化劑與包含環氧基的有機聚矽氧烷之可固化矽酮組合物。由此等組合物得到的固化物係柔軟的，但仍具有高熱膨脹係數或低彈性強度及低彈性模數。Kokai 2006-306953揭示一種包含熱傳導填料之可固化矽酮組合物。但是，欲得到高導熱率之固化物，組合物應包含大量熱傳導金屬粉末，尤其係銀粉。另外，由此組合物得到的固化物具有較差膠黏性。

本發明之目的係提供一種可固化矽酮組合物，其與低黏度結合具有極佳可操作性及可使用性，且當經固化時，形

成具有極佳彈性、膠黏性與導熱性之固化體。

【發明內容】

本發明可固化矽酮組合物包含：

(A)一分子中具有至少兩個環氧基之液態有機聚矽氧烷；

(B)包含與環氧基反應之基團的化合物；

(C)一種熱傳導填料；及

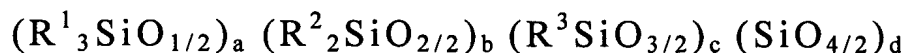
(D)一種矽酮粉末。

本發明固化物的特徵在於可由固化上述組合物而得到。

本發明之可固化矽酮組合物結合低黏度具有極佳可操作性及可使用性，且當經固化時，形成具有極佳彈性、膠黏性與導熱性之固化體。本發明之固化體係可撓性及具有極佳膠黏性與高導熱率。

【實施方式】

組成組分(A)的有機聚矽氧烷為組合物的主要組分。就該組分無特定限制，只要該組分一分子包含至少兩個環氧基團。有機聚矽氧烷較佳係由以下平均單元式(1)表示：



在該分子式中， R^1 、 R^2 、與 R^3 可相同或不同，及代表經鹵素取代或未經取代的一價烴基或包含環氧基的一價有機基團。上述一價烴基可藉由甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、或類似烷基；乙烯基、烯丙基、丁烯基、戊烯基、己烯基、或類似烯基；苯基、甲苯基、二甲苯基或類似芳基；苯甲基、苯乙基、或類似芳烷基；氯甲基、3,3,3-三

氟丙基、或類似鹵化烷基舉例。以烷基及芳基為較佳，尤其係甲基與苯基。包含環氧基的一價有機基團可藉由2-環氧丙氧乙基、3-環氧丙氧丙基、4-環氧丙氧丁基或類似環氧丙基氧烷基(glycidoxyalkyl groups)；2-(3,4-環氧環己基)乙基、3-(3,4-環氧環己基)丙基、2-(3,4-環氧-3-甲基環己基)-2-甲乙基或類似環氧環烷基烷基；或4-環氧乙烷丁基、8-環氧乙烷辛基或類似環氧乙烷烷基舉例。最佳係環氧丙基氧烷基與環氧環烷基烷基，尤其係3-環氧丙氧丙基與2-(3,4-環氧環己基)乙基。在上述分子式中，以 R^1 、 R^2 與 R^3 指定的基團中至少兩個係包含環氧基的一價有機基團。

且，在上述分子式中， R^3 所指定的20莫耳%或更多，較佳係50莫耳%或更多，及最佳係80莫耳%或更多基團為芳基。如果 R^3 所指定的基團中芳基含量係小於推薦的下限，其將削弱與組分(B)的混合性或削弱由組合物得到的固化物之膠黏性與機械強度。 R^3 所指定的芳基最佳係苯基。

在以上分子式中，"a"、"b"、"c"與"d"為滿足以下條件的數值：

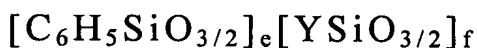
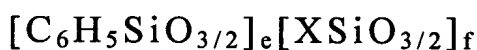
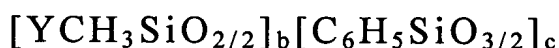
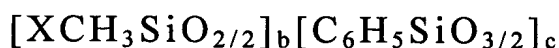
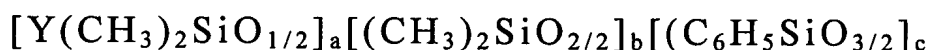
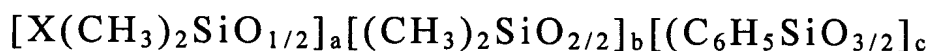
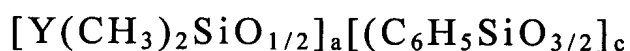
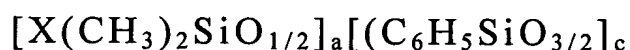
$$0 \leq a \leq 0.8 ; 0 \leq b \leq 0.8 ; 0.2 \leq c \leq 0.9 ; 0 \leq d < 0.8 ; \text{及 } [a+b+c+d]=1。$$

文中，"a"為表示分子式 $R^1_3SiO_{1/2}$ 所示的矽氧烷單元之比率的數值。但是，如果組分(A)僅由 $R^3SiO_{3/2}$ 單元組成，組合物將變得太黏稠及很難處理與加工。因此，建議"a"滿足以下條件： $0 < a \leq 0.8$ ，及較佳係以下條件： $0.3 \leq a \leq 0.8$ 。在上述分子式中，"b"為表示分子式 $R^2_2SiO_{2/2}$ 所示的矽氧烷單元之比率的數值。欲阻止此組分從所得預確定分子量之

固化物中滲出及得到具有極佳機械強度的物品，建議將 "b" 值保持在以下界限內： $0 \leq b \leq 0.6$ 。在以上分子式中，"c" 為表示分子式 $R^3SiO_{3/2}$ 所示的矽氧烷單元之比率的數值。欲提供組合物良好可操作性與可使用性及得到具有良好膠黏性、機械強度與可撓性之固化物，"c" 值應在以下界限內： $0.4 \leq c \leq 0.9$ 。在以上分子式中，"d" 為表示分子式 $SiO_{4/2}$ 所示的矽氧烷單元之比率的數值。欲提供組合物良好可操作性與可使用性及得到具有良好膠黏性、機械強度與可撓性之固化物，"d" 值應在以下界限內： $0 \leq d < 0.2$ 。

對於組分(A)無特別限制，只要其在室溫下係液體。但是，建議該組分在 $25^{\circ}C$ 下具有 10 至 1,000,000 mPa·s 之黏度及較佳係在 100 至 100,000 mPa·s 之間。如果黏度低於建議下限，此將削弱所得到固化物之機械強度與可撓性。另一方面，如果黏度超過建議上限，此將削弱所得到組合物之可操作性與可使用性。雖然對於組分(A)的質量-平均分子量無特別限制，但建議此特徵係於 500 至 10,000 之間及較佳於 750 至 3,000 之間。對於可存在於組分(A)中之環氧基含量無特別限制，但建議此組分的環氧基當量(即，該組分的質量-平均分子量與一分子中所含環氧基數目之比率)係於 100 至 2,000 之間，較佳係於 100 至 1,000 之間，最佳係於 100 至 700 之間。如果環氧數目小於建議下限，此將削弱所得到固化物的機械強度與可撓性。另一方面，如果環氧數目超過建議上限，此將削弱組合物的可塑性，及減小固化物的膠黏性與機械強度。

組分(A)為一種可藉由如下分子式表示的化合物舉例說明的有機聚矽氧烷，其中"a"、"b"、"c"及"d"具有先前定義的相同意思，但是，"a"與"b"不能為0；且"e"與"f"為滿足以下條件的數值： $0.1 < e < 0.8$ ； $0 < f < 0.2$ ； $0.2 \leq (e+f) \leq 0.9$ ；及 $0.2 \leq e/(e+f)$ 。在以下分子式中，"X"代表3-環氧丙氧丙基，及"Y"代表2-(3,4-環氧環己基)乙基。



對於製備組分(A)之方法無特別限制。例如，該組分可藉由以下方法得到：共水解及濃縮苯基三烷氧基矽烷與包含含環氧基的一價有機基團之烷氧基矽烷(例如，3-環氧丙氧丙基三甲氧基矽烷或2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷)；脫醇及濃縮上述包含含環氧基的一價有機基團之烷氧基矽烷與藉由水解及濃縮苯基三氯矽烷或苯基烷氧基矽烷所製得含矽醇的有機聚矽氧烷；在二甲基氯矽烷或包含結合矽的氫原子之類似矽烷的存在下，矽氫化包含含環

氧基的一價有機基團之烯烴與藉由共水解及濃縮苯基三氯矽烷或苯基三烷氧基矽烷獲得具有結合矽的氫原子之有機矽氧烷；進行藉由水解與濃縮苯基三烷氧基矽烷或苯基三氯矽烷得到的有機聚矽氧烷與二甲基矽氧烷與兩分子末端經三甲基矽氧基封端的甲基(3-環氧丙氧丙基)矽氧烷之共聚物之間的平衡反應，該反應係在鹼性觸媒的存在下進行；在鹼性觸媒之存在下，進行由 $C_6H_5SiO_{3/2}$ 單元組成的有機聚矽氧烷與環甲基(3-環氧丙氧丙基)矽氧烷或環甲基{2-(3,4-環氧環己基)乙基}矽氧烷之間的平衡反應；或在酸性或鹼性觸媒的存在下，進行由 $C_6H_5SiO_{3/2}$ 單元組成的有機聚矽氧烷與環甲基(3-環氧丙氧丙基)矽氧烷或環甲基{2-(3,4-環氧環己基)乙基}矽氧烷與環聚二甲基矽氧烷之間的平衡反應。

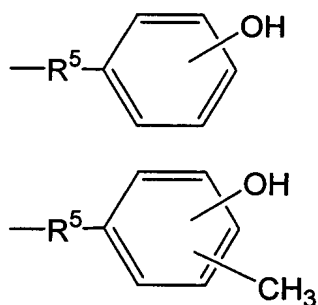
組分(B)為一種包含可與環氧基反應的基團及用於固化組合物之化合物。與環氧基反應的組分(B)之基團可藉由第一胺基、第二胺基、羥基、酚羥基、羧基、酞基、氫硫基或矽醇基舉例。鑑於反應性與使用時間的觀點，最佳係使用酚羥基。更準確而言，組分(B)可包含一種包含酚羥基之化合物。此等化合物之具體實例為以下各者：酚-酚醛樹脂、甲酚-酚醛樹脂、雙酚-A型化合物或類似酚樹脂；及一種包含酚羥基的有機聚矽氧烷。鑑於固化物之獲改善可撓性的觀點，建議使用一分子具有至少兩個酚羥基之有機聚矽氧烷。對於可包含於組分(B)的酚羥基含量無特定限制，但建議酚基當值(其為該組分之質量-平均分子

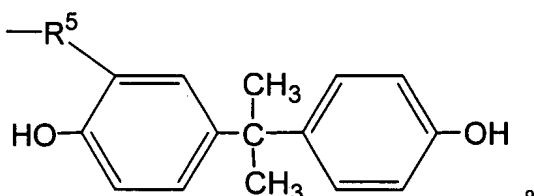
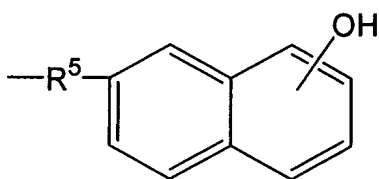
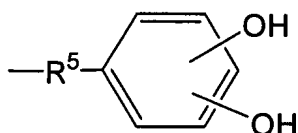
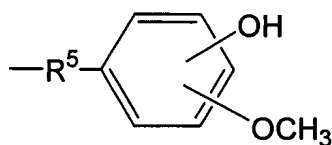
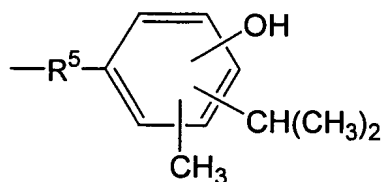
量與一分子中酚羥基量之比)不超過1,000，為較佳反應性，其不超過500。

組分(B)可為由以下通式表示的有機矽氧烷：

$$R^4_3SiO(R^4_2SiO)_m SiR^4_3。$$

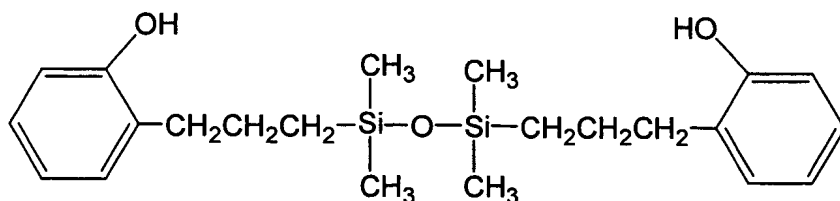
在該分子式中， R^4 係相同或不同，及表示經鹵素取代或未經取代的一價烴基或包含酚羥基的一價有機基團。在每個分子中， R^4 所指定的至少兩個基團應包含酚羥基。一價烴基可藉由甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基或類似烷基；環戊基、環己基、環庚基或類似環烷基；苯基、甲苯基、二甲苯基或類似芳基；苯甲基、苯乙基、苯丙基或類似芳烷基；3-氯丙基、3,3,3-三氯丙基或類似鹵化烷基舉例。最佳係烴基與芳基，尤其係甲基與苯基。在上述分子式中，包含酚羥基的一價有機基團係列於下及如分子式所示，其中 R^5 代表二價有機基團：伸乙基、甲基伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基或類似伸烷基；或伸乙氧基伸乙基、伸乙氧基伸丙基、伸乙氧基伸丁基、伸丙氧基伸丙基或類似伸烷氧基伸烷基。最佳係伸烷基，尤其係伸丙基。

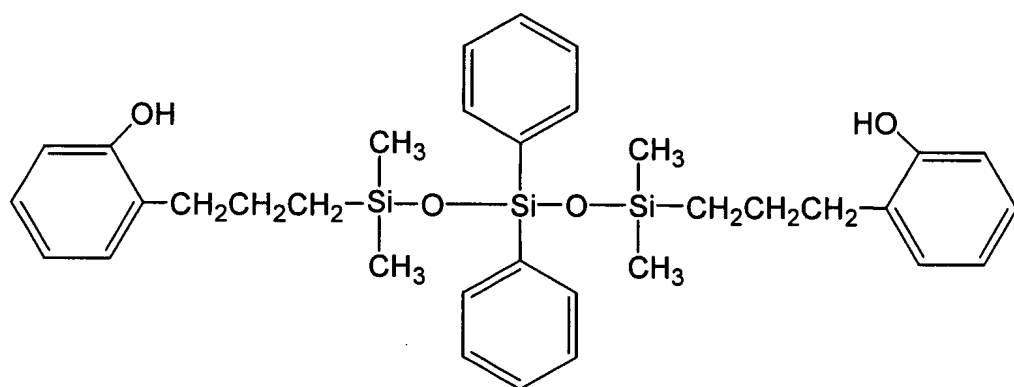
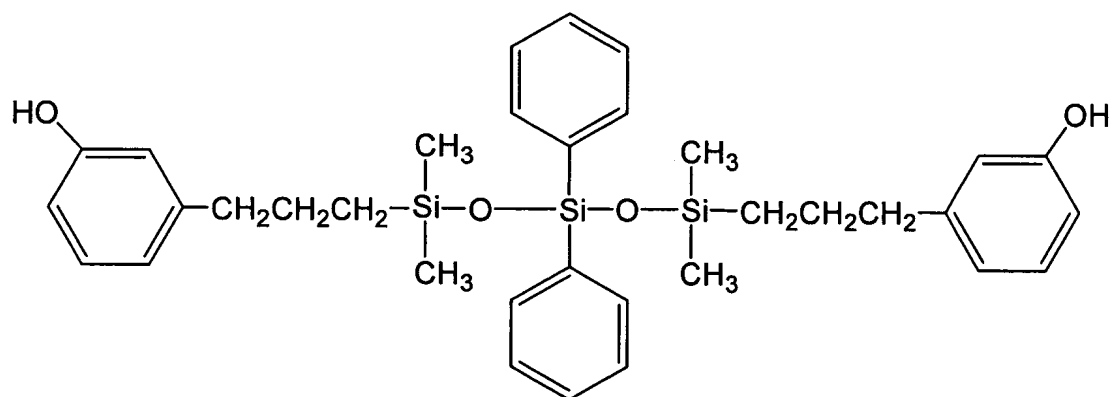
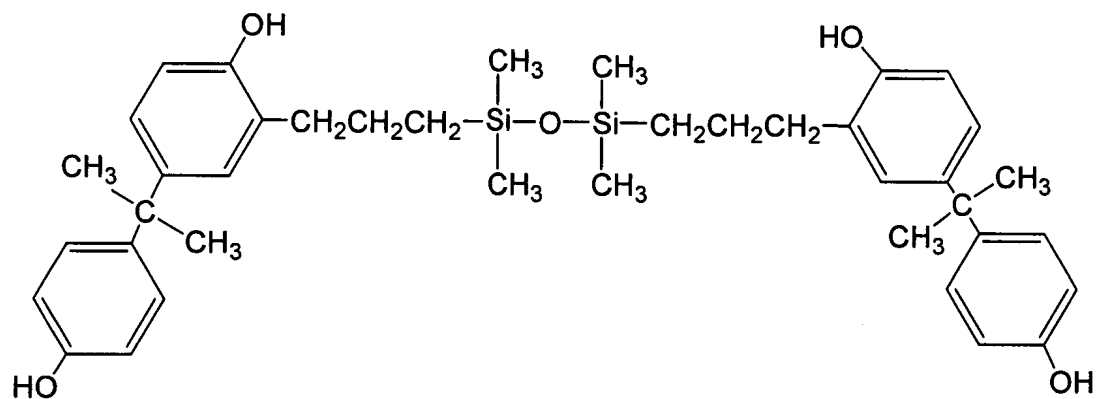
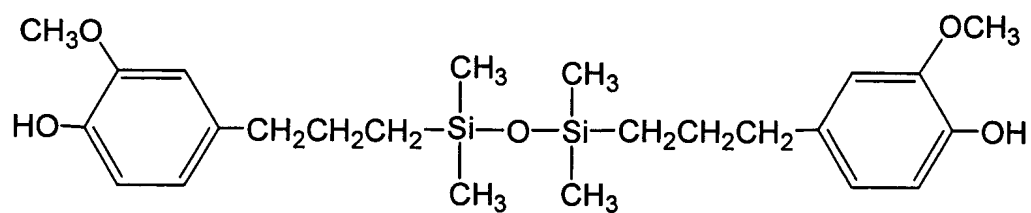
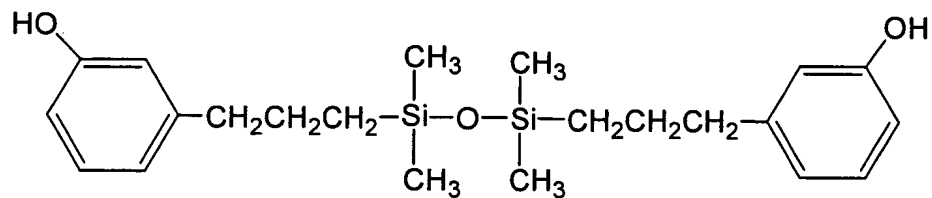


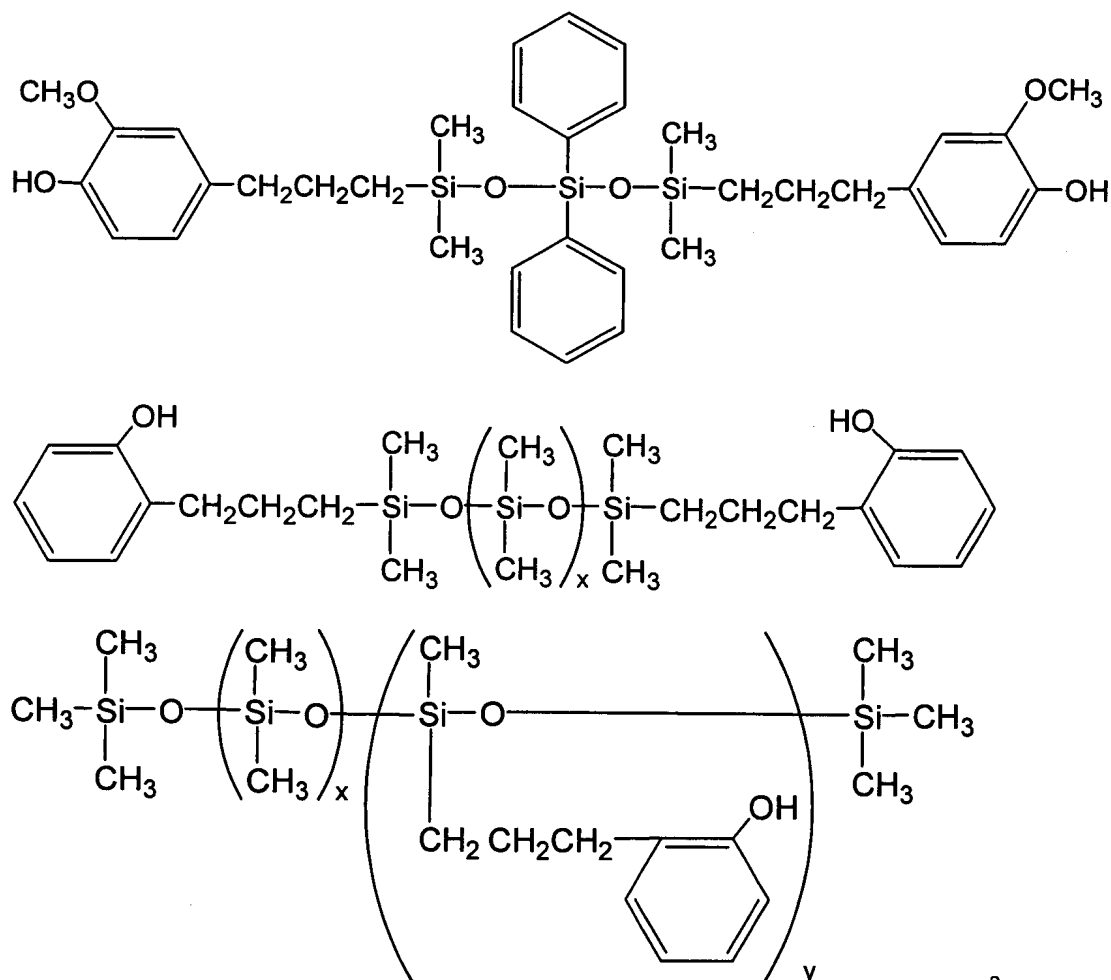


且，在以上分子式中，"m"為0至1,000之間，較佳係0至100之間，最佳係0至20之間的整數。如果"m"超過建議上限，此將削弱組分(B)與組分(A)的混合性及阻礙組合物的可操作性與可使用性。且，需要更大量的溶劑以稀釋組合物。

可用作組分(B)的有機聚矽氧烷係由以下結構式化合物舉例，其中"x"為1至20之間的整數，及"y"為2至10之間的整數：







對適於製備組分(B)之方法無特定限制。但是，建議藉由包含烯基的酚化合物與包含結合矽的氫原子之有機矽氧烷間的矽氫化反應製備該組分。

對於組分(B)在25°C下的狀態無特定限制，及該組分係呈液態或固態，但鑑於操作方便性的觀點，以液態為較佳。當組分(B)在25°C下為液態時，建議其具有1至1,000,000 mPa·s之間，較佳係10至5,000 mPa·s間之黏度。此係因為黏度低於建議下限可減少由組合物得到的固化物之機械強度。另一方面，如果黏度超過建議上限，此將削弱組合物的可操作性與可使用性。

對於加入組合物的組分(B)含量無特定限制。但是，建

議該組分之添加量為每100質量份之組分(A)0.1至500質量份，及較佳係0.1至200質量份。如果組分(B)包含酚羥基，建議包含於組分(B)中的酚羥基與包含於組合物中的所有環氧基之莫耳比係在0.2至5之間，較佳於0.3至2.5之間，及最佳於0.8至1.5之間。如果包含於組分(B)中的酚羥基與包含於組合物中的所有環氧基之莫耳比係小於建議下限，將很難提供組合物完全固化。另一方面，如果上述比率超過建議上限，此將明顯削弱由組合物得到的固化物之機械強度。

組分(C)為一種賦予固化物導熱性與耐火性之熱傳導填料。該組分可藉由如金、銀、銅、鎳、黃銅、形狀記憶合金、焊錫等金屬之金屬粉末；鍍有或經氣相沉積如金、銀、鎳、銅等金屬於陶器、玻璃、石英、有機樹脂等表面上之細粉；礬土、氧化鋅、氧化鎂、二氧化鈦、晶質二氧化矽或類似金屬氧化物粉末；氮化鋁、氮化硼或類似金屬氮化物粉末；碳化矽或類似金屬碳化物粉末；氫氧化鋁、氫氧化鎂或類似金屬氫氧化物粉末；碳奈米管、碳微纖維、金剛石、石墨或類似碳型粉末舉例。此等填料可兩種或多種組合。最佳係至少一種選自金、銀、銅及鎳之金屬粉末。對於組分(C)之顆粒形狀無特定限制，此等顆粒可經壓碎、無規則形狀、球形、纖維性的、桿狀、片狀、鱗狀或卷狀。鑑於模塑具有高導熱率之固化物的觀點，組分(C)應由銀粉組成，較佳係具有片形的顆粒。亦，對於組分(C)顆粒的尺寸無限制，但建議最大尺寸不超過200 μm

且顆粒平均尺寸係在0.001至50 μm 之間。

對於加入組合物的組分(C)之量無特定限制，但通常，添加量為每100質量份之組分(A)與(B)之和100至5,000質量份，較佳係500至5,000質量份，及最佳係500至4,000質量份。如果組分(C)的添加量低於建議下限，將很難賦予組合物之固化物足夠的導熱性。另一方面，如果添加量超過建議上限，組合物將失去流動性。

組分(D)的矽酮粉末係用於改善藉由固化本發明組合物所得到的固化物之膠黏性。對於可呈橡膠或樹脂形式的組分(D)形式無特定限制。但是，鑑於改善固化物可撓性的觀點，以橡膠狀形式為較佳。亦，對組分(D)顆粒的平均尺寸無特定限制，但建議該等顆粒的平均尺寸係於0.01至500 μm 之間，較佳係於0.01至100 μm 之間，及最佳係於0.01至50 μm 之間。如果平均粒度低於建議下限，將很難製備矽酮粉末，另一方面，如果平均粒度超過建議上限，將很難均勻分散粉末於組合物中。組分(D)最佳包含可與組分(A)或組分(B)反應的基團。此等反應性基團可藉由環氧基、胺基或烷氧基舉例，其中以環氧基為較佳。當組分(B)包含環氧基時，滴定法所測得的環氧當量最好小於10,000。如果矽酮粉末的環氧當量超過10,000，此將削弱粉末與組分(A)或組分(B)之反應。組分(D)的環氧當量係藉由均勻分散組分於鹽酸之二氧己環溶液中，使環氧基與鹽酸反應，及使過量鹽酸進行反滴定的方式測得。

組分(D)可由以下方法中之一種製得：分散可濃縮固化

或可矽氫化固化的矽酮組合物於水中；分散包含含環氧基的烷氧基矽烷之可矽氫化固化或可濃縮固化的矽酮組合物於水中；分散包含含胺基的烷氧基矽烷之可濃縮固化的矽酮組合物於水中；分散包含烯丙基縮水甘油醚，或類似含烯基環氧化合物的可矽氫化固化的矽酮組合物於水中；或藉由包含環氧基的烷氧基矽烷或包含胺基的烷氧基矽烷處理矽酮粉末表面。上述組分(D)亦可為購自Dow Corning Toray Co., Ltd.的Torefil® E-500、E-600、E-601、E-606等，其中最適合者係Torefil® E-601、包含環氧基的矽酮橡膠粉末。

對於加入組合物的組分(D)之量無特定限制，但為組合物不失去流動性，添加量將為每100質量份之組分(A)至(C)之和0.1至10質量份，較佳係0.5至5質量份，最佳係1至3質量份。如果組分(D)的添加量低於建議下限，將很難賦予組合物的固化物足夠膠黏性。另一方面，如果添加量超過建議上限，組合物將失去流動性及將很難操作與處理。

本發明組合物可與(E)一種固化加速劑之任意組分結合。組分(E)可藉由第三胺化合物、如鋁、鎢或類似物等金屬的金屬有機化合物；磷或類似磷化合物；以及雜胺化合物、硼錯合物、有機銨鹽、有機銻鹽、有機過氧化物或上述化合物的反應產物舉例。特定實例為以下各物：三苯基磷、三丁基磷、三(對-甲基苯基)磷、三(壬基苯基)磷、三苯基磷-三苯硼酸酯、四苯基磷-四苯硼酸酯或類似磷化合物；三乙胺、苯甲基二甲胺、 α -甲基苯甲基二甲胺、

1,8-二氮雜二環[5,4,0]十一碳烯-7或類似第三胺化合物；2-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑或類似咪唑化合物。鑑於延長組合物之使用時間的觀點，建議使用呈微膠囊形之固化加速劑。該微膠囊狀胺型固化加速劑之實例為包含胺型固化加速劑之雙酚-A型環氧樹脂(HX-3088, Asahi Kasei Corp.的產品)。

對於可加入組合物的組分(E)之量無限制，但可建議該組分的添加量以每100質量份之組分(A)至多50質量份，較佳係0.01至50質量份，及最佳係0.1至5質量份。如果組分(E)之含量低於建議下限，此將未有效加速固化。另一方面，如果組分(E)之含量超過建議上限，此將削弱固化物的機械強度。

為進一步改善固化物的機械強度，組合物可併入除組分(C)的另一種填料中。該填料可藉由玻璃纖維、由礬土與矽石組成的陶瓷纖維、硼纖維、氧化鋁纖維或類似纖維填料；熔融矽石、晶質矽石、沉積矽石、煙燻矽石、烘焙矽石、碳黑、玻璃珠、滑石、碳酸鈣、黏土、硫酸鋇、硫酸鈹、高嶺土、雲母、氧化鋁或類似粉狀填料舉例。上述填料可以兩種或多種組合使用。對於填料顆粒的尺寸與形狀無特定限制，但鑑於改善可塑性的觀點，最佳係使用具有0.1至40 μm 平均粒徑之球狀顆粒。對於加入組合物之填料量無特定限制，但建議該組分之添加量係以每100質量份之組分(A)至多10質量份，較佳係0.01至10質量份。

為改善組合物的可使用性，後者可與溶劑混合。該溶劑

係由二甲苯、甲基異丁基酮、二丙酮醇、正乙酸丁酯或丙二醇單甲基醚組成。最佳係以下溶劑：2-乙氧基醋酸乙酯、2-丁氧基醋酸乙酯、二乙二醇單乙醚醋酸酯、二乙二醇單丁醚醋酸酯(=卡必醇醋酸酯)、二乙二醇乙醚醋酸酯或二乙二醇丁醚醋酸酯。對於加入組合物之溶劑量無特定限制，但建議添加量不超過每100質量份之組分(A)與(B)質量之和的100質量份。

為改善組分(C)於組分(A)或(B)或組分(A)與(B)之混合物中之分散以及改善固化期間組合物對基材之附著，組合物可進一步與矽烷偶合劑、鈦酸鹽偶合劑或類似偶合劑結合。此矽烷偶合劑可藉由3-環氧丙氧丙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧丙基甲基二乙氧基矽烷、2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷或類似包含環氧基的烷氧基矽烷；N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-胺基丙基三乙氧基矽烷、N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷或類似包含胺基的烷氧基矽烷；3-巰丙基三甲氧基矽烷或類似包含巰基的烷氧基矽烷。鈦酸鹽偶合劑可藉由異丙氧基鈦三(異-異硬脂酸酯)代表。對用於組合物的此等偶合劑之量無特定限制，但建議其添加量係每100質量份之組分(A)至多10質量份，較佳係0.01至10質量份。

本發明組合物可藉由均勻混合組分(A)至(D)，如必要，與其他任意組分而製得。對於混合方法無特定限制。例如，組分(A)至(D)與(如必要)其他任意組分可同時混合；可預混合組分(A)與(C)，然後其混合物與組分(B)與(D)(如

必要)及其它任意組分合併及混合；或預混合組分(A)、(C)、(D)及(如必要)其他任意組分，然後其混合物可與組分(B)合併及混合。對於混合組分(A)至(D)(如必要)及其它任意組分可用之裝置無限制。用於製備組合物之裝置係藉由單-或雙-軸連續混合器、雙輥磨機、Ross[®]混合器、Hobart[®]混合器、牙科用混合器、行星式混合器或捏合機-混合器舉例。

因本發明組合物具有極佳可操作性與可使用性，其適於轉移成型、射出成型、罐裝、澆鑄、浸塗、逐滴施用等。藉由選擇如罐裝、絲網印刷或類似方法等的使用方法，可最小化組合物之消耗。

以下係更詳細說明本發明固化物。本發明固化物可藉由固化上述組合物得到。固化物係適於用作位於半導體裝置與熱輻射盤之間的熱轉移材料，或作為電氣及電子裝置的密封劑樹脂。尤其，鑑於其極佳導熱性、可撓性及抗焰性，固化物甚至可用作半導體裝置與熱輻射盤的膠黏劑。

實例

可固化矽酮組合物及由該組合物得到的固化物可進一步參考實際實例與比較實例更詳細說明。在此等實例中，黏度值相應於25°C。以下方法係用於測量可固化矽酮組合物與固化物之性質。

[可固化矽酮組合物之黏度]

可固化矽酮組合物之黏度係藉由具有平行板幾何結構的Rheometer AR550 (TA-Instruments Corp.的產品)，200 μm

之樣品厚度及1/秒或10/秒的剪切速率量得。

[熱阻]

可固化矽酮組合物係夾在兩矽片(7 mm×7 mm×0.75 mm)之間以使組合物層的厚度變得等於50 μm，然後組合物於熱氣循環爐中130℃下加熱1小時而固化。其後，該產物於熱氣循環爐中180℃下再經後固化2小時。因此，得到測量熱阻的樣品。該樣品的熱阻係藉由Hitachi Ltd之熱阻測量儀器所量得。所得結果被認為係本發明固化物的熱阻。

[膠黏性]

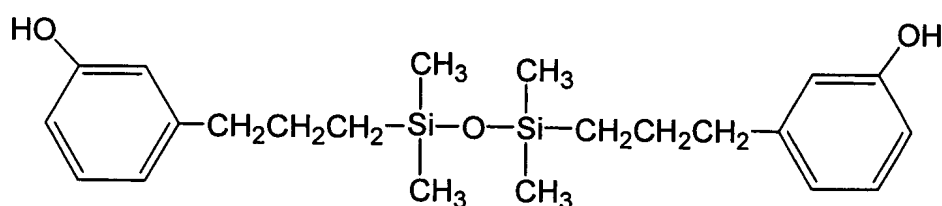
測試件係經由50 μm厚之可固化矽酮組合物層將矽片(10 mm×10 mm)黏附於鎳或鋁板，然後於150℃加熱該組件1小時以固化組合物而形成。在25℃下，以50 mm/min之剪切速率於膠接檢測儀(MODEL-SS0100KP, Seishin Trading Co., Ltd.之產品)上測量所得測試件之抗剝離強度(kgf/cm²)。

[固化物彈性之複合模數]

可固化矽酮組合物係在70 mmHg壓力下消泡並注入模具之10 mm寬、50 mm長及2 mm深之洞中。然後使組合物在130℃及2.5 MPa之壓力下接受壓力固化60 min。然後，該產物於烘箱中150℃下接受第二次加熱2小時。因此，得到固化物。所得樣品係藉由ARES-型黏度彈性儀(RDA700, RHEOMETRIC Scientific Co., Inc.之產品)的使用在0℃與50℃之溫度下以0.05%扭轉及1 Hz頻率用於測量複合彈性係數。

[實際實例 1]

藉由混合以下組分製備可固化矽酮組合物：5.0質量份具有1,000之質量-平均分子量、9,630 mPa·s之黏度、345之環氧當量及由以下平均單元式 $[X(CH_3)_2SiO_{1/2}]_{0.4}[C_6H_5SiO_{3/2}]_{0.6}$ 表示的有機聚矽氧烷(其中X為3-環氧丙氧丙基)；4.0質量份具有3,050 mPa·s之黏度及由以下結構式表示的有機聚矽氧烷：

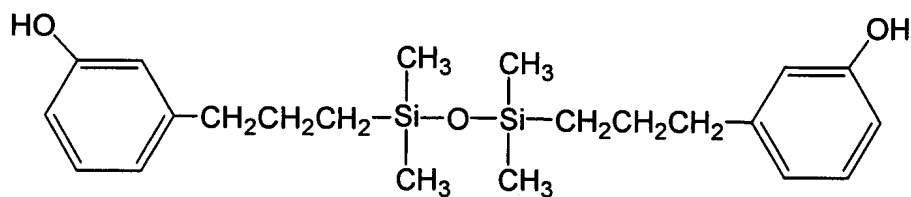


1.0質量份之微膠囊型胺觸媒(HX-3941HP; Asahi Kasei Corp之產品；胺含量係40質量%)；90質量份之片型銀粉(Fukuda Metal Foil & Powder Co., Ltd.之產品；平均粒徑：6.4 μm ；敲密密度=4.6 g/cm³)；2質量份包含環氧基的矽酮橡膠粉末(Torefil[®] E-601; Dow Corning Toray Co., Ltd.之產品；環氧當量=5,000；平均粒徑係於1至5 μm 之間)；及5質量份之卡必醇醋酸酯。在真空消泡後組合物之黏度與固化物之彈性複合模數及膠黏性係在上述條件下測定。結果表示於表1中。

[實際實例 2]

藉由混合以下組分製備可固化矽酮組合物：3.9質量份具有1,000之質量-平均分子量、9,630 mPa·s之黏度、345之環氧當量及由以下平均單元式 $[X(CH_3)_2SiO_{1/2}]_{0.4}[C_6H_5SiO_{3/2}]_{0.6}$ 表示的有機聚矽氧烷(其中X為3-環氧丙氧丙基)；3.1質量

份具有 3,050 mPa·s 之黏度及由以下結構式表示的有機聚矽氧烷：



1.0 質量份之微膠囊型胺觸媒 (HX-3941HP; Asahi Kasei Corp 之產品；胺含量係 40 質量%)；90 質量份之片型銀粉 (Fukuda Metal Foil & Powder Co., Ltd. 之產品；平均粒徑：6.4 μm；敲密密度 = 4.6 g/cm³)；2 質量份包含環氧基的矽酮橡膠粉末 (Torefil[®] E-601; Dow Corning Toray Co., Ltd. 之產品；環氧當量 = 5,000；平均粒徑係於 1 至 5 μm 之間)；及 6 質量份之卡必醇醋酸酯。真空消泡後組合物之黏度與固化物之彈性複合模數及膠黏性係在上述條件下測定。結果係表示於表 1 中。

[對比實例 1]

藉由與實際實例 1 相同之方法製備熱傳導可固化矽酮組合物，除該組合物不包含含環氧基的矽酮橡膠粉末及卡必醇醋酸酯係以 4 質量份之量添加。組合物之性質係以如實際實例 1 相同的方式評估。結果係表示於表 1 中。

[對比實例 2]

藉由與實際實例 2 相同之方法製備熱傳導可固化矽酮組合物，除該組合物不包含含環氧基的矽酮橡膠粉末。組合物之性質係以如實際實例 1 相同的方式評估。結果係表示於表 1 中。

表 1

性質	實例	本發明		對比實例	
		實際 實例1	實際 實例2	對比 實例1	對比 實例2
黏度	(Pa·s)	31	34	18	17.5
熱阻	(°C/W)	0.12	0.11	0.14	0.10
膠黏性(kgf/cm ²):					
鎳片		11	13	12	7
鋁片		11	12	2	4
彈性複合模數 G*	(GPa)				
0°C		2.5	2.5	3.3	2.6
50°C		0.8	1.1	1.0	1.1

工業應用性

因本發明之可固化矽酮組合物具有低黏度及其特徵在於極佳可操作性與可使用性，其係適於轉移成型、射出成型、罐裝、澆鑄、浸塗、逐滴施用等。當固化組合物時，其形成具有極佳彈性、膠黏性及熱傳導性之固化物。因此，該產品可作為電氣及電子裝置的密封劑、射出成型劑、塗層劑、膠黏劑等。尤其，本發明組合物對於如鎳及鋁的難膠黏物質表現良好膠黏。因此，組合物可於電氣及電子裝置的熱傳導零件發現作為結構材料，尤其熱接合材料(TIM)之應用。

五、中文發明摘要：

一種可固化矽酮組合物，其包含：(A)一分子中具有至少兩個環氧基之液態有機聚矽氧烷；(B)包含與環氧基反應之基團的化合物；(C)一種熱傳導填料；及(D)一種矽酮粉末，較佳係包含環氧基的矽酮粉末；其具有極佳可操作性及可使用性同時具有低黏度，且當經固化時形成一種具有極佳彈性、膠黏性與導熱性之固化體。

六、英文發明摘要：

A curable silicone composition comprising: (A) a liquid organopolysiloxane having in one molecule at least two epoxy groups; (B) a compound containing groups react to the epoxy groups; (C) a thermally conductive filler; and (D) a silicone powder, preferably, an epoxy-containing silicone powder; possesses excellent handleability and workability in combination with low viscosity and that, when cured, forms a cured body of excellent elasticity, adhesiveness, and thermal conductivity.

十、申請專利範圍：

1. 一種可固化矽酮組合物，其包含：

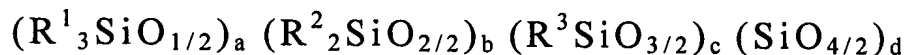
(A) 一分子中具有至少兩個環氧基之液態有機聚矽氧烷；

(B) 包含與環氧基反應之基團的化合物；

(C) 熱傳導填料；及

(D) 矽酮粉末。

2. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(A)係以下平均單元式(I)的有機聚矽氧烷：



(其中， R^1 、 R^2 與 R^3 可相同或不同，且代表經鹵素取代或未經取代的一價烴基或包含環氧基的一價有機基團；惟在一分子中， R^1 、 R^2 及 R^3 所指定基團中至少兩個為包含環氧基的一價有機基團，及 R^3 所代表基團的20莫耳%或更多為芳基；"a"、"b"、"c"與"d"為滿足以下條件的數值： $0 \leq a \leq 0.8$ ； $0 \leq b \leq 0.8$ ； $0.2 \leq c \leq 0.9$ ； $0 \leq d < 0.8$ ；且 $[a+b+c+d]=1$)。

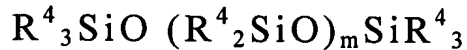
3. 如請求項2之可固化矽酮組合物，其中由平均單元式(I)表示的有機聚矽氧烷中包含環氧基的一價有機基團為環氧丙基氧烷基(glycidoxymethyl)或環氧環烷基烷基。

4. 如請求項2之可固化矽酮組合物，其中由平均單元式(I)表示的有機聚矽氧烷中"a"與"b"為滿足以下條件： $0 < a \leq 0.8$ 與 $b=0$ 的數值。

5. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(B)為包含酚

羥基的化合物。

6. 如請求項5之可固化矽酮組合物，其中組分(B)為一種一分子中具有至少兩個酚羥基之有機矽氧烷。
7. 如請求項6之可固化矽酮組合物，其中組分(B)為一種由以下通式(2)表示的有機矽氧烷：



(其中， R^4 係相同或不同，且表示經鹵素取代或未經取代的一價羥基或包含酚羥基的一價有機基團；惟在一分子中，至少兩個 R^4 為包含酚羥基的一價有機基團；且" m "為0至1,000之間的整數)。

8. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(B)的含量係每100質量份之組分(A)為0.1至500質量份。
9. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(C)為一種至少一種選自由金、銀、銅及鎳組成之群的金屬熱傳導填料。
10. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(C)的含量係每100質量份之組分(A)與(B)之和為100至5,000質量份。
11. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(D)為一種矽酮橡膠粉末。
12. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(D)為一種包含環氧基的矽酮粉末。
13. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(D)具有於0.01至500 μm 之間的平均粒徑。
14. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其中組分(D)的含量係

每100質量份之組分(A)至(C)之和為0.1至10質量份。

15. 如請求項1之可固化矽酮組合物，其進一步包含(E)一種
固化加速劑。

16. 一種固化物，其係藉由固化如請求項1至15中任一項之
可固化矽酮組合物而得。

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：(無)

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)