

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4301468号
(P4301468)

(45) 発行日 平成21年7月22日(2009.7.22)

(24) 登録日 平成21年5月1日(2009.5.1)

(51) Int.Cl.

B 3 2 B 25/20 (2006.01)

F 1

B 3 2 B 25/20

請求項の数 10 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願平11-192785	(73) 特許権者	000002060
(22) 出願日	平成11年7月7日(1999.7.7)		信越化学工業株式会社
(65) 公開番号	特開2001-18330(P2001-18330A)		東京都千代田区大手町二丁目6番1号
(43) 公開日	平成13年1月23日(2001.1.23)	(74) 代理人	100087631
審査請求日	平成14年8月26日(2002.8.26)		弁理士 滝田 清暉
審査番号	不服2004-11217(P2004-11217/J1)	(72) 発明者	高村 融
審査請求日	平成16年5月28日(2004.5.28)		東京都千代田区大手町2丁目6番1号 信 越化学工業株式会社 内
		(72) 発明者	中野 昭生
			群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子 材料技術研究所 内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シート及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

シリコンゴムシートの少なくとも一方の面に耐熱性樹脂フィルムがシリコン接着剤を介して接着されてなる複合シートであって、前記シリコンゴムシートが、(A)平均重合度が200以上のオルガノポリシロキサン100重量部、(B)水分を除いた揮発分が0.5重量%以下であるアセチレンブラック0~150重量部、(C)銀粉、銅粉、鉄粉、ニッケル粉から選択される少なくとも1種の金属粉、亜鉛、マグネシウム、アルミニウム、珪素、鉄から選択される少なくとも1種の酸化物、ホウ素、アルミニウム、珪素から選択される少なくとも1種の窒化物、並びに珪素の炭化物及び/又はホウ素の炭化物から成る群の中から選択された少なくとも1種の熱伝導性付与物質90~1,600重量部、及び、(D)硬化剤からなり、前記(B)成分と(C)成分の合計量が90~1,600重量部であるシリコンゴム組成物を成形してなる、150で3時間加熱した時の揮発分が0.2重量%以下のシートであることを特徴とする耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シート。

10

【請求項2】

(B)成分が10~100重合部、(C)成分が90~1,200重量部、(B)成分と(C)成分の合計量が100~1,300重量部である、請求項1に記載された耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シート。

【請求項3】

前記シリコンゴムシートが、更に、(A)成分100重量部に対して0.1~5重量

20

部の酸化セリウム粉末を含有する、請求項 1 又は 2 に記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 4】

前記耐熱性樹脂フィルムが、ガラス転移温度が 200 以上である樹脂フィルム又は融点が 300 以上のフッ素樹脂フィルムから選ばれる耐熱性樹脂フィルムである、請求項 1 ~ 3 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 5】

前記耐熱性樹脂フィルムの厚さが 5 ~ 300 μm の範囲である、請求項 1 ~ 4 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 6】

複合シートとしての全体の厚さが 0.1 ~ 10 mm の範囲である、請求項 1 ~ 5 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 7】

前記耐熱性樹脂フィルムが熱伝導性粉末を含有する、請求項 1 ~ 6 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 8】

前記熱伝導性粉末が、カーボンブラック、酸化アルミニウム、酸化マグネシウムから選択された少なくとも 1 種の粉末である、請求項 7 に記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 9】

熱圧着用シートとして使用される請求項 1 ~ 8 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート。

【請求項 10】

(A) 平均重合度が 200 以上のオルガノポリシロキサン 100 重量部、(B) 水分を除いた揮発分が 0.5 重量%以下であるアセチレンブラック 0 ~ 150 重量部、(C) 銀粉、銅粉、鉄粉、ニッケル粉から選択される少なくとも 1 種の金属粉、亜鉛、マグネシウム、アルミニウム、珪素、鉄から選択される少なくとも 1 種の酸化物、ホウ素、アルミニウム、珪素から選択される少なくとも 1 種の窒化物、並びに珪素の炭化物及び / 又はホウ素の炭化物から成る群の中から選択された少なくとも一種の熱伝導性付与物質 90 ~ 1,600 重量部、(B) 成分と (C) 成分の合計量 90 ~ 1,600 重量部、及び (D) 硬化剤からなるシリコーンゴム組成物をシートに成形し、これを 150 以上の温度で加熱して揮発分を除去した後、シリコーン接着剤を介して耐熱性樹脂フィルムを貼り合わせることを特徴とする、請求項 1 ~ 9 の何れかに記載された耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シートの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は耐熱熱伝導性複合シートに関し、特に、積層板やフレキシブル基板を成形する際の熱圧着シートとして、或いは液晶ディスプレイ等の電極の接続に用いる異方性導電膜用熱圧着シートとして好適な耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シート、及び、その製造方法に関する。

【0002】

【従来技術】

熱伝導性電気絶縁材料としては、従来から、シリコーンゴムに酸化ベリリウム、酸化アルミニウム、水酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛等の粉末を配合したもの（特開昭 47 - 32400 号参照）やシリコーンゴムに窒化ホウ素を配合し網目状の絶縁材で補強したもの（実開昭 54 - 184074 号参照）等が知られている。これらは、パワートランジスタ、サイリスタ、整流器、トランス、あるいは、パワー MOS や FET 等の発熱性部品の放熱絶縁材料として既に使用されている。しかしながら、このような材料を 200 以上の高温条件下で使用すると熱伝導性付与剤中の不純物や pH の影響により

10

20

30

40

50

、シリコンゴムが劣化するという欠点があった。

【 0 0 0 3 】

一方、プレス成形機を用いて積層板、或いはフレキシブルプリント基板を成形する際のシートや、液晶ディスプレイの電極端子部と駆動回路が搭載されたフレキシブルプリント基板の接続に用いる異方性導電膜を圧着機で熱圧着する際のシートとして、上記の熱伝導性電気絶縁シートが用いられている。例えば、特開平 5 - 1 9 8 3 4 4 号にはシリコンゴムに窒化ホウ素を配合しガラスクロスで補強したものが開示されており、特開平 6 - 3 6 8 5 3 号には、シリコンゴムに窒化ホウ素と導電性物質を配合し、ガラスクロスで補強して帯電防止性を付与したものが開示されているが、これらの場合にも、高温条件下では同様にシリコンゴムが劣化するという欠点があった。

10

【 0 0 0 4 】

特に最近においては、フレキシブルプリント基板や異方性導電膜の材質が高温成形タイプに変わり、さらに圧着サイクルを短縮して生産性を向上させるために成形温度が上昇してきており、熱伝導性電気絶縁材料としてのシリコンゴムシートの耐熱性と熱伝導性が重要になっている。そこで、特開平 7 - 1 1 0 1 0 号公報には、熱伝導性付与剤として、水分を除いた揮発分が 0 . 5 重量 % 以下であるカーボンブラックを用いることにより、3 0 0 以上で使用可能な耐熱性と良好な熱伝導性を有するシリコンゴムシート単体が提案されている。

【 0 0 0 5 】

しかしながら、この熱伝導性電気絶縁シートはシリコンゴムシート単体であるために強度が不足しており、連続使用した場合には破壊する恐れがある。またシリコンゴムの粘着性により圧着後にシートが加圧ツールや被圧着体に貼り付き、作業性が非常に悪くなるという問題があった。更に、3 0 0 以上の高温で使用した場合には、シリコンゴムシートに揮発分が存在すると液晶ディスプレイの電極端子部と駆動回路が搭載されたフレキシブルプリント基板の接続に用いる異方性導電膜を圧着機で熱圧着する際に、電極端子部及び起動回路の汚染が生ずるという欠点があった。このような弊害を避けるために、高温でシートを加熱処理することが一般的に行われているが、樹脂フィルムとの積層シートを、1 5 0 以上の高温で加熱すると、ゴムの収縮によりシートに反りが発生し、作業性が著しく悪くなるという欠点があった。

20

【 0 0 0 6 】

そこで本発明者等は、良好な熱伝導性を有すると共に十分な強度があり、また、ゴムの粘着性による加圧ツール等への密着がなく作業性の良い耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シートについて鋭意検討した結果、水分を除いた揮発分が 0 . 5 重量 % 以下である アセチレン ブラックと、銀粉、銅粉、鉄粉、ニッケル粉から選択される少なくとも 1 種の金属粉、亜鉛、マグネシウム、アルミニウム、珪素、鉄から選択される少なくとも 1 種の酸化物、ホウ素、アルミニウム、珪素から選択される少なくとも 1 種の窒化物、並びに珪素の炭化物及び / 又はホウ素の炭化物から成る群の中から選択された少なくとも 1 種の熱伝導性付与物質を特定の割合で配合したシリコンゴムシートに、シリコン接着剤を用いて耐熱性樹脂フィルムを接着し、補強することにより、良好な結果を得ることができることを見出し、本発明に到達した。

30

40

【 0 0 0 7 】

【 発明が解決しようとする課題 】

従って本発明の目的は、熱伝導性に優れると共に十分な強度がある上、ゴムの粘着性による加圧ツール等への密着がなく、作業性にも優れた耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シート及びその製造方法を提供することにある。

【 0 0 0 8 】

【 課題を解決するための手段 】

本発明の上記の目的は、シリコンゴムシートの少なくとも一方の面に耐熱性樹脂フィルムがシリコン接着剤を介して接着されてなる複合シートであって、前記シリコンゴムシートが、(A) 平均重合度が 2 0 0 以上のオルガノポリシロキサン 1 0 0 重量部、(

50

B) 水分を除いた揮発分が 0.5 重量% 以下であるアセチレンブラック 0 ~ 150 重量部、(C) 銀粉、銅粉、鉄粉、ニッケル粉から選択される少なくとも 1 種の金属粉、亜鉛、マグネシウム、アルミニウム、珪素、鉄から選択される少なくとも 1 種の酸化物、ホウ素、アルミニウム、珪素から選択される少なくとも 1 種の窒化物、並びに珪素の炭化物及び / 又はホウ素の炭化物から成る群の中から選択された少なくとも一種の熱伝導性付与物質 90 ~ 1,600 重量部、及び、(D) 硬化剤からなり、前記 (B) 成分と (C) 成分の合計量が 90 ~ 1,600 重量部であるシリコンゴム組成物を成形してなる、150 で 3 時間加熱した時の揮発分が 0.2 重量% 以下のシートであることを特徴とする耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シート、及び、その製造方法によって達成された。

【0009】

10

本発明の構成の内、(A) 成分である平均重合度 200 以上、好ましくは 3,000 ~ 20,000 のオルガノポリシロキサンは、平均組成式 $R_nSiO_{(4-n)/2}$ (n は 1.95 ~ 2.05 の正数) で表される。式中の R は置換または非置換の一価炭化水素基を表し、具体的にはメチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基あるいはこれらの水素原子が部分的に塩素原子、フッ素原子などで置換されたハロゲン化炭化水素基等が例示される。R の 0.001 ~ 5 モル%、特に 0.01 ~ 1 モル% がアルケニル基であることが好ましい。

【0010】

一般的にはオルガノポリシロキサンの主鎖がジメチルシロキサン単位からなるものあるいはこのオルガノポリシロキサンの主鎖にビニル基、フェニル基、トリフルオロプロピル基などを導入したものが好ましい。また分子鎖末端はトリオルガノシリル基または水酸基で封鎖されたものであればよいが、このトリオルガノシリル基としては、トリメチルシリル基、ジメチルビニルシリル基、トリビニルシリル基などが例示される。なお、この成分の 25 における粘度は 300 c s 以上であることが好ましい。また、重合度が 200 以下では、硬化後の機械的強度が劣り脆くなる。

20

【0011】

(B) 成分の、水分を除いた揮発分が 0.5 重量% 以下、好ましくは 0.4 重量% 以下であるアセチレンブラックは、複合シートの耐熱性及び熱伝導性を向上させるとともに機械的強度を向上させるだけでなく、シリコンゴムシートを導電化して帯電防止性を付与するものである。

30

【0012】

本発明における揮発分の測定方法は JISK6221 の“ゴム用カーボンブラック試験方法”に記載されているものであり、具体的にはるつぼの中にアセチレンブラックを規定量入れ、950 で 7 分間加熱した後の揮発減量を測定するものである。

この (B) 成分の配合量は、(A) 成分 100 重量部に対して 0 ~ 150 重量部、特に 10 ~ 100 重量部であることが好ましく、20 ~ 80 重量部の範囲で使用することが最も好ましい。150 重量部以上になると配合が困難になるうえ成形加工性が悪くなる。

【0013】

本発明においては、(C) 成分として、銀粉、銅粉、鉄粉、ニッケル粉から選択される少なくとも 1 種の金属粉、亜鉛、マグネシウム、アルミニウム、珪素、鉄から選択される少なくとも 1 種の酸化物、ホウ素、アルミニウム、珪素から選択される少なくとも 1 種の窒化物、並びに珪素の炭化物及び / 又はホウ素の炭化物から成る群の中から選択された少なくとも一種の熱伝導性付与物質を使用する。

40

【0014】

この (C) 成分の配合量は、(A) 成分 100 重量部に対して 90 ~ 1,600 重量部使用する必要があり、特に 90 ~ 1,200 重量部の範囲で使用することが好ましい。1,600 重量部以上になると配合が困難になるうえ成形加工性が悪くなる。本発明における (B) 成分と (C) 成分の合計配合量は 90 ~ 1,600 重量部であり、90 ~ 1,200 重量部であることが好ましく、特に 90 ~ 1,000 重量部の範囲で使用することが

50

好ましい。また、耐熱性を重視する場合には、アセチレンブラックの使用量を多くすることが好ましい。

【0015】

(D)成分としての硬化剤は、通常シリコーンゴムの硬化に使用されている公知のものの中から適宜選択することができる。これらの硬化剤の例としては、ラジカル反応に使用されるジ-*t*-ブチルパーオキサイド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、ジクミルパーオキサイドなどの有機過酸化物、付加反応硬化剤として、(A)成分のオルガノポリシロキサンがアルケニル基を2個以上有する場合に対しては、ケイ素原子に結合した水素原子を1分子中に2個以上含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金系触媒とからなるもの、縮合反応硬化剤として、(A)成分のオルガノポリシロキサンがシラノール基を2個以上含有する場合に対しては、アルコキシ基、アセトキシ基、ケトオキシム基、プロペノキシ基などの加水分解性の基を2個以上有する有機ケイ素化合物等が例示され、ラジカル反応及び/又は付加反応で硬化させることが好ましい。

10

【0016】

これらの添加量は通常のシリコーンゴムの場合と同様にすればよいが、ラジカル反応の場合には有機過酸化物を(A)成分100重量部に対して0.1~10重量部、付加反応の場合にはオルガノハイドロジェンポリシロキサンのSiH基が(A)成分のアルケニル基に対して0.5~5モル%となる量及び白金系触媒が1~2,000ppmとなる量使用することが好ましい。

20

【0017】

本発明においては、更に、このシリコーンゴム組成物に酸化セリウム粉末を添加することにより更に耐熱性を向上させることができる。この添加量は、(A)成分100重量部に対して0.1~5重量部の範囲が好ましく、5重量部を越えると反対に耐熱性が低下することがある。また、この酸化セリウム粉末のBET比表面積は50m²/g以上の比較的比表面積の大きなものを用いることが好ましい。

【0018】

本発明で使用されるシリコーンゴム組成物には、必要に応じてクレイ、炭酸カルシウム、けいそう土等の充填剤、低分子シロキサンエステル、シラノール基含有低分子シロキサン等の分散剤、シランカップリング剤、チタンカップリング剤等の接着付与剤、難燃性を付与する白金族金属系触媒、ゴムコンパウンドのグリーン強度を上げるテトラフルオロポリエチレン粒子などを添加してもよい。尚、本発明のシリコーンゴム組成物の配合は、上記成分を二本ロール、ニーダー、バンバリーミキサー、プラネクリーミキサー等の混合機を用いて混練りすればよいが、硬化剤は使用する直前に添加することが好ましい。

30

【0019】

本発明で使用する耐熱性樹脂フィルムとしては、本発明の熱伝導性シリコーンゴム複合シートが300℃付近の温度でも使用されるため、高温において機械的強度及び離形性等に優れている必要がある。従って、ガラス転移点が200℃以上である芳香族ポリイミド、ポリアミドイミド、芳香族ポリアミド、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルイミド等の樹脂フィルム、融点が300℃以上のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)あるいはテトラフルオロエチレンパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体(PFA)等のフッ素樹脂フィルムが利用できる。

40

【0020】

これらの市販品としては、芳香族ポリアミドとして市販されているカプトン(商品名、東レデュポン株式会社製)、アピカル(商品名、鐘淵化学工業株式会社製)、ユーピレックス(商品名、宇部興産株式会社製)、芳香族ポリアミドとして市販されているアラミカ(商品名、旭化成工業株式会社)、テフロン(商品名、デュポン・ジャパン・リミテッド製)、ニトフロン(商品名、日東電工株式会社製)等がある。特に、ガラスクロス等で補強したタイプのものが強度の面から好ましい。

【0021】

50

更に、カーボンブラックを配合することにより電気伝導性を付与した耐熱性樹脂フィルムを使用したり、あるいは、酸化アルミニウムや酸化マグネシウム等の熱伝導性粉末を配合することにより熱伝導性を付与した耐熱性樹脂フィルムを利用することも好ましい。熱伝導性を付与した耐熱性樹脂フィルムとしては、カプトンMT（商品名、前出）が市販されている。

【0022】

本発明で使用する耐熱性フィルムの厚さは5～300 μ mの範囲であることが好ましく、特に10～100 μ mの範囲であることが好ましい。厚さが薄すぎると、フィルム自体の機械的強度が小さいため、シート成形時あるいは圧着シートとしての使用中に切断する恐れがあり、厚すぎると、熱の伝わり方が悪くなり熱圧着が不十分になるという問題が生じることがある。

10

【0023】

本発明のシリコンゴムシートを成形する方法としては、硬化剤までを配合したシリコンゴム組成物をカレンダーあるいは押出し機で所定の厚さに分出してから加熱硬化させる方法、液状のシリコンゴム組成物あるいはトルエン等の溶剤に溶解して液状化したシリコンゴム組成物を、キャリアフィルム上にコーティングしてから硬化させ、次いでフィルムから剥離する方法等があげられる。本発明においては、150℃で3時間加熱した時の揮発分を0.2重量%以下、好ましくは0.1重量%以下にするために、高温でこのシリコンゴムシートを熱処理することが好ましい。本発明においては、上記方法で成形されたシートを、乾燥機や連続加熱炉の中で、150℃以上の温度で熱処理することが好ましい。

20

【0024】

このようにして得られたシリコンゴムシートと耐熱性樹脂フィルムを接着させるに際しては、耐熱性樹脂フィルムにプライマーを塗布しておくことが好ましい。またフッ素樹脂フィルムを用いる場合には、予めナトリウム-ナフタレン溶液等でエッチング処理し、耐熱性樹脂フィルムに接着性を付与しておくことが好ましい。

【0025】

シリコンゴムシートと耐熱性樹脂フィルムを接着させるために、本発明においてはシリコン接着剤を用いる。このようなシリコン接着剤としては、接着助剤を添加した、液状の1液型、2液型、3液型シリコンゴムや、初期に粘着性があり室温で放置又は加熱することにより接着する接着用のシリコンワニスが挙げられる。接着性やコーティング容易性の観点から、特に接着用のシリコンワニスが好ましい。

30

【0026】

本発明においては、耐熱性樹脂フィルムに、ナイフコーター、ロールコーター、リバースコーター、ドクターナイフコーター等により、シリコン接着剤を好ましくは10～50 μ mの厚さに塗布した後、乾燥しまたはそのままの状態ですりこんでシリコンゴムシートをラミネートすることにより、シリコンゴムシートと芳香族ポリイミド、ポリアミドイミド、PTFE等の耐熱性フィルムを複合化したシリコンゴム複合シートを得ることが好ましい。

【0027】

このようにして成形したシリコンゴム複合シートの厚さは0.1～10mmの範囲であることが好ましい。厚さが薄すぎると被圧着体に充分追従できないので圧力のかかり方が不均一になることがある。一方厚すぎると熱伝導性が悪くなることがある。また使用目的により耐熱性樹脂フィルムをシリコンゴムシートの片面に設けるだけでなく、両面に設けることもできる。

40

【0028】

【発明の効果】

本発明の耐熱熱伝導性シリコンゴム複合シートは、ゴムの粘着性がない上、耐熱性樹脂フィルムが貼着されており十分な強度を有するので作業性が良好である。また、揮発分が0.2重量%以下であるため、熱圧着の際に電極端子部や駆動回路を汚染することがない。更にアセチレンブラックを配合した場合には静電気を溜めることがないので、使用時

50

のゴミやホコリの付着を防止することができる上、回路に搭載された電子部品を放電によって破壊することがない。

【 0 0 2 9 】

【実施例】

以下、本発明を実施例によって更に詳述するが、本発明はこれによって限定されるものではない。

【 0 0 3 6 】

実施例 1 .

(A) 成分としてジメチルシロキサン単位 99 . 85 モル %、メチルビニルシロキサン単位 0 . 15 モル % からなる平均重合度 8 , 000 のメチルビニルポリシロキサン 50 重量部と、ジメチルポリシロキサン単位 99 . 5 モル %、メチルビニルシロキサン単位 0 . 5 モル % からなる平均重合度 8 , 000 のメチルビニルポリシロキサン 50 重量部からなるベースに、(C) 成分として平均粒子径が 4 μm のアルミナ 450 重量部および比表面積が 140 m^2/g の酸化セリウム粉末 0 . 5 重量部を二本ロールで配合し、混練りして均一化した。

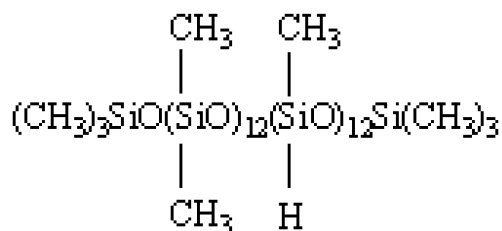
【 0 0 3 7 】

このシリコーンゴムコンパウンド 100 重量部に対して、塩化白金酸のイソプロピルアルコール溶液 (白金量 : 2 重量 %) 0 . 1 重量部、アセチレン性アルコールである 3 - メチル - 1 - ブチン - 3 - オール 0 . 05 重量部、および、下式で示されるメチルハイドロジェンポリシロキサン 1 . 2 重量部を添加し、二本ロールでよく混練りして硬化性シリコーンゴム組成物を調製し、カレンダーロールにより厚さが 0 . 3 mm のシリコーンゴムシートを得た。このシートを 200 で 4 時間加熱処理した (150 で 3 時間加熱した時の揮発分は 0 . 12 重量 %)。一方、KR105 (商品名 : 信越化学工業株式会社製、接着用シリコーンワニス) 100 部に T12 (商品名 : 信越化学工業株式会社製、接着用シリコーンワニス用硬化触媒) を 3 部添加してなる接着剤を、厚さが 12 μm のカーボンブラックを配合した導電性カプトンフィルムにコンマコーターにより 50 μm の厚さとなるように塗布し、60 の乾燥炉に 3 分間通してから、圧着ロールを用いて前記シリコーンゴムシートと貼り合わせ、本発明の耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シートを作製した。

【 0 0 3 8 】

比較例 1 .

(A) 成分としてジメチルシロキサン単位 99 . 85 モル %、メチルビニルシロキサン単位 0 . 15 モル % からなる平均重合度 8 , 000 のメチルビニルポリシロキサン 100 重量部に、(B) 成分として平均粒子径が 40 nm で揮発分が 0 . 1 重量 % のアセチレンブラック 50 重量部、および、補強性シリカ Aerosil R - 972 (商品名、Degussa 社製) 5 重量部を二本ロールで配合し、混練りして均一化した。このシリコーンゴムコンパウンド 100 重量部に対して、塩化白金酸のイソプロピルアルコール溶液 (白金量 : 2 重量 %) 0 . 1 重量部、アセチレン性アルコールである 3 - メチル - 1 - ブチン - 3 - オール 0 . 05 重量部、および、下式で示されるメチルハイドロジェンポリシロキサン 1 . 2 重量部を添加し、二本ロールでよく混練りして調製した硬化性シリコーンゴム組成物をカレンダーロールを用いて加工し、厚さが 0 . 3 mm のシリコーンゴム単体のシートを作製した。



【 0 0 3 9 】

比較例 2 .

(B) 成分として、平均粒径が 30 nm で揮発分が 0 . 7 重量 % のファーネスブラック

50重量部を配合したこと以外は、比較例1と全く同様にして硬化性シリコーンゴム組成物を調整した。次に、耐熱性樹脂フィルムとして厚さが12 μ mの芳香族ポリイミドフィルム（カプトン：商品名、前出、ガラス転移点350以上）にプライマーC（商品名、信越化学工業株式会社製）を塗布してから、室温で30分間乾燥した。

一方、カレンダーロールを用いて前記シリコーンゴム組成物を厚さが0.30mmとなるように分出ししてから、150で3分間乾燥炉を通してシートを硬化させ、さらに乾燥機中で、200で4時間加熱して揮発分を除いた。次いで、プライマーを塗布した前記カプトンフィルムに、シリコーン接着剤としてKE-109A/B（商品名、信越化学工業株式会社製）をロールコーターにより50 μ mの厚さとなるように塗布した後、前記したシリコーンシートをラミネートロールで貼り合わせ、160の加熱炉の中を5分間通して、厚さが12 μ mのカプトンフィルムを貼り合わせた熱伝導性シリコーンゴム複合シートを作製した。

【0040】

比較例3.

（B）成分として、平均粒径が30nmで揮発分が1.5重量%のファーンズブラック50重量部を配合すると共に、耐熱性樹脂フィルムとして厚さが12 μ mの芳香族ポリイミドフィルム（アラミカ：商品名、前出、ガラス転移点なし）を用いたこと以外は、比較例2と全く同様にして厚さが12 μ mのアラミカフィルムを貼り合わせ、熱伝導性シリコーンゴム複合シートを作製した。

【0041】

比較例4.

（B）成分として平均粒子径が40nmで揮発分が0.1重量%のアセチレンブラック50重量部、および、補強性シリカAerosilR-972（商品名、Degussa社製）5重量部を用い、樹脂フィルムとして厚さが30 μ mのポリフェニレンサルファイドフィルム（ガラス転移温度90）を用いたこと以外は、比較例2と全く同様にして熱伝導性シリコーンゴム複合シートを作製した。

【0042】

実施例1及び比較例1～4で作製したシートのフィルム側を上に向け、その下に厚さが30 μ mのテフロンフィルム、次に25 μ mピッチの銅電極を設けた2枚のフレキシブルプリント基板によって厚さが22 μ mの異方性導電膜をはさんだもの（上下の銅電極の位置を合わせる）を置いてから圧着機に設置し、340に加熱した加圧ツールで40kgf/cm²の圧力で20秒間フィルム側から圧着した。

【0043】

この圧着を繰り返し、加圧ツールへのシートの密着状態、および均一な圧力で異方性導電膜を加熱硬化させることができなくなるまでの回数を判定した。この回数は上下のフレキシブルプリント基板の銅電極間の導通により確認した。結果は表1に示した通りである。

【0044】

【表1】

	加圧ツールへの密着	耐久回数（回）
実施例1	なし	61
比較例1	密着	48
比較例2	なし	24
比較例3	なし	14
比較例4	フィルムが溶融	—

表1の結果から、本発明の耐熱熱伝導性シリコーンゴム複合シートの有効性が実証された。尚、比較例1は1回ごとに加圧ツールにシートが貼り付くので非常に作業性が悪かった。また、耐久テストにおいては、シートの破断により使用不能となった。

フロントページの続き

合議体

審判長 柳 和子

審判官 橋本 栄和

審判官 坂崎 恵美子

- (56)参考文献 特開平 7 - 1 1 0 1 0 (J P , A)
特開平 8 - 1 7 4 7 6 5 (J P , A)
特公平 6 - 6 6 9 9 (J P , B 2)
特公平 7 - 2 1 1 3 5 (J P , B 2)
特開平 6 - 3 2 9 9 0 9 (J P , A)
実開平 7 - 3 5 0 3 9 (J P , U)
伊藤邦雄編「シリコンハンドブック」(1 9 9 0 年 8 月 3 1 日、日刊工業新聞社発行) 3 1 5
~ 3 1 6 頁、3 8 8 頁

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B32B 1/00-35/00