

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2015年2月5日(05.02.2015)



(10) 国際公開番号  
**WO 2015/016221 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*C08J 5/00* (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)  
*B29C 39/24* (2006.01) *H01L 23/373* (2006.01)  
*B29C 39/42* (2006.01) *B29K 21/00* (2006.01)  
*C08K 9/08* (2006.01) *B29K 103/04* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/069952
- (22) 国際出願日: 2014年7月29日(29.07.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2013-158652 2013年7月31日(31.07.2013) JP
- (71) 出願人: 住友理工株式会社(SUMITOMO RIKO COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 小瀬 峻久(KOSE Takahisa); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP). 中島 宏旭(NAKASHIMA Hiroaki); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP). 山岡 竜介(YAMAOKA Ryosuke); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP). 鈴木 智志(SUZUKI Satoshi); 〒4858550 愛知県小

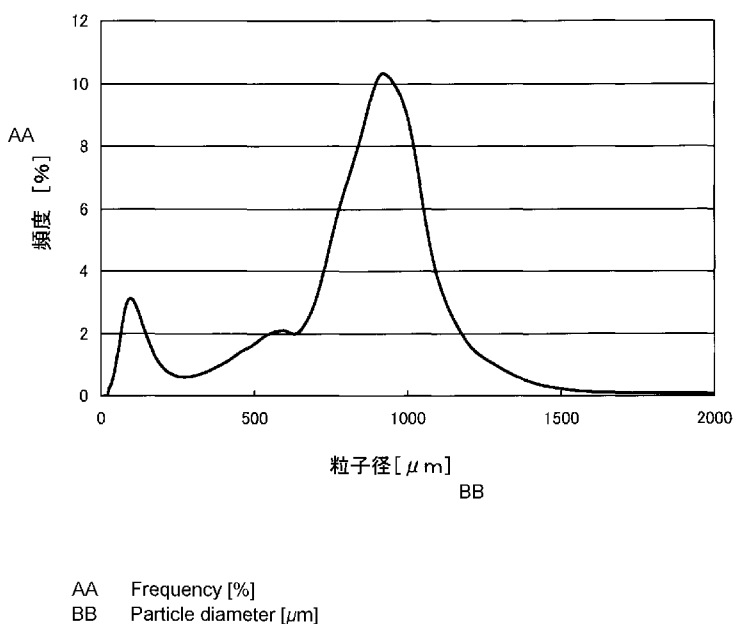
牧市東三丁目1番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP). 片山 直樹(KATAYAMA Naoki); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP).

- (74) 代理人: 東口 倫昭, 外(HIGASHIGUCHI Michiaki et al.); 〒4510051 愛知県名古屋市西区則武新町4-4-19 SG名古屋駅ビル402号室 東口特許事務所 Aichi (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, RW, 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.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,

[続葉有]

(54) Title: ELASTOMER MOLDED ARTICLE AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: エラストマー成形体およびその製造方法



(57) Abstract: An elastomer molded article comprises: a base material comprising an elastomer; and a powder of composite particles which is contained in the base material in an oriented state. The composite particles comprise: heat-conductive particles formed from a non-magnetic material; and magnetic particles attached onto the surfaces of the heat-conductive particles by a binder. The particle size distribution of the powder of the composite particles has two peaks, i.e., a peak appearing on a smaller particle diameter side and a peak appearing on a larger particle diameter side. A method for producing an elastomer molded article comprises: a composite particle powder preparation step of producing a powder of composite particles using a stirring granulator, and then sieving the powder of the composite particles to prepare a powder having a smaller particle diameter and a powder having a larger particle diameter; a mixed raw material preparation step of mixing the powder having a smaller particle diameter and the powder having a larger particle diameter of the composite particles with an elastomer raw material to prepare a mixed raw material; and a molding step

of placing the mixed raw material in a molding die to mold the mixed raw material under a magnetic field.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2015/016221 A1



NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))  
MR, NE, SN, TD, TG).

エラストマー成形体は、エラストマーからなる基材と、該基材中に配向して含有されている複合粒子の粉末と、を有する。複合粒子は、非磁性体からなる熱伝導性粒子と、該熱伝導性粒子の表面にバインダーにより接着された磁性粒子と、を含む。複合粒子の粉末の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有する。エラストマー成形体の製造方法は、攪拌造粒機を用いて複合粒子の粉末を製造し、該複合粒子の粉末を分級して小粒径粉末および大粒径粉末を準備する複合粒子粉末準備工程と、該複合粒子の該小粒径粉末および該大粒径粉末と、エラストマー原料と、を混合して混合原料を調製する混合原料調製工程と、該混合原料を成形型に配置して、磁場中で該混合原料を成形する成形工程と、を有する。

## 明 細 書

発明の名称： エラストマー成形体およびその製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導性が高いエラストマー成形体、およびその製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 電子機器には、CPU (Central Processing Unit) 等の発熱を伴う電子部品が使用される。電子部品の発熱が大きくなると、誤作動や製品寿命の低下を招くおそれがある。そこで、電子部品の温度上昇を抑制するために、熱伝導率が高い銅やアルミニウム製のヒートシンクが使用される。この際、電子部品とヒートシンクとの間には、電子部品において発生した熱をヒートシンクに効率良く伝達するために、熱伝達部材が介装される。電子部品において発生した熱は、熱伝達部材を介して、ヒートシンクの放熱面から放出される。例えば、特許文献1～5に開示されているように、熱伝達部材としては、高分子材料からなるマトリックス中に、熱伝導性フィラーが配合された成形体が用いられる。

### 先行技術文献

#### 特許文献

- [0003] 特許文献1：特開2003-321554号公報  
特許文献2：特開2009-51148号公報  
特許文献3：特開2011-35221号公報  
特許文献4：特開2013-79371号公報  
特許文献5：特開2011-225833号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

- [0004] 特許文献1に記載されているように、成形体の放熱性の向上を図るには、黒鉛等の熱伝導率の大きな粒子を配合すればよい。しかし、単に黒鉛を配合

しても、黒鉛同士を接触させて熱の伝達経路を形成することは難しい。例えば、熱の伝達経路を形成するため、黒鉛を多量に配合すると、成形体の硬度が高くなり、伸びが低下することで、柔軟性が損なわれるおそれがある。また、成形体の質量が増加する、コストがかさむといった問題も生じる。

[0005] 一方、特許文献2には、磁性粒子を配合して放熱性を向上させたウレタン発泡成形体が開示されている。ポリウレタンフォーム中に、磁性粒子を互いに接続した状態で配向させると、磁性粒子の配向方向に熱の伝達経路が形成される。これにより、ウレタン発泡成形体の放熱性は向上する。しかし、磁性粒子として配合される鉄やステンレス鋼の熱伝導率は、黒鉛より小さい。したがって、磁性粒子を配向させただけでは、放熱性の向上効果は充分ではない。

[0006] これらの問題を解決するため、特許文献4、5には、熱伝導性粒子の表面に磁性粒子が接着された複合粒子を基材に配合した成形体が、開示されている。当該成形体においては、磁性粒子の磁場配向を利用して、熱伝導率の大きな熱伝導性粒子を配向させる。配向した熱伝導性粒子（複合粒子）が線状に連なることにより、基材中に熱の伝達経路が形成される。これにより、成形体の放熱性を向上させることができる。

[0007] しかしながら、本発明者がさらに検討を重ねたところ、成形体の熱伝導率を大きくするために、複合粒子の充填率（成形体における複合粒子の体積割合）を高くしていくと、ある充填率を境にして、熱伝導率が小さくなってしまふことがわかった。この理由は、複合粒子の充填率を高くすると、成形時に複合粒子同士が干渉し合い、配向性が損なわれてしまうためと考えられる。

[0008] 本発明は、このような実情に鑑みてなされたものであり、熱伝導性フィラーとして配合される複合粒子の配向性を損なうことなく、熱伝導性をより向上させたエラストマー成形体を提供することを課題とする。また、その製造方法を提供することを課題とする。

**課題を解決するための手段**

[0009] (1) 上記課題を解決するため、本発明のエラストマー成形体は、エラストマーからなる基材と、該基材中に配向して含有されている複合粒子の粉末と、を有し、該複合粒子は、非磁性体からなる熱伝導性粒子と、該熱伝導性粒子の表面にバインダーにより接着された磁性粒子と、を含み、該複合粒子の粉末の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有することを特徴とする。

[0010] 本発明のエラストマー成形体は、配向した複合粒子の粉末を有する。複合粒子のコアをなす熱伝導性粒子は、大きな熱伝導率を有する。熱伝導性粒子自身は、非磁性体である。しかし、熱伝導性粒子の表面には、磁性粒子が接着されている。磁性粒子は、磁場中で磁力線に沿って配向する。よって、複合粒子に磁場を作用させると、複合粒子は、磁力線に沿って配向する。つまり、熱伝導性粒子と磁性粒子とを複合化することにより、磁性粒子の磁場配向を利用して、非磁性体からなる熱伝導性粒子を、配向させることができる。基材中に、複合粒子が線状に連なることにより、基材中に熱の伝達経路が形成される。したがって、本発明のエラストマー成形体の熱伝導性は高い。

[0011] ここで、複合粒子の粉末の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有する。すなわち、複合粒子の粉末は、小粒径粉末と大粒径粉末とが混合された粉末である。本発明における粒度分布としては、粒子の体積基準の頻度分布を採用する。

[0012] 分級等の粒度調整を行わずに製造された複合粒子の粉末の粒度分布は、通常、一つのピークを有する。このような複合粒子の粉末を配向させた従来の成形体において、配向方向と交差する面を観察すると、後述する実施例において示すように、複合粒子と基材とを比較的明確に区別することができる。つまり、複合粒子は、配向方向に線状に連なり配置されるため、配向方向と交差する面方向に隣り合う複合粒子間の大部分は、基材である。

[0013] これに対して、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを持つ粒度分布の複合粒子の粉末を配向させた本発明のエラストマー成形体においては、大粒径側ピークを構成する大粒径粒子が配向して線状に連なると共

に、小粒径側ピークを構成する小粒径粒子も、配向方向と交差する面方向に隣り合う大粒径粒子間に配向して線状に連なる。したがって、後述する実施例において示すように、配向方向と交差する面を観察すると、大粒径粒子と大粒径粒子との間の隙間（基材部分）を埋めるように、小粒径粒子が分散されていることが確認できる。よって、本発明のエラストマー成形体によると、面全体で熱伝達を行うことができる。このため、複合粒子の充填率を高くしなくても、エラストマー成形体の熱伝導性を向上させることができる。また、大粒径粒子間に介在されるのは粒子径が小さい小粒径粒子であるため、複合粒子の充填率を高くしても、複合粒子同士が干渉しにくく配向性が損なわれにくい。

[0014] なお、本発明のエラストマー成形体において、基材中の複合粒子は、ある規則性を持って所定の方に配置されていればよい。例えば、エラストマー成形体の一端と他端（一端に対して180°対向した端部でなくてもよい）との間に直線状に配置されていても、曲線状に配置されていてもよい。また、中心から外周に向かって放射状に配置されていてもよい。

[0015] （2）本発明のエラストマー成形体の製造方法は、複合粒子を攪拌造粒法により製造する場合における上記（1）の構成のエラストマー成形体の製造方法であって、攪拌造粒機を用いて、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーを含む粉末原料を攪拌して複合粒子の粉末を製造し、該複合粒子の粉末を分級して小粒径粉末および大粒径粉末を準備する複合粒子粉末準備工程と、該複合粒子の該小粒径粉末および該大粒径粉末と、エラストマー原料と、を混合して混合原料を調製する混合原料調製工程と、該混合原料を成形型に配置して、磁場中で該混合原料を成形する成形工程と、を有することを特徴とする。

[0016] 複合粒子粉末準備工程においては、まず、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびこれらを接着するためのバインダーを含む粉末原料を、攪拌造粒機を用いて高速攪拌する。これにより、複合粒子の粉末を容易に製造することができる。攪拌造粒法によると、熱伝導性粒子と磁性粒子とを、バイ

ンダーによりソフトに接着させることができる。よって、熱伝導性粒子が、熱伝導性が高い形状（アスペクト比が大きな形状）を有する場合でも、その形状を崩すことなく、磁性粒子を複合化することができる。また、バインダーを用いることにより、磁性粒子の接着量を多くすることができる。磁性粒子を多量に接着させることにより、磁束密度が350 mT以下の比較的低磁場でも、複合粒子の所望の配向状態を実現することができる。後述するように、磁場の形成には、例えば電磁石が用いられる。低磁場中で成形できると、成形型を挟んで配置される電磁石のギャップを、大きくすることができる。このため、成形型のキャビティを大きくすることができ、製品の形状自由度が高くなる。また、電磁石の設備コスト、ランニングコストも低くすることができる。

[0017] ちなみに、上記特許文献1には、強磁性体の粉末を黒鉛粉末の表面に付着させて、黒鉛粉末の配向を促進できることが、記載されている。また、粒子を機械的に固着させる方法として、メカノケミカル法が挙げられている。しかし、バインダーを用いて接着させることは、記載されていない。例えば、バインダーを用いずに、磁性粒子を熱伝導性粒子の表面に付着させた場合、磁性粒子の付着量を多くすることは困難である。すなわち、バインダーを用いずに複合化した粒子においては、磁性粒子の付着量が少なく、配向に必要な磁性が不足する。このため、当該粒子を用いた場合、低磁場で、所望の配向状態を実現することはできない。また、黒鉛は脆いため、粒子の圧縮、剪断を伴うメカノケミカル処理を行うと、容易に粉砕されて、形状を維持できないという問題もある。

[0018] 次に、製造した複合粒子の粉末を分級して、小粒径粉末および大粒径粉末を準備する。複合粒子の粉末を、粒径範囲が異なる二種類の粉末に分けることにより、大粒径粒子間の隙間を埋めるように、小粒径粒子を分散させることができる。これにより、製造されるエラストマー成形体の熱伝導性を向上させることができる。

[0019] 混合原料調製工程においては、準備した小粒径粉末および大粒径粉末と、

エラストマー原料と、を混合して混合原料を調製する。そして、成形工程においては、調製した混合原料を磁場中で成形する。これにより、大粒径粒子が配向して線状に連なると共に、小粒径粒子も、配向方向と交差する面方向に隣り合う大粒径粒子と大粒径粒子との間を埋めるように、配向して線状に連なる。また、混合原料に、磁束密度が略均一な磁場（一様な磁場）を作用させることにより、磁束密度の違いによる複合粒子の偏在を抑制することができる。よって、複合粒子の充填率が比較的低くても、複合粒子を基材全体に分散させた状態で配向させることができる。このように、本発明の製造方法によると、比較的少量の複合粒子を配合して、熱伝導性が高い本発明のエラストマー成形体を、容易に製造することができる。

### 図面の簡単な説明

[0020] [図1]実施例1の混合粉末の粒度分布である。

[図2]エラストマー成形体の製造に使用した磁気誘導成形装置の斜視図である。

[図3]同装置の断面図である。

[図4]実施例1のエラストマー成形体のX線CT写真である。

[図5]比較例2のエラストマー成形体のX線CT写真である。

[図6]複合粒子の充填率と熱伝導率との関係を示すグラフである。

[図7]小粒径粉末と大粒径粉末との質量比と熱伝導率との関係を示すグラフである。

[図8]非配向フィラーを配合したエラストマー成形体の熱伝導率の測定結果を示すグラフである。

### 符号の説明

[0021] 1：磁気誘導成形装置、2：架台、21：ブラケット、3：電磁石部、30D、30U：ヨーク部、31L、31R：コイル部、32D、32U：ポールピース、310L、310R：芯部、311L、311R：導線、4：成形型、40U：上型、40D：下型、41：キャビティ、50：面状ヒーター、51：断熱部材、L：磁力線。

## 発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明のエラストマー成形体およびその製造方法の実施形態について説明する。なお、本発明のエラストマー成形体およびその製造方法は、以下の実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において、当業者が行い得る変更、改良等を施した種々の形態にて実施することができる。

### [0023] <エラストマー成形体>

本発明のエラストマー成形体は、エラストマーからなる基材と、該基材中に配向して含有されている複合粒子の粉末と、を有する。

[0024] エラストマーとしては、架橋ゴムおよび熱可塑性エラストマーの中から適宜選択すればよい。エラストマーは、ソリッド体でも、ポリウレタンフォーム等の発泡体でもよい。但し、複合粒子などの充填性を考慮すると、気泡（セル）を有しないソリッド体が望ましい。例えば、架橋ゴムとしては、ウレタンゴム、シリコーンゴム、フッ素ゴム、アクリルゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム等が挙げられる。また、熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系、オレフィン系、塩化ビニル系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリアミド系の各種熱可塑性エラストマーが挙げられる。

[0025] 架橋ゴムの硬化方法は、ゴムポリマーの種類に応じて適宜選択すればよい。例えば、加熱硬化、紫外線硬化、電子線硬化、湿気硬化等が挙げられる。複合粒子を磁場配向させるためには、エラストマーの硬化を、磁場を作用させながら行う必要がある。例えば、加熱硬化型のエラストマーの場合、エラストマー原料の温度を上げて、硬化させる。しかし、高温になると磁場を形成する磁石の磁性が低下して、磁場が弱くなるおそれがある。このため、エラストマーの硬化温度は、150℃以下であることが望ましい。また、複合粒子を低磁場で配向させるためには、エラストマーの粘度は、100 Pa・s以下であることが望ましい。エラストマーの粘度が高いと、粘性抵抗の影響で複合粒子が配向しにくくなるおそれがある。なお、エラストマーの粘度が高い場合には、溶剤で希釈して低粘度化し、硬化時に溶剤を揮発させれば

よい。溶剤を使用せずに液状化、低粘度化が可能であるという観点から、エラストマーとしては、ウレタンゴム、シリコンゴム、フッ素ゴムのいずれかが望ましい。

[0026] 複合粒子は、非磁性体からなる熱伝導性粒子と、該熱伝導性粒子の表面にバインダーにより接着された磁性粒子と、を含む。

[0027] 熱伝導性粒子は、非磁性体であって、熱伝導率が高いものであればよい。本明細書では、強磁性体および反強磁性体以外の、反磁性体および常磁性体を、非磁性体と称す。例えば、熱伝導性粒子の熱伝導率は、 $200\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上であることが望ましい。熱伝導性粒子の材質としては、例えば、黒鉛、炭素繊維等の炭素材料が好適である。また、アルミニウム、金、銀、銅、およびこれらを母材とする合金等であってもよい。熱伝導性粒子としては、一種類の粒子を用いても、二種類以上の粒子を併用してもよい。

[0028] 熱伝導性粒子の形状は、磁性粒子と複合化できれば、特に限定されるものではない。例えば、薄片状、繊維状、柱状、球状、楕円球状、長円球状（一对の対向する半球を円柱で連結した形状）等の種々の形状を採用することができる。熱伝導性粒子が球以外の形状をなす場合には、複合粒子同士の接触面積が大きくなる。これにより、熱の伝達経路が確保されやすくなると共に、伝達される熱量も大きくなる。なお、通常、アルミニウム、金、銅等の金属粒子の形状は、球状である。一方、黒鉛粒子は、アスペクト比が大きい形状のものでも、金属粒子と比較して安価に入手できる。このため、熱伝導性粒子の材質としては、黒鉛が好適である。

[0029] 黒鉛としては、鱗片状黒鉛、鱗状黒鉛、土状黒鉛等の天然黒鉛や、人造黒鉛等が挙げられる。人造黒鉛は、鱗片状になりにくい。このため、鱗片状であり、熱伝導性の向上効果が高いという理由から、天然黒鉛が好適である。また、黒鉛として、鱗片状の黒鉛の層間に、加熱によりガスを発生する物質が挿入された膨張黒鉛を用いてもよい。膨張黒鉛は、難燃剤として用いられることが多い。膨張黒鉛に熱が加わると、発生したガスにより、層間が広がると共に、熱や化学品に対して安定した層が形成される。形成された層が断

熱層となり、熱の移動を妨げることにより、難燃効果がもたらされる。よって、熱伝導性粒子としては、天然黒鉛粒子および膨張黒鉛粒子の少なくとも一方を用いるとよい。

[0030] 本発明のエラストマー成形体において、複合粒子は配向している。このため、エラストマー成形体に加わった熱は、熱伝導性粒子に伝達されやすい。よって、熱伝導性粒子が膨張黒鉛からなる場合、膨張黒鉛が、膨張開始温度に早く到達する。これにより、膨張黒鉛による難燃効果が、速やかに発揮される。このように、熱伝導性粒子として膨張黒鉛を用いることにより、エラストマー成形体に難燃性を付与することができる。

[0031] 熱伝導性粒子として膨張黒鉛を用いる場合、公知の膨張黒鉛粉末の中から、膨張開始温度や膨張率等を考慮して、好適なものを選択すればよい。例えば、膨張黒鉛の膨張開始温度は、エラストマー成形体の成形時の温度よりも、高くなければならない。具体的には、膨張開始温度が150℃以上の膨張黒鉛が好適である。

[0032] 磁性粒子は、磁化特性に優れたものであればよく、例えば、鉄、ニッケル、コバルト、ガドリニウム、ステンレス鋼、マグネタイト、マグヘマイト、マンガン亜鉛フェライト、バリウムフェライト、ストロンチウムフェライト等の強磁性体、 $MnO$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $FeCl_2$ 、 $MnAs$ 等の反強磁性体、およびこれらを用いた合金類の粒子が好適である。なかでも、微細な粒子として入手しやすく、飽和磁化が高いという観点から、鉄、ニッケル、コバルト、およびこれらの鉄系合金（ステンレス鋼を含む）の粉末が好適である。

[0033] 磁性粒子は、熱伝導性粒子の表面に接着されており、熱伝導性粒子を配向させる役割を果たす。磁性粒子は、熱伝導性粒子の表面に直接接着されていてもよく、後述するように、熱伝導性粒子の表面に磁性粒子以外の粒子も接着されている場合には、当該粒子を介して間接的に接着されていてもよい。また、磁性粒子は、熱伝導性粒子等の表面の一部のみに接着していてもよく、表面全体を被覆するように接着していてもよい。磁性粒子の大きさは、熱伝導性粒子の大きさ、複合粒子の配向性、および複合粒子間の熱伝導性等を

考慮して、適宜決定すればよい。例えば、磁性粒子の粒子径は、熱伝導性粒子の粒子径の  $1/2.5$  以上  $1/2$  以下であることが望ましい。ここで、粒子径は、粒子の最長部分の長さである。磁性粒子の大きさが小さくなると、磁性粒子の飽和磁化が低下する傾向がある。したがって、より少量の磁性粒子により、複合粒子を配向させるためには、複合化する磁性粒子の粉末の平均粒径を、 $100\text{ nm}$  以上とする必要がある。 $1\text{ }\mu\text{ m}$  以上、さらには  $5\text{ }\mu\text{ m}$  以上とするとより好適である。

[0034] 磁性粒子の形状は、特に限定されるものではない。例えば、磁性粒子の形状が扁平の場合には、球状の場合と比較して、隣接する熱伝導性粒子間の距離が短くなる。これにより、隣接する複合粒子間における熱伝導性が向上する。その結果、エラストマー成形体の熱伝導性が向上する。また、磁性粒子の形状が扁平の場合には、磁性粒子と熱伝導性粒子とが面で接触する。つまり、両者の接触面積が大きくなる。これにより、磁性粒子と熱伝導性粒子との接着力が向上する。よって、磁性粒子が剥離しにくくなる。加えて、磁性粒子と熱伝導性粒子との間の熱伝導性も向上する。このような理由から、磁性粒子としては、薄片状の粒子を採用することが望ましい。

[0035] 電子部品の放熱用途等においては、本発明のエラストマー成形体に絶縁性が要求される場合がある。例えば、熱伝導性粒子の表面に、磁性粒子に加えて、絶縁性無機粒子を接着することにより、複合粒子間の導通を断つことができる。熱伝導性粒子の表面に、絶縁性無機粒子が接着されると、複合粒子同士が接触した状態で配向しても、隣接する複合粒子間において、熱伝導性粒子や磁性粒子（導電性粒子）同士が接触しにくくなる。よって、複合粒子間の電気抵抗が大きくなる。また、絶縁性無機粒子を介して複合粒子同士が接触することにより、複合粒子間の導通を断つことができる。これにより、本発明のエラストマー成形体において、電気絶縁性を実現することができる。

[0036] 絶縁性無機粒子は、絶縁性を有する無機材料の粒子であればよい。なかでも、複合粒子間の熱伝導性を阻害しないという観点から、熱伝導率が比較的

大きいものが望ましい。例えば、絶縁性無機粒子の熱伝導率が、 $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上であると好適である。熱伝導率が、 $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の絶縁性無機材料としては、水酸化アルミニウム、酸化アルミニウム（アルミナ）、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、タルク等が挙げられる。また、絶縁性無機粒子が難燃性を有する場合には、エラストマー成形体に難燃性を付与することができる。例えば、水酸化アルミニウムは、熱伝導率が比較的大きく難燃性を有するため、好適である。水酸化アルミニウムは、所定の温度に加熱されると、脱水分解する。脱水分解は吸熱反応であるため、温度上昇が抑制され、難燃効果がもたらされる。

[0037] 絶縁性無機粒子は、熱伝導性粒子の表面に直接接着されていてもよく、磁性粒子を介して間接的に接着されていてもよい。また、絶縁性無機粒子は、熱伝導性粒子等の表面の一部のみに接着していてもよく、表面全体を被覆するように接着していてもよい。複合粒子間の電気抵抗を大きくして、エラストマー成形体の電気絶縁性を高めるという観点から、絶縁性無機粒子は、複合粒子の最表層に配置されていることが望ましい。

[0038] 絶縁性無機粒子の大きさは、熱伝導性粒子および磁性粒子に対する接着性、複合粒子間の電気絶縁性および熱伝導性を考慮して、適宜決定すればよい。絶縁性無機粒子が大きすぎると、接着性や複合粒子間の熱伝導性が低下する。例えば、絶縁性無機粒子の粒子径は、熱伝導性粒子の粒子径の $1/100$ 以上 $1/10$ 以下であることが望ましい。ここで、粒子径は、粒子の最長部分の長さである。

[0039] 絶縁性無機粒子の形状は、特に限定されるものではない。例えば、絶縁性無機粒子の形状が扁平の場合には、球状の場合と比較して、隣接する熱伝導性粒子間の距離が短くなる。これにより、隣接する複合粒子間における熱伝導性が向上する。その結果、エラストマー成形体の熱伝導性が向上する。また、絶縁性無機粒子と磁性粒子および熱伝導性粒子との接触面積が、大きくなる。これにより、接着力が向上し、絶縁性無機粒子が剥離しにくくなる。加えて、絶縁性無機粒子と磁性粒子および熱伝導性粒子との間の熱伝導性も

、向上する。このような理由から、絶縁性無機粒子としては、薄片状の粒子を採用することが望ましい。

[0040] 熱伝導性粒子と磁性粒子等とを接着するバインダーは、熱伝導性粒子等の種類、成形性への影響等を考慮して、適宜選択すればよい。成形性への影響が少なく、環境にも優しいという理由から、水溶性のバインダーが好適である。例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ポリビニルアルコール等が挙げられる。なお、磁性粒子を接着するバインダーと、絶縁性無機粒子を接着するバインダーとは同じでも異なってもよい。

[0041] 複合粒子は、例えば、バインダーを溶解した溶液に磁性粒子の粉末等を分散した塗料を、熱伝導性粒子の粉末にスプレーして、製造することができる。また、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーを含む粉末原料を、高速で攪拌して製造することができる（攪拌造粒法）。攪拌造粒法においては、高速攪拌により摩擦熱が生じる。このため、バインダーとしては、揮発性の無いものが望ましい。例えば、前述した水溶性のバインダーが好適である。

[0042] 複合粒子の粉末の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有する。複合粒子の粉末の粒度分布は、レーザー回折・散乱式粒度分布測定装置を用いて測定すればよい。本発明における粒度分布としては、粒子の体積基準の頻度分布を採用する。

[0043] 小粒径粒子を、大粒径粒子間を埋めるように、かつ、大粒径粒子の配向を阻害しないように配向させるという観点から、小粒径側ピークのピーク粒径と大粒径側ピークのピーク粒径との差は、比較的大きい方が望ましい。例えば、大粒径側ピークのピーク粒径は、小粒径側ピークのピーク粒径の2倍以上であることが望ましい。5倍以上であるとより好適である。一方、ピーク粒径差が大きすぎると熱伝導率の向上効果が小さくなるため、大粒径側ピークのピーク粒径は、小粒径側ピークのピーク粒径の20倍以下であることが望ましい。15倍以下であるとより好適である。まとめると、二つのピーク

において、小粒径側ピークのピーク粒径と大粒径側ピークのピーク粒径との比は、 $1 : 2 \sim 1 : 20$ であることが望ましく、 $1 : 5 \sim 1 : 15$ であるとしてより好適である。

[0044] 複合粒子の充填率が比較的低くても熱伝導性の向上効果を高めるためには、大粒径側ピークに含まれる大粒径粒子は、質量比で、小粒径側ピークに含まれる小粒径粒子と同等若しくはそれ以上の割合で、配合されることが望ましい。例えば、複合粒子の粉末の粒度分布において、小粒径側ピークの面積と大粒径側ピークの面積との比は、 $1 : 1 \sim 1 : 30$ であることが望ましい。 $1 : 5 \sim 1 : 20$ であるとしてより好適である。

[0045] エラストマー成形体における複合粒子の充填率は、エラストマー成形体の物性や、熱伝導性の向上効果等を考慮して、決定すればよい。例えば、成形性や物性への影響が少ないという観点から、複合粒子の充填率を、エラストマー成形体の体積を100体積%とした場合の50体積%以下とすることが望ましい。特に、複合粒子の充填率を40体積%以下とすると、複合粒子同士の干渉が少なく、熱伝導性の向上効果が大きい。一方、熱伝導性の向上効果を得るためには、複合粒子の充填率を、10体積%以上とすることが望ましい。25体積%以上とするとより好適である。

[0046] 高い熱伝導性を実現するという観点から、複合粒子の充填率が、エラストマー成形体の体積を100体積%とした時の26体積%以上38体積%以下である場合の熱伝導率は、 $2.4 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上であることが望ましい。熱伝導率は、JIS A1412-2 (1999)の熱流計法に準じて測定すればよい。

[0047] 本発明のエラストマー成形体は、複合粒子の粉末に加えて、さらに、配向せずに基材中に分散する非配向フィラーを有していてもよい。非配向フィラーは、熱伝導性の向上、絶縁性の付与、難燃性の向上等、目的に応じて適宜選択すればよい。例えば、前述した熱伝導性粒子、絶縁性無機粒子等をそのまま分散させればよい。

[0048] <エラストマー成形体の製造方法>

本発明のエラストマー成形体の製造方法は、複合粒子を攪拌造粒法により製造する場合の製造方法であって、複合粒子粉末準備工程と、混合原料調製工程と、成形工程と、を有する。以下、各工程について説明する。

[0049] (1) 複合粒子粉末準備工程

本工程は、攪拌造粒機を用いて、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーを含む粉末原料を攪拌して複合粒子の粉末を製造し、該複合粒子の粉末を分級して小粒径粉末および大粒径粉末を準備する工程である。

[0050] 熱伝導性粒子、磁性粒子、およびバインダーについては、前述した通りである。よって、ここでは説明を省略する。また、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーの配合量についても、製造される複合粒子の磁場配向性や、複合粒子を含むエラストマー成形体の熱伝導性等を考慮して、適宜調整すればよい。

[0051] 例えば、熱伝導性粒子として黒鉛を採用した場合には、磁性粒子の粉末の配合量を、黒鉛粉末 100 質量部に対して 20 質量部以上 150 質量部以下とすることが望ましい。20 質量部未満の場合、磁性粒子の接着量が少ないため、複合粒子の配向に必要な磁性が不足するおそれがある。一方、150 質量部を超えて配合すると、磁性粒子の接着量が過剰になる。よって、その分だけ、エラストマー成形体の質量の増加や、コスト高を招く。

[0052] バインダーの配合量は、接着させる粒子を被覆するのに必要十分な量として、接着対象の粉末の合計質量を 100 質量%とした場合の、2 質量%以上 4 質量%以下であることが望ましい。バインダーの配合量が 2 質量%未満の場合には、熱伝導性粒子や磁性粒子の表面にバインダーが行き渡らず、接着性が低下する。一方、4 質量%を超えると、過剰のバインダーにより、複合粒子同士が凝集するおそれがある。バインダーは固体でも液体でもよい。バインダーとして水溶性の粉末を用いる場合、予め、バインダーと他の原料の粉末とを攪拌した後に、水を添加するとよい。こうすることにより、粒子の凝集を抑制することができる。

[0053] 磁性粒子に加えて絶縁性無機粒子も複合化する場合には、両粉末と一緒に攪拌して、熱伝導性粒子に接着させてもよいが、まず磁性粒子を熱伝導性粒子に接着させてから、次に絶縁性無機粒子を接着させてもよい。この場合、本工程の前段を、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーを含む第一粉末原料を攪拌する第一攪拌工程と、攪拌物に、絶縁性無機粒子の粉末およびバインダーを添加して、さらに攪拌する第二攪拌工程と、を有するように構成するとよい。

[0054] 製造した複合粒子の粉末の分級方法は、特に限定されない。例えば、篩い分け、乾式分級機等により行えばよい。分級後の小粒径粉末および大粒径粉末の粒子径範囲については、製造するエラストマー成形体の厚さ等を考慮して、適宜決定すればよい。小粒径粒子を、大粒径粒子間を埋めるように、かつ、大粒径粒子の配向を阻害しないように配向させるという観点から、粒度分布を測定した場合における各々のピーク粒径の差が、比較的大きい方が望ましい。例えば、大粒径粉末のピーク粒径は、小粒径粉末のピーク粒径の2倍以上であることが望ましい。5倍以上であるとより好適である。一方、ピーク粒径差が大きすぎると熱伝導率の向上効果が小さくなるため、大粒径粉末のピーク粒径は、小粒径粉末のピーク粒径の20倍以下であることが望ましい。15倍以下であるとより好適である。

[0055] (2) 混合原料調製工程

本工程は、先の工程において製造された複合粒子の小粒径粉末および大粒径粉末と、エラストマー原料と、を混合して混合原料を調製する工程である。

[0056] エラストマー原料は、エラストマー成分のポリマー（エラストマーが架橋ゴムの場合には、架橋前のポリマー）の他、必要に応じて、架橋剤、可塑剤、触媒、発泡剤、整泡剤、難燃剤、帯電防止剤、減粘剤、安定剤、充填剤、着色剤等を含む。混合原料は、複合粒子の粉末とエラストマー原料とを、攪拌羽根等を用いて攪拌して、製造すればよい。また、エラストマー原料が発泡ウレタン原料の場合には、ポリオール原料とポリイソシアネート原料とを

、各々高圧で噴射して衝突させることにより混合する衝突攪拌法を採用してもよい。この場合、小粒径粉末および大粒径粉末は、ポリオール原料およびポリイソシアネート原料の少なくとも一方に、予め配合しておけばよい。

[0057] 複合粒子の充填率が比較的低くても熱伝導性の向上効果を高めるためには、大粒径側粉末は、質量比で小粒径粉末と同等若しくはそれ以上の割合で、配合されることが望ましい。例えば、小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は、 $1:1 \sim 1:10$ であることが望ましい。

[0058] 前述したように、本発明のエラストマー成形体においては、基材中に、複合粒子とは別に、熱伝導性粒子、絶縁性無機粒子等の非配向フィラーが分散されていてもよい。この形態のエラストマー成形体を製造する場合には、エラストマー原料に、複合粒子の粉末と非配向フィラーとを混合すればよい。

[0059] 複合粒子の粉末（小粒径粉末および大粒径粉末）の配合量は、エラストマー成形体の物性や、熱伝導性の向上効果等を考慮して、決定すればよい。例えば、成形性や物性への影響を少なくするという観点から、複合粒子の充填率が、エラストマー成形体の体積を100体積%とした場合の50体積%以下になるように、配合することが望ましい。40体積%以下とするとより好適である。一方、熱伝導性の向上効果を得るためには、複合粒子の充填率が10体積%以上になるように、配合することが望ましい。25体積%以上とするとより好適である。

[0060] (3) 成形工程

本工程は、先の工程において調製した混合原料を成形型に配置して、磁場中で該混合原料を成形する工程である。

[0061] 成形型は、密閉型でも開放型でもよい。磁場は、複合粒子を配向させる方向に形成すればよい。例えば、複合粒子を直線状に配向させる場合、混合原料の一端から他端に向かって、磁力線を作用させることが望ましい。このような磁場を形成するためには、混合原料を挟むように磁石を配置すればよい。磁石には、永久磁石または電磁石を用いればよい。電磁石を用いると、磁場形成のオン、オフを瞬時に切り替えることができ、磁場の強さの制御が容

易である。よって、成形を制御しやすい。

[0062] また、磁場を構成する磁力線は閉ループを形成していることが望ましい。こうすることで、磁力線の漏洩が抑制され、混合原料に安定した磁場を作用させることができる。なお、成形型の外部に配置した磁石により、成形型の内部に磁場を形成させるには、成形型としては透磁率の低い材質、つまり非磁性の材質のものを使用するとよい。例えば、アルミニウムやアルミニウム合金製の成形型が好適である。この場合、電磁石等の磁力源から発生する磁場、磁力線が影響を受けにくく、磁場状態のコントロールがしやすい。ただし、必要とする磁場、磁力線の状態に応じて適宜、磁性材料からなる成形型を使用してもよい。

[0063] 本工程においては、磁束密度が略均一な磁場を、混合原料に作用させることが望ましい。具体的には、混合原料における磁束密度の差が、 $\pm 10\%$ 以内であるとよい。 $\pm 5\%$ 以内、さらには $\pm 3\%$ 以内であるとより好適である。混合原料に均一な磁場を作用させることにより、複合粒子の偏在を抑制することができ、所望の配向状態を得ることができる。また、成形は、 $150\text{ mT}$ 以上 $350\text{ mT}$ 以下の磁束密度で行うとよい。こうすることで、混合原料中の複合粒子を、確実に配向させることができる。本工程にて成形が終了した後、脱型して、本発明のエラストマー成形体を得る。

## 実施例

[0064] 次に、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明する。

[0065] <複合粒子の大粒径粉末および小粒径粉末の製造>

まず、熱伝導性粒子としての二種類の鱗片状黒鉛粉末（伊藤黒鉛工業（株）製「W+32」（+32 mesh 80%以上）および「X-100」（平均粒径 $60\text{ }\mu\text{m}$ ））と、磁性粒子としてのステンレス鋼粉末（SUS410L、薄片状、平均粒径 $20\text{ }\mu\text{m}$ ）と、バインダーとしてのヒドロキシプロピルメチルセルロース（HPMC、信越化学工業（株）製「TC-5」）と、を準備した。薄片状のステンレス鋼粉末は、球状のステンレス鋼粉末（大同特殊鋼（株）製「DAP410L」、平均粒径 $10\text{ }\mu\text{m}$ ）を、扁平化处理

して製造した。すなわち、球状のステンレス鋼粉末を、遊星ボールミル（Gokin Planetaring社製「Planet-M」）に、直径5 mmのジルコニア製ボールと共に充填し、回転速度300 rpmで、一時間処理した。

[0066] 次に、鱗片状黒鉛粉末「W+32」1418 g、ステンレス鋼粉末532 g、およびHPMC43 gを、FMミキサ（日本コークス工業（株）製）の容器内へ投入し、1分間混合した。その後、水を135 g添加して、さらに6分間混合して、複合粒子の粉末を製造した。製造した複合粒子の粉末を乾燥した後、目開き1100  $\mu$ m、700  $\mu$ mの二種類の篩いにより篩い分けして、粒子径が700  $\mu$ m以上1100  $\mu$ m以下の大粒径粉末を得た。

[0067] また、鱗片状黒鉛粉末を「X-100」に代えた以外は、上記同様にして、複合粒子の粉末を製造した。製造した複合粒子の粉末を乾燥した後、目開き100  $\mu$ m、45  $\mu$ mの二種類の篩いにより篩い分けして、粒子径が45  $\mu$ m以上100  $\mu$ m以下の小粒径粉末を得た。

[0068] 配合した鱗片状黒鉛粉末とステンレス鋼粉末との質量比は、100：37.5である。HPMCの配合量は、鱗片状黒鉛粉末とステンレス鋼粉末との合計質量を100質量%とした場合の、2.2質量%である。

[0069] <混合粉末の調製>

[実施例1]

小粒径粉末100 gと大粒径粉末400 gとを混合して、実施例1の混合粉末を調製した（小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は1：4）。

[0070] [実施例2]

小粒径粉末50 gと大粒径粉末450 gとを混合して、実施例1の混合粉末を調製した（小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は1：9）。

[0071] [実施例3]

小粒径粉末200 gと大粒径粉末400 gとを混合して、実施例1の混合粉末を調製した（小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は1：2）。

[0072] [実施例4]

小粒径粉末 250 g と大粒径粉末 250 g とを混合して、実施例 1 の混合粉末を調製した（小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は 1 : 1）。

[0073] [粒度分布]

実施例 1 ～ 4 の混合粉末の粒度分布を、レーザー回折・散乱式粒度分布測定装置（日機装（株）製「MT-3300EX」）により測定した。図 1 に、実施例 1 の混合粉末の粒度分布を示す。図 1 に示すように、混合粉末（複合粒子の粉末）の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有することが確認された。ここで、小粒径側ピークのピーク粒径は  $90\text{ }\mu\text{m}$ 、大粒径側ピークのピーク粒径は  $900\text{ }\mu\text{m}$  であり、両者のピーク粒径の比は、1 : 10 であった。また、粒度分布を、粒子径  $270\text{ }\mu\text{m}$  にて二分して、小粒径側と大粒径側の各々のピーク面積を算出したところ、小粒径側ピークと大粒径側ピークとの面積比は 1 : 10 であった。

[0074] 同様に、実施例 2 ～ 4 の混合粉末の粒度分布から、小粒径側と大粒径側の各々のピーク面積を算出したところ、実施例 2 の混合粉末においては 1 : 20、実施例 3 の混合粉末においては 1 : 5、実施例 4 の混合粉末においては 1 : 1 であった。

[0075] <エラストマー成形体の製造>

[実施例 1 ～ 4 のエラストマー成形体]

調製した実施例 1 ～ 4 の混合粉末を用いて、エラストマー成形体を製造した。まず、液状シリコンゴムのビニル基含有ジメチルポリシロキサン（Gelest 社製「DMS-V41」）100 質量部と、架橋剤のヒドロシリル基含有ジメチルポリシロキサン（Gelest 社製「HMS-082」）3 質量部と、遅延剤の 1-エチニル-1-シクロヘキサノール 0.3 質量部と、白金触媒（Gelest 社製「SIP6830.3」）0.05 質量部と、を攪拌羽根を用いて 15 分間攪拌し、シリコンコンパウンドを作成した。

[0076] 次に、製造したシリコンコンパウンドに混合粉末を混合して、混合原料を調製した。混合粉末は、複合粒子の充填率が、製造されるエラストマー成

形体の体積を１００体積％とした場合の３２．７体積％となるように配合した。

[0077] 続いて、各混合原料を、予めオープンにて１３０℃に加熱したアルミニウム製の成形型（後述する図２、図３参照。キャビティは縦１３０ｍｍ×横１３０ｍｍ×厚さ５ｍｍの直方体。）に注入し、密閉した。そして、成形型を磁気誘導成形装置に設置して、成形を行った。図２に、磁気誘導成形装置の斜視図を示す。図３に、同装置の断面図を示す。図２においては、説明の便宜上、ヨーク部および芯部のハッチングを省略して示す。図２、図３に示すように、磁気誘導成形装置１は、架台２と、電磁石部３と、成形型４と、面状ヒーター５０と、断熱部材５１と、を備えている。

[0078] 電磁石部３は、架台２の上面に載置されている。電磁石部３と架台２とは、各々にブラケット２１をねじ止めすることにより、固定されている。電磁石部３は、ヨーク部３０Ｕ、３０Ｄと、コイル部３１Ｌ、３１Ｒと、ポールピース３２Ｕ、３２Ｄと、を備えている。

[0079] ヨーク部３０Ｕは、鉄製であり、平板状を呈している。ヨーク部３０Ｄも同様に、鉄製であり、平板状を呈している。ヨーク部３０Ｕ、３０Ｄは、上下方向に対向して配置されている。

[0080] コイル部３１Ｌは、ヨーク部３０Ｕ、３０Ｄの間に介装されている。コイル部３１Ｌは、成形型４の左側に配置されている。コイル部３１Ｌは、上下方向に二つ重ねて配置されている。コイル部３１Ｌは、各々、芯部３１０Ｌと導線３１１Ｌとを備えている。芯部３１０Ｌは、鉄製であって、上下方向に延びる柱状を呈している。導線３１１Ｌは、芯部３１０Ｌの外周面に巻装されている。導線３１１Ｌは、電源（図略）に接続されている。

[0081] コイル部３１Ｒは、ヨーク部３０Ｕ、３０Ｄの間に介装されている。コイル部３１Ｒは、成形型４の右側に配置されている。コイル部３１Ｒは、上下方向に二つ重ねて配置されている。コイル部３１Ｒは、各々、コイル部３１Ｌと同様の構成を備えている。すなわち、コイル部３１Ｒは、芯部３１０Ｒと導線３１１Ｒとを備えている。導線３１１Ｒは、芯部３１０Ｒの外周面に

巻装されている。導線 3 1 1 R は、電源（図略）に接続されている。

[0082] ポールピース 3 2 U は、鉄製であり、平板状を呈している。ポールピース 3 2 U は、ヨーク部 3 0 U の下面中央に配置されている。ポールピース 3 2 U は、ヨーク部 3 0 U と成形型 4 との間に介装されている。ポールピース 3 2 D は、鉄製であり、平板状を呈している。ポールピース 3 2 D は、ヨーク部 3 0 D の上面中央に配置されている。

[0083] 成形型 4 は、コイル部 3 1 L とコイル部 3 1 R との間に、配置されている。成形型 4 は、上型 4 0 U と下型 4 0 D とを備えている。上型 4 0 U は、正方形板状を呈している。下型 4 0 D は、直方体状を呈している。下型 4 0 D の上面には、凹部が形成されている。凹部は、上方に開口する直方体状を呈している。上型 4 0 U と下型 4 0 D とが合体することにより、直方体状のキャビティ 4 1 が区画されている。キャビティ 4 1 には、前述したように、混合原料が充填されている。

[0084] 面状ヒーター 5 0 は、正方形シート状を呈している。面状ヒーター 5 0 は、下型 4 0 D の下面を覆うように配置されている。面状ヒーター 5 0 により、成形型 4 は 1 0 0 °C に保持されている。

[0085] 断熱部材 5 1 は、ガラス繊維製であり、平板状を呈している。断熱部材 5 1 は、面状ヒーター 5 0 とポールピース 3 2 D との間に介装されている。断熱部材 5 1 により、面状ヒーター 5 0 から電磁石部 3 への熱の移動が、抑制されている。

[0086] 導線 3 1 1 L に接続された電源および導線 3 1 1 R に接続された電源を、共にオンにすると、コイル部 3 1 L の芯部 3 1 0 L の上端が N 極に、下端が S 極に磁化される。このため、芯部 3 1 0 L に、下方から上方に向かって磁力線 L（図 3 に点線で示す）が発生する。同様に、コイル部 3 1 R の芯部 3 1 0 R の上端が N 極に、下端が S 極に磁化される。このため、芯部 3 1 0 R に、下方から上方に向かって磁力線 L が発生する。

[0087] コイル部 3 1 L の芯部 3 1 0 L 上端から放射された磁力線 L は、ヨーク部 3 0 U、ポールピース 3 2 U を通って、成形型 4 のキャビティ 4 1 内に流入

する。その後、ポールピース32D、ヨーク部30Dを通過して、芯部310L下端に流入する。同様に、コイル部31Rの芯部310R上端から放射された磁力線Lは、ヨーク部30U、ポールピース32Uを通過して、成型型4のキャビティ41内に流入する。その後、ポールピース32D、ヨーク部30Dを通過して、芯部310R下端に流入する。このように、磁力線Lは閉ループを構成するため、磁力線Lの漏洩は抑制される。また、成型型4のキャビティ41内には、上方から下方に向かって略平行な磁力線Lにより一様な磁場が形成される。具体的には、キャビティ41内の磁束密度は、約300mTであった。また、キャビティ41内における磁束密度の差は、±3%以内であった。

[0088] 成形は、100℃下で、30分間磁場をかけながら行った。成形が終了した後、脱型して、エラストマー成形体を得た。得られたエラストマー成形体を、混合粉末の番号と対応させて番号付けした。

[0089] [比較例1、2のエラストマー成形体]

比較のため、混合粉末に代えて、粒子径が700μm以上1100μm以下の大粒径粉末のみを配合した以外は、実施例1～4と同様にして、エラストマー成形体を製造した。配合された複合粒子の粉末の粒度分布のピークは、一つである。得られたエラストマー成形体を、比較例1のエラストマー成形体とした。

[0090] また、混合粉末に代えて、鱗片状黒鉛粉末「W+32」を用いて製造した複合粒子の粉末を篩い分けせずにそのまま配合した以外は、実施例1～4と同様にして、エラストマー成形体を製造した。配合された複合粒子の粉末の粒度分布のピークは、一つである。得られたエラストマー成形体を、比較例2のエラストマー成形体とした。

[0091] <エラストマー成形体のX線CT測定>

製造したエラストマー成形体の上面から面垂直方向の配向状態を、X線CT装置（（株）島津製作所製「SMX-160LT」）を用いて観察した。図4に、実施例1のエラストマー成形体のX線CT写真を示す。図5に、比

較例 2 のエラストマー成形体の X 線 C T 写真を示す。図 4 に示すように、実施例 1 のエラストマー成形体においては、大粒径粒子と大粒径粒子との間の隙間（基材部分）を埋めるように、小粒径粒子が分散して配向していることが確認できた。一方、図 5 に示すように、分級無しの複合粒子の粉末を配合した比較例 2 のエラストマー成形体においては、大粒径粒子と大粒径粒子との間に、ほとんど小粒径粒子は見られなかった。

[0092] <エラストマー成形体の評価>

製造したエラストマー成形体の熱伝導率を、J I S A 1 4 1 2 - 2 ( 1 9 9 9 ) の熱流計法に準拠した、英弘精機（株）製「H C - 1 1 0」を用いて測定した。表 1 に、評価結果を、使用した複合粒子の粉末の組成と共に示す。

[表1]

|                            |                                  | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 比較例1 | 比較例2 |
|----------------------------|----------------------------------|------|------|------|------|------|------|
| 複合粒子の粉末                    | 小粒径粉末：大粒径粉末（質量比）                 | 1:4  | 1:9  | 1:2  | 1:1  | 0:1  | 分級無し |
|                            | 小粒径側ピーク：大粒径側ピーク<br>（粒度分布における面積比） | 1:10 | 1:20 | 1:5  | 1:1  | —    | —    |
| エラストマー成形体における複合粒子の充填率〔体積％〕 |                                  | 32.7 | 32.7 | 32.7 | 32.7 | 32.7 | 32.7 |
| エラストマー成形体の熱伝導率〔W／m・K〕      |                                  | 3.6  | 3.4  | 3.4  | 2.7  | 2.3  | 2.2  |

[0093] 表 1 に示すように、実施例 1 ～ 4 のエラストマー成形体の熱伝導率は、比較例 1、2 のエラストマー成形体の熱伝導率よりも、大きくなった。なかでも、大粒径粉末の配合比率が大きい実施例 1 ～ 3 のエラストマー成形体の熱伝導率は、 $3.4 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  以上と大きくなった。

[0094] <複合粒子の充填率と熱伝導率との関係>

実施例 1 の混合粉末を配合したエラストマー成形体において、複合粒子の充填率に対する熱伝導率の変化を調べた。比較のため、鱗片状黒鉛粉末「W + 32」を用いて製造した複合粒子の粉末を篩い分けせずにそのまま配合したエラストマー成形体においても、複合粒子の充填率に対する熱伝導率の変化を調べた。図 6 に、二つのエラストマー成形体における複合粒子の充填率と熱伝導率との関係をグラフで示す。

[0095] 図 6 に示すように、充填率に関わらず、実施例 1 の混合粉末を配合したエラストマー成形体の方が、分級無しの複合粒子の粉末を配合したエラストマー成形体よりも、熱伝導率が大きくなった。具体的には、複合粒子の充填率が 26 体積%以上 38 体積%以下の場合の熱伝導率は、 $2.4 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  以上であった。また、実施例 1 の混合粉末を配合したエラストマー成形体の方が、分級無しの複合粒子の粉末を配合したエラストマー成形体よりも、熱伝導率が最大になる充填率が高くなった。この結果から、実施例 1 の混合粉末を用いると、熱伝導率を大きくするために、複合粒子の粉末をより高充填でできることがわかる。

[0096] <小粒径粉末と大粒径粉末との配合比率と熱伝導率との関係>

実施例 1 ～ 4 の混合粉末を用いて、複合粒子の充填率が 26.4 体積%、32.7 体積%である二種類のエラストマー成形体を製造し、各々の熱伝導率を測定した。また、比較のため、粒子径が  $700 \mu\text{m}$  以上  $1100 \mu\text{m}$  以下の大粒径粉末のみを用いて、複合粒子の充填率が 26.4 体積%、32.7 体積%である二種類のエラストマー成形体を製造し、各々の熱伝導率を測定した。なお、各エラストマー成形体の製造方法は、上記実施例 1 ～ 4 のエラストマー成形体の製造方法と、同じである。図 7 に、小粒径粉末と大粒径

粉末との質量比と熱伝導率との関係をグラフで示す。

[0097] 図7に示すように、いずれの充填率においても、混合粉末を配合したエラストマー成形体の方が、大粒径粉末のみを配合したエラストマー成形体（小粒径粉末と大粒径粉末との質量比は0：1）よりも、熱伝導率が大きくなった。また、混合粉末を配合したエラストマー成形体においては、充填率が高い方が、熱伝導率が大きくなった。また、混合粉末を配合したエラストマー成形体においては、大粒径粉末の配合比率を大きくすると熱伝導率が大きくなった。例えば、充填率が32.7体積%の場合、小粒径粉末と大粒径粉末との質量比が1：4のエラストマー成形体において、熱伝導率が最大になった。

[0098] <非配向フィラーの配合>

実施例1の混合粉末に加えて、非配向フィラーとして絶縁性無機材料の酸化マグネシウム粉末（神島化学工業（株）製「スターマグPSF-WR」、平均粒径1.0 $\mu$ m）を配合して、エラストマー成形体を製造した。実施例1の混合粉末は、エラストマー成形体の体積を100体積%とした場合の32.7体積%となるように配合し、酸化マグネシウム粉末は、8体積%となるように配合した。図8に、熱伝導率の測定結果をグラフで示す。

[0099] 図8に示すように、非配向フィラーを配合しても、混合粉末の配合による熱伝導性向上効果は維持された。酸化マグネシウムの熱伝導率は比較的大きい。このため、非配向フィラーとして酸化マグネシウム粉末を配合した場合、熱伝導率がより大きくなった。

### 産業上の利用可能性

[0100] 本発明のエラストマー成形体は、電子機器、自動車、建築等の幅広い分野において用いることができる。具体的には、パソコン等の電子機器に用いられる放熱部材、車載用ECU（電子制御ユニット）の放熱部材、LED（発光ダイオード）照明用の放熱部材等に好適である。

## 請求の範囲

- [請求項1] エラストマーからなる基材と、該基材中に配向して含有されている複合粒子の粉末と、を有し、
- 該複合粒子は、非磁性体からなる熱伝導性粒子と、該熱伝導性粒子の表面にバインダーにより接着された磁性粒子と、を含み、
- 該複合粒子の粉末の粒度分布は、小粒径側ピークおよび大粒径側ピークの二つのピークを有することを特徴とするエラストマー成形体。
- [請求項2] 前記複合粒子の粉末の粒度分布において、前記小粒径側ピークのピーク粒径と前記大粒径側ピークのピーク粒径との比は、 $1 : 2 \sim 1 : 20$ である請求項1に記載のエラストマー成形体。
- [請求項3] 前記複合粒子の粉末の粒度分布において、前記小粒径側ピークの面積と前記大粒径側ピークの面積との比は、 $1 : 1 \sim 1 : 30$ である請求項1または請求項2に記載のエラストマー成形体。
- [請求項4] さらに、前記基材中に分散される非配向フィラーを有する請求項1ないし請求項3のいずれか1項に記載のエラストマー成形体。
- [請求項5] 前記エラストマーは、ウレタンゴム、シリコンゴム、フッ素ゴム、およびこれらの発泡体のいずれかである請求項1ないし請求項4のいずれか1項に記載のエラストマー成形体。
- [請求項6] 前記熱伝導性粒子は、黒鉛からなる請求項1ないし請求項5のいずれか1項に記載のエラストマー成形体。
- [請求項7] 前記複合粒子の充填率が、エラストマー成形体の体積を100体積%とした時の26体積%以上38体積%以下である場合の熱伝導率は、 $2.4 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上である請求項1ないし請求項6のいずれか1項に記載のエラストマー成形体。
- [請求項8] 請求項1に記載のエラストマー成形体の製造方法であって、
- 攪拌造粒機を用いて、熱伝導性粒子の粉末、磁性粒子の粉末、およびバインダーを含む粉末原料を攪拌して複合粒子の粉末を製造し、該複合粒子の粉末を分級して小粒径粉末および大粒径粉末を準備する複

合粒子粉末準備工程と、

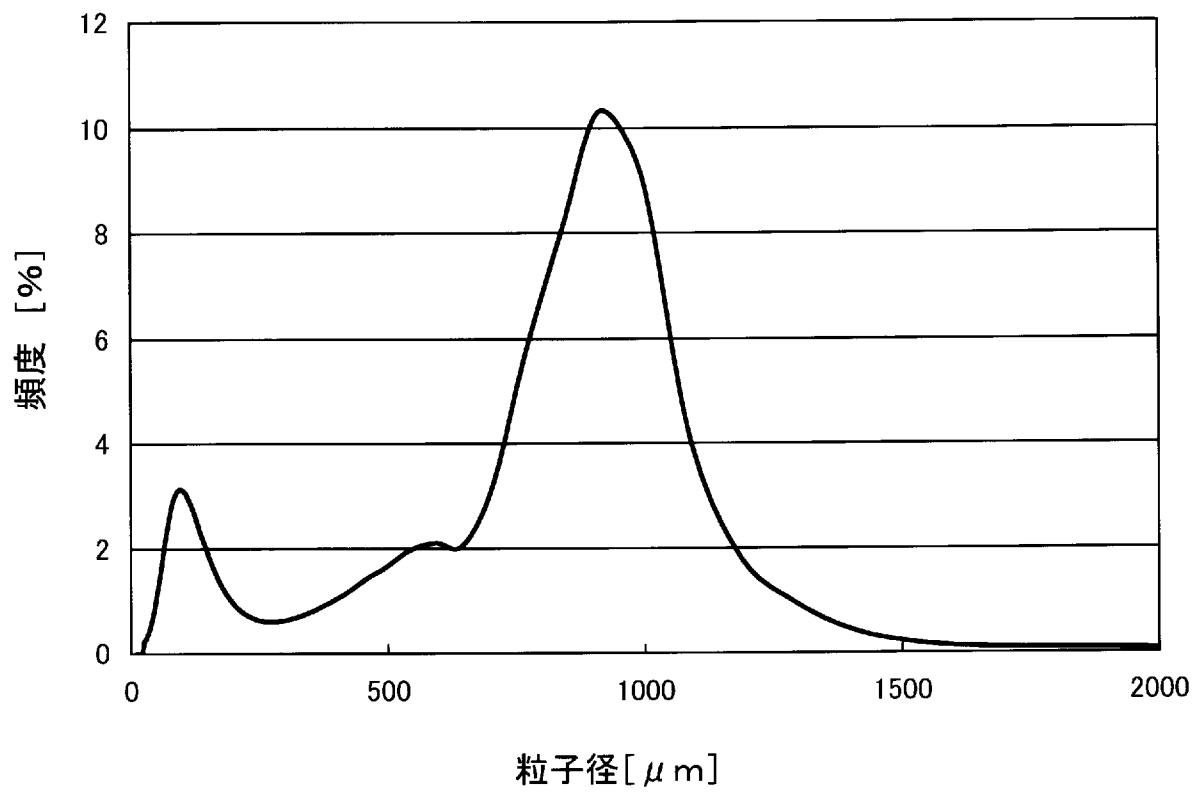
該複合粒子の該小粒径粉末および該大粒径粉末と、エラストマー原料と、を混合して混合原料を調製する混合原料調製工程と、

該混合原料を成形型に配置して、磁場中で該混合原料を成形する成形工程と、

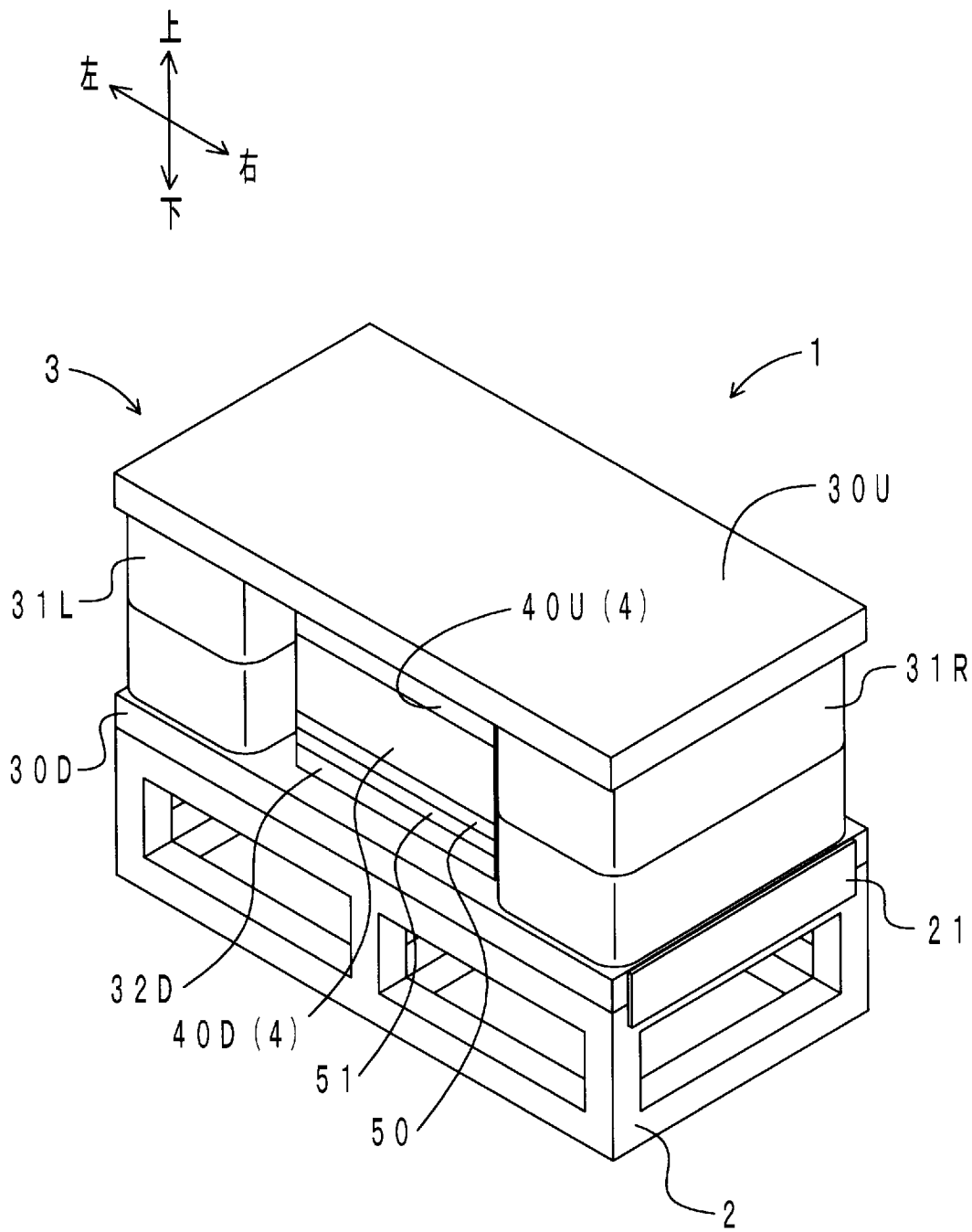
を有することを特徴とするエラストマー成形体の製造方法。

[請求項9] 前記混合原料調製工程において、配合する前記小粒径粉末と前記大粒径粉末との質量比は、 $1 : 1 \sim 1 : 10$ である請求項8に記載のエラストマー成形体の製造方法。

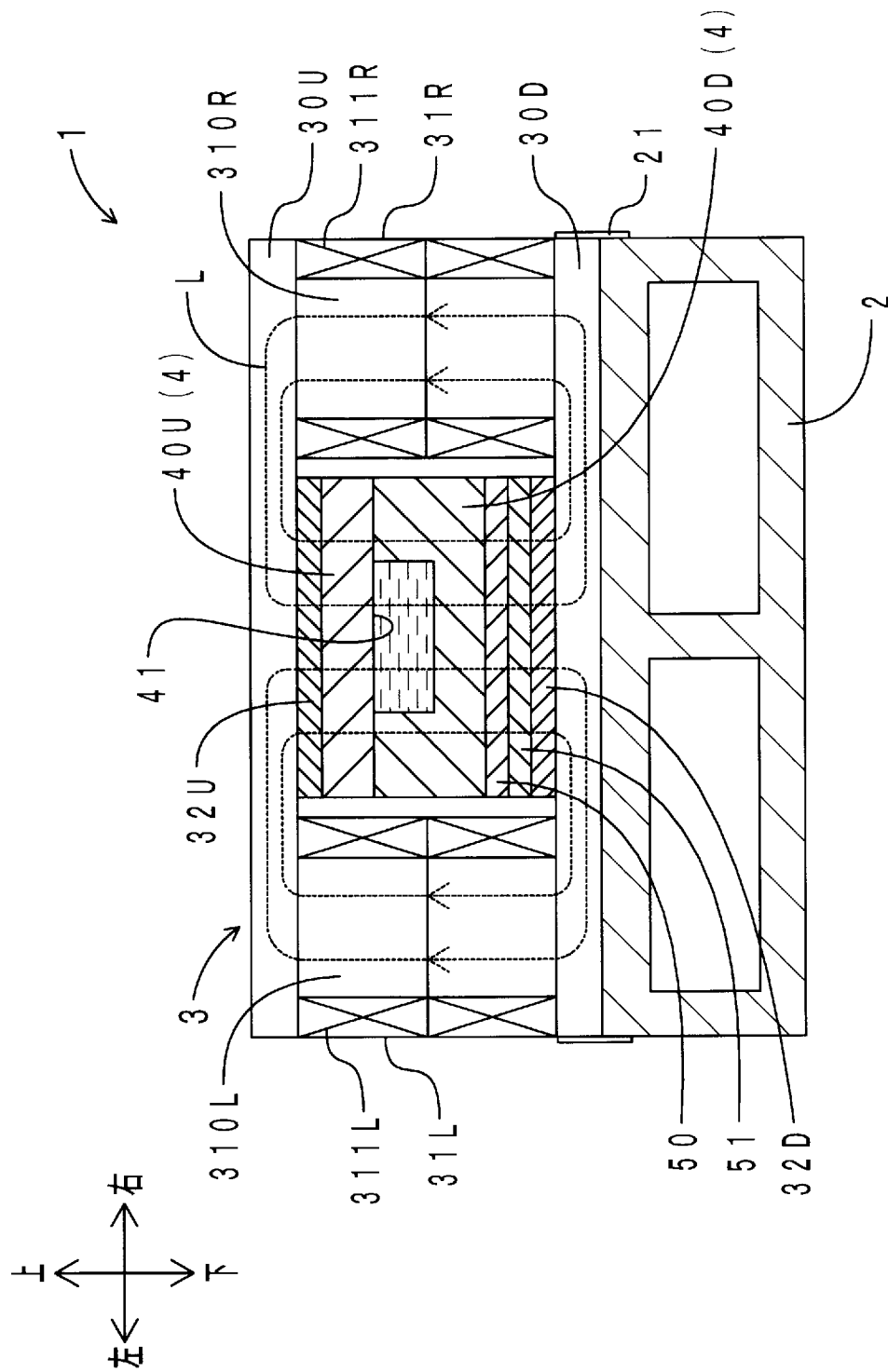
[図1]



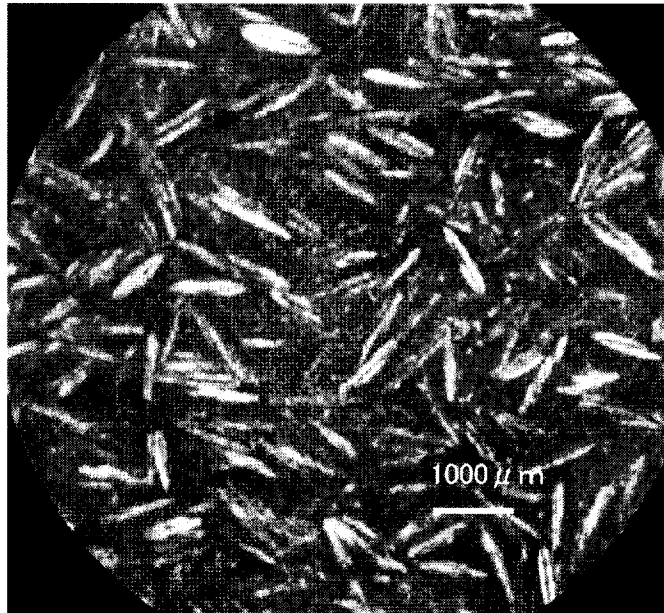
[図2]



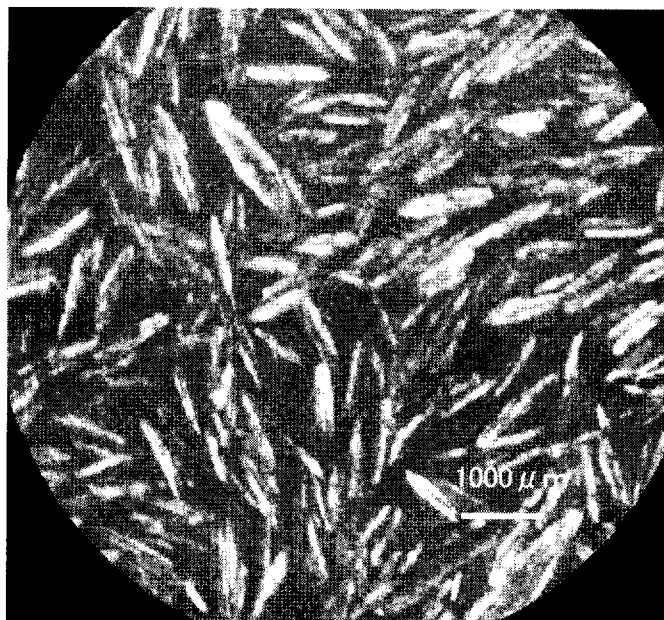
[図3]



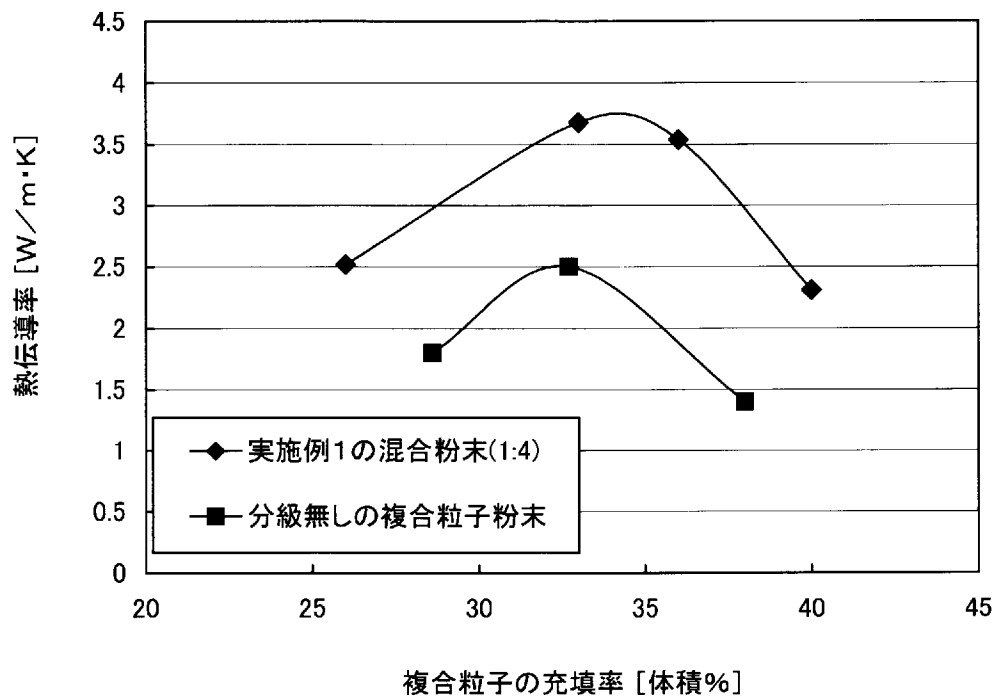
[図4]



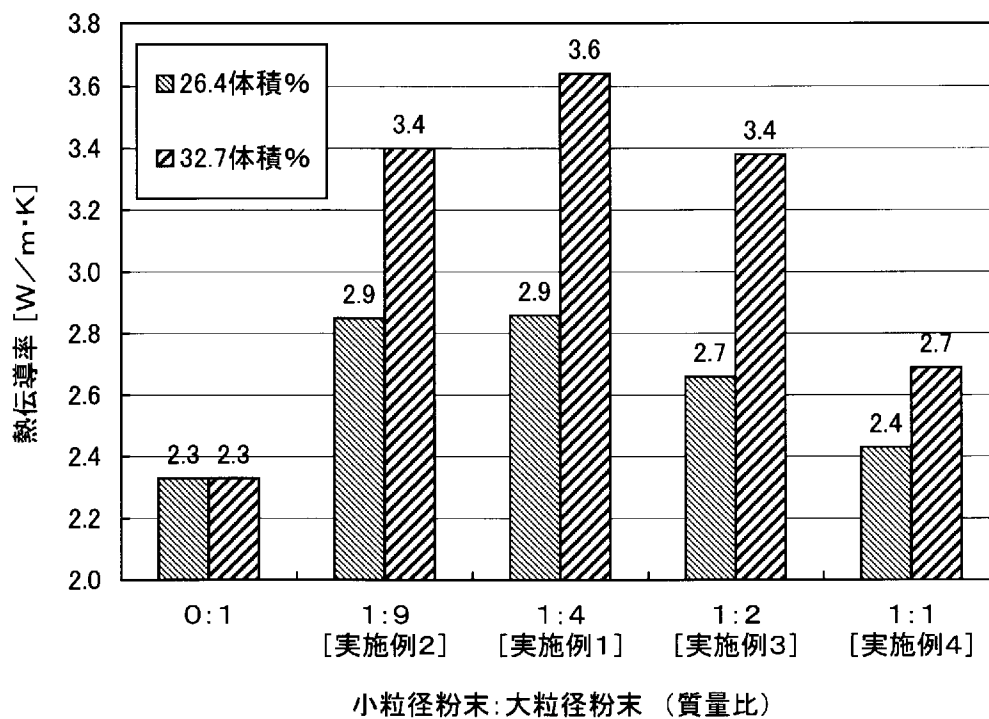
[図5]



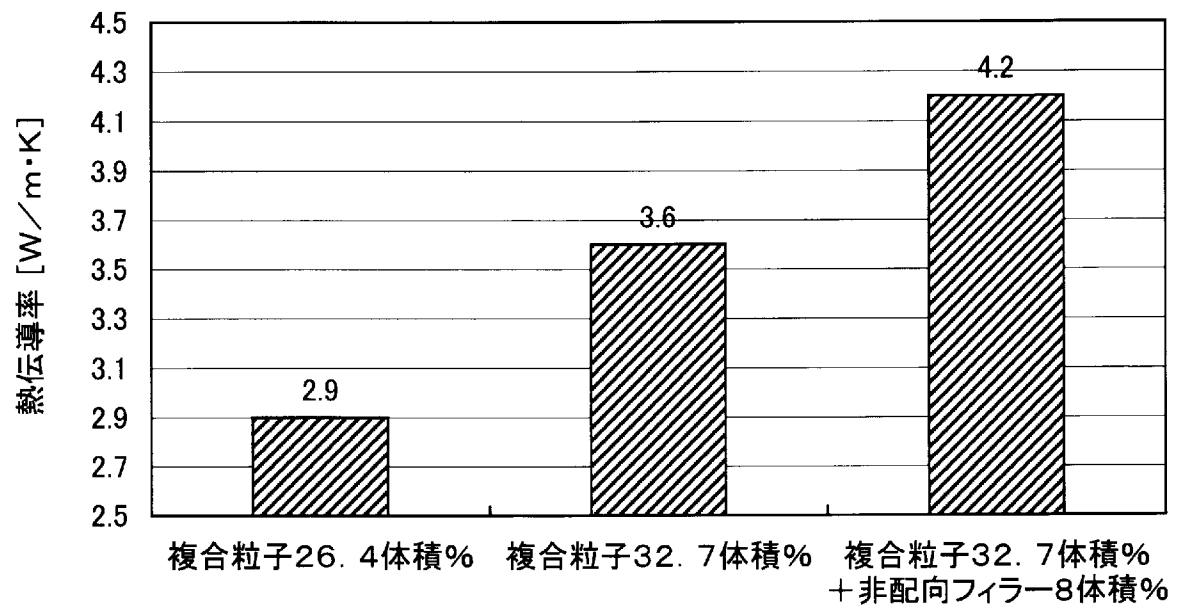
[図6]



[図7]



[図8]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/069952

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08J5/00(2006.01)i, B29C39/24(2006.01)i, B29C39/42(2006.01)i, C08K9/08(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i, B29K21/00(2006.01)n, B29K103/04(2006.01)n

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)

C08J5/00, B29C39/24, B29C39/42, C08K9/08, C08L101/00, H01L23/373, B29K21/00, B29K103/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

|                           |           |                            |           |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho       | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2014 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2014 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2014 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                 | Relevant to claim No. |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2013-79371 A (Tokai Rubber Industries, Ltd.),<br>02 May 2013 (02.05.2013),<br>claims; paragraph [0010]; table 1; drawings<br>(Family: none)     | 1-9                   |
| A         | JP 2013-120814 A (Satsuma Soken Kabushiki Kaisha),<br>17 June 2013 (17.06.2013),<br>claim 2; paragraphs [0001], [0014]; drawings<br>(Family: none) | 1-9                   |
| A         | JP 2010-186856 A (Sony Chemical & Information Device Corp.),<br>26 August 2010 (26.08.2010),<br>claims; paragraph [0021]<br>(Family: none)         | 1-9                   |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

|                                                                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                  |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| * Special categories of cited documents:                                                                                                                                | "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                                              |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance                                                                | "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                                                                     |
| "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date                                                                               | "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 |
| "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) | "&" document member of the same patent family                                                                                                                                                                                                    |
| "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                                                                  |                                                                                                                                                                                                                                                  |

Date of the actual completion of the international search  
17 October, 2014 (17.10.14)

Date of mailing of the international search report  
04 November, 2014 (04.11.14)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2014/069952

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                       | Relevant to claim No. |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 6-196884 A (Toshiba Corp.),<br>15 July 1994 (15.07.1994),<br>paragraph [0036]; fig. 1<br>(Family: none)                                               | 1-9                   |
| A         | JP 2007-70474 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki<br>Kaisha),<br>22 March 2007 (22.03.2007),<br>claim 2; paragraphs [0011], [0014], [0031]<br>(Family: none) | 1-9                   |
| A         | JP 2001-139733 A (Kitagawa Industries Co.,<br>Ltd.),<br>22 May 2001 (22.05.2001),<br>paragraph [0042]; drawings<br>(Family: none)                        | 1-9                   |
| A         | JP 2009-274929 A (Kabushiki Kaisha Micron),<br>26 November 2009 (26.11.2009),<br>claim 2; paragraphs [0001], [0005]<br>(Family: none)                    | 1-9                   |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08J5/00(2006.01)i, B29C39/24(2006.01)i, B29C39/42(2006.01)i, C08K9/08(2006.01)i,  
C08L101/00(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i, B29K21/00(2006.01)n, B29K103/04(2006.01)n

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08J5/00, B29C39/24, B29C39/42, C08K9/08, C08L101/00, H01L23/373, B29K21/00, B29K103/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |                     |
|-------------|---------------------|
| 日本国実用新案公報   | 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1 9 7 1 - 2 0 1 4 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 1 4 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 1 4 年 |

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                | 関連する<br>請求項の番号 |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| A               | JP 2013-79371 A（東海ゴム工業株式会社）2013.05.02, 【特許請求の範囲】、【0010】、【表1】、図面（ファミリーなし）         | 1-9            |
| A               | JP 2013-120814 A（薩摩総研株式会社）2013.06.17, 【請求項2】、【0001】、【0014】、図面（ファミリーなし）           | 1-9            |
| A               | JP 2010-186856 A（ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社）2010.08.26, 【特許請求の範囲】、【0021】（ファミリーなし） | 1-9            |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 7 . 1 0 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

0 4 . 1 1 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）  
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

村松 宏紀

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 0

4 F

4 1 6 9

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                           |                |
|-----------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                         | 関連する<br>請求項の番号 |
| A                     | JP 6-196884 A (株式会社東芝) 1994. 07. 15, 【0 0 3 6】、図1 (ファミリーなし)                               | 1-9            |
| A                     | JP 2007-70474 A (電気化学工業株式会社) 2007. 03. 22, 【請求項2】、【0 0 1 1】、【0 0 1 4】、【0 0 3 1】 (ファミリーなし) | 1-9            |
| A                     | JP 2001-139733 A (北川工業株式会社) 2001. 05. 22, 【0 0 4 2】、図面 (ファミリーなし)                          | 1-9            |
| A                     | JP 2009-274929 A (株式会社マイクロン) 2009. 11. 26, 【請求項2】、【0 0 0 1】、【0 0 0 5】 (ファミリーなし)           | 1-9            |