



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2019년05월23일
(11) 등록번호 10-1981636
(24) 등록일자 2019년05월17일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08K 3/34 (2006.01) C01F 11/02 (2006.01)
C01F 5/02 (2006.01) C04B 35/04 (2006.01)
C04B 35/64 (2006.01) C08K 3/22 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08K 3/34 (2013.01)
C01F 11/02 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2016-7009950
(22) 출원일자(국제) 2014년09월10일
심사청구일자 2017년04월11일
(85) 번역문제출일자 2016년04월15일
(65) 공개번호 10-2016-0058865
(43) 공개일자 2016년05월25일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2014/073880
(87) 국제공개번호 WO 2015/041110
국제공개일자 2015년03월26일
(30) 우선권주장
JP-P-2013-191546 2013년09월17일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
JP08268713 A*
JP2011001452 A*
JP2010173913 A
JP2004027177 A
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
우베 마테리알즈 가부시카이가이사
일본 야마구찌쎄 우베시 오오아자 고구시 1985 반쎄
(72) 발명자
니시다 나오토
일본 야마구찌쎄 우베시 오오아자 고구시 1985반쎄 우베 마테리알즈 가부시카이가이사 내
야마구치 세이지
일본 야마구찌쎄 우베시 오오아자 고구시 1985반쎄 우베 마테리알즈 가부시카이가이사 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
윤동열

전체 청구항 수 : 총 7 항

심사관 : 최춘식

(54) 발명의 명칭 열전도성 필러 및 이것을 포함하는 열전도성 수지 조성물

(57) 요약

적어도 산화마그네슘, 산화칼슘 및 산화규소를 함유하는 소결체를 포함하는 열전도성 수지 필러로서, 소결체의 전 조성 중에 포함되는 칼슘 원소를 산화칼슘(CaO)으로 환산한 몰수를 M_{Ca}, 소결체의 전 조성 중에 포함되는 규소 원소를 산화규소(SiO₂)로 환산한 몰수를 M_{Si}로 했을 때, 산화규소(SiO₂)에 대한 산화칼슘(CaO)의 M_{Ca}/M_{Si}로 나타나는 몰비가 0.1 이상, 2.0 미만의 범위 내인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러이다.

(52) CPC특허분류

C01F 5/02 (2013.01)
C04B 35/04 (2013.01)
C04B 35/64 (2013.01)
C08K 3/22 (2013.01)
C04B 2235/3208 (2013.01)
C04B 2235/3418 (2013.01)
C08K 2201/001 (2013.01)

(72) 발명자

요시다 아키라

일본 야마구찌쎄 우베시 오오아자 고구시 1985반쎄
우베 마테리알즈 가부시키가이샤 내

심마츠 사토시

일본 야마구찌쎄 우베시 오오아자 고구시 1985반쎄
우베 마테리알즈 가부시키가이샤 내

명세서

청구범위

청구항 1

수산화마그네슘, 산화칼슘, 산화규소를 적어도 포함하는 원료를 1400~2800℃의 범위 내에서 소성하여, 적어도 산화마그네슘, 산화칼슘 및 산화규소를 함유하는 소결체를 포함하는 열전도성 필러로서, 상기 소결체의 전(全) 조성 중에 포함되는 칼슘 원소를 산화칼슘(CaO)으로 환산한 몰수를 M_{Ca}, 상기 소결체의 전 조성 중에 포함되는 규소 원소를 산화규소(SiO₂)로 환산한 몰수를 M_{Si}로 했을 때, 상기 산화규소(SiO₂)에 대한 상기 산화칼슘(CaO)의 M_{Ca}/M_{Si}로 나타나는 몰비가 0.1 이상, 2.0 미만의 범위 내인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 산화마그네슘이 94.0~99.7질량%, 상기 산화칼슘이 0.1~1.5질량%, 상기 산화규소가 0.1~3.0질량%의 범위 내인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 열전도성 필러에 불가피하게 포함되는 B₂O₃가 0.1 질량% 이하인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 열전도성 필러의 메디안 지름(D50)으로 나타나는 입자 지름은 0.5~100 μm이고,

온도 85℃, 습도 85%에서 48시간 유지한 후의 하기 식(1)로 나타나는 질량 증가율이 0.5질량% 이하인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러:

식(1): 질량 증가율=(유지 후의 열전도성 필러의 질량 증가분/유지 전의 열전도성 필러의 질량)×100(%)

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 기재된 열전도성 필러와, 수지를 포함하는 것을 특징으로 하는 열전도성 수지 조성물.

청구항 6

제5항에 기재된 열전도성 수지 조성물의 제조방법으로서,

수산화마그네슘, 산화칼슘, 산화규소를 적어도 포함하는 원료를 1400~2800℃의 범위 내에서 소성하여, 적어도 산화마그네슘, 산화칼슘 및 산화규소를 함유하는 소결체를 포함하는 열전도성 필러를 수득하는 소성 공정과,

상기 열전도성 필러와 수지를 배합하는 공정을 포함하는 것을 특징으로 하는 열전도성 수지 조성물의 제조방법.

청구항 7

제5항에 기재된 열전도성 수지 조성물을 포함하는 물품으로서, 램프 소켓, 전장 부품, 히트 싱크(heat sink), 다이 패드, 프린트 배선 기판, 반도체 패키징용 부품, 냉각팬용 부품, 픽업 부품, 커넥터, 스위치, 베어링 및 케이스 하우징으로 이루어진 군에서 선택되는 것을 특징으로 하는 물품.

발명의 설명

기술 분야

본 발명은 열전도성 필러 및 이것을 포함하는 열전도성 수지 조성물에 관한 것으로서, 특히, 산화마그네슘을 주

[0001]

성분으로 하는 열전도성 필러 및 이것을 포함하는 열전도성 수지 조성물에 관한 것이다.

배경 기술

- [0002] 산화마그네슘은 열전도성이나 내열성 등이 뛰어난 무기 화합물이며, 수지 조성물의 열전도성을 높이기 위한 열전도성 필러로서 다양한 수지에 사용되고 있다. 산화마그네슘을 열전도성 필러로서 사용하는 경우에, 그 내습성(내소화성이라고도 함)이 문제가 된다. 종래는, 산화규소 등의 산화물이나 에폭시, 실리콘 등의 수지로 산화마그네슘의 표면을 피복함으로써 산화마그네슘에 대한 수분 접촉을 막고 있었다.
- [0003] 예를 들면 특허문헌 1에는, 전자 방출 소자의 산화마그네슘 필러를 산화규소(SiO_2)로 피복함으로써 전자 방출 소자의 열전도율을 높게 하는 것이 기재되어 있다. 또한 특허문헌 2에는, 산화마그네슘 분말 표면에 규소 등의 피복층을 형성함으로써 내습성 및 열전도성이 뛰어난 수지 조성물로 하는 것이 기재되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0004] (특허문헌 0001) 일본국 공개특허공보 2000-243225호(청구항 1, 단락 0015 등)
(특허문헌 0002) 일본국 공개특허공보 2004-27177호(청구항 1, 단락 0011 등)

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0005] 그러나 산화마그네슘의 표면에 피복층을 피복하는 방법으로는, 열전도성 필러의 제조가 번잡해져 생산성이 나쁘다는 문제가 있었다.
- [0006] 본 발명의 목적은, 내습성이 높고 생산성도 양호한 열전도성 필러 및 이것을 포함하는 열전도성 수지 조성물을 제공함에 있다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명자들은 이상의 목적을 달성하기 위해, 예의 검토한 결과, 산화마그네슘에 포함되는 산화규소와 산화칼슘의 몰비를 소정 범위 내로 함으로써, 표면을 피복하지 않아도 열전도성 필러의 내습성을 높게 할 수 있는 것을 찾아내어 본 발명을 완성시키기에 이르렀다.
- [0008] 즉, 본 발명은, 적어도 산화마그네슘, 산화칼슘 및 산화규소를 함유하는 소결체를 포함하는 열전도성 수지 필러로서, 상기 소결체의 전(全) 조성 중에 포함되는 칼슘 원소를 산화칼슘(CaO)으로 환산한 몰수를 M_{Ca} , 상기 소결체의 전 조성 중에 포함되는 규소 원소를 산화규소(SiO_2)로 환산한 몰수를 M_{Si} 로 했을 때, 상기 산화규소(SiO_2)에 대한 상기 산화칼슘(CaO)의 $\text{M}_{\text{Ca}}/\text{M}_{\text{Si}}$ 로 나타나는 몰비가 0.1 이상, 2.0 미만의 범위 내인 것을 특징으로 하는 열전도성 필러이다.
- [0009] 이러한 경우에, 상기 산화마그네슘이 94.0~99.7질량%, 상기 산화칼슘이 0.1~1.5질량%, 상기 산화규소가 0.1~3.0질량%의 범위 내인 것이 바람직하다.
- [0010] 또한 온도 85℃, 습도 85%에서 48시간 유지한 후의 하기 식(1)로 나타나는 질량 증가율이 0.5질량% 이하인 것이 바람직하다.
- [0011] 질량 증가율=(유지 후의 열전도성 필러의 질량 증가분/유지 전의 열전도성 필러의 질량) $\times 100(\%)$: 식(1)
- [0012] 또한 본 발명은, 상기의 어느 하나에 기재된 열전도성 필러와, 수지를 포함하는 열전도성 수지 조성물이다.

발명의 효과

- [0013] 본 발명에 의하면, 내습성이 높고 생산성도 양호한 열전도성 필러 및 이것을 포함하는 열전도성 수지 조성물을 제공할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0014] <열전도성 필러>
- [0015] 본 발명의 열전도성 필러(이하, 간단히 "열전도성 필러"라고 함)는, 적어도 산화마그네슘(MgO), 산화칼슘(CaO) 및 산화규소(SiO₂)를 함유하는 소결체인 것이 바람직하다.
- [0016] 열전도성 필러에는, 산화마그네슘(MgO), 산화규소(SiO₂), 산화칼슘(CaO) 외에, 이들이 반응한 화합물이 포함되어 있어도 된다.
- [0017] 열전도성 필러는, 산화규소(SiO₂)에 대한 산화칼슘(CaO)의 몰비(이하, Ca/Si비라고 함)가 0.1 이상, 2.0 미만의 범위 내이다. 여기서, 산화규소(SiO₂)의 몰수란, 열전도성 필러의 전 조성 중에 포함되는 규소 원소를 규소산화물(SiO₂)로 환산한 몰수(MSi)를 의미한다. 또한 산화칼슘(CaO)의 몰수란, 열전도성 필러의 전 조성 중에 포함되는 칼슘 원소를 칼슘 산화물(CaO)로 환산한 몰수(MCa)를 의미한다. 또한 Ca/Si비는 MCa/MSi로 표시되는 값이다.
- [0018] Ca/Si 비가 0.1을 하회하면, 산화규소의 비율이 상대적으로 높아지기 때문에 열전도성 필러의 강도가 낮아지기 쉽다. 한편, Ca/Si비가 2.0 이상이 되면, 산화칼슘의 비율이 상대적으로 높아지기 때문에 내습성이 낮아지기 쉽다. Ca/Si비는 0.4~1.5의 범위 내가 바람직하며, 0.8~1.2의 범위 내가 보다 바람직하다.
- [0019] 산화마그네슘의 함유량은, 열전도성 필러의 전 질량을 100질량%로 했을 때에 94.0~99.7질량%의 범위 내가 바람직하다. 산화마그네슘의 함유량이 94.0질량%를 하회하면, 열전도성 필러의 열전도율이 낮아지기 쉽다. 또한 산화마그네슘의 함유량이 99.7질량%를 상회하면, 상대적으로 다른 성분의 함유량이 낮아지기 때문에 내습성 등이 낮아지기 쉽다.
- [0020] 열전도성 필러로는, 그 밖의 원소나 화합물을 포함해도 되고, 예를 들면 B₂O₃, Al₂O₃, Fe₂O₃, Na₂SO₄ 등을 포함해도 된다. 또한 B₂O₃은 이온성 불순물이기도 하며 전자회로의 에러를 일으킬 가능성이 있기 때문에, 열전도성 필러 중의 함유량이 많으면 반도체 패키징용 부품 등의 전자기기 분야에 사용하기 위해서는 부적합한 면이 있다. B₂O₃의 함유량은 열전도성 필러의 전 질량을 100질량%로 했을 때에 0.2질량% 이하인 것이 바람직하고, 0.1질량% 이하인 것이 보다 바람직하며, 0.05질량% 이하인 것이 특히 바람직하다.
- [0021] 또한 열전도성 필러 중에 포함되는 각 산화물의 몰수나 몰비, 질량% 등의 값은, 유전 결합 플라즈마(ICP) 발광 분석 장치를 사용한 ICP법이나 EDTA 등의 킬레이트제를 사용한 킬레이트 적정법 등의 방법으로 측정할 수 있다. 또한 본 발명에서의 몰수나 몰비, 질량%의 값은, 후술하는 실시예에 기재한 ICP법과 동일한 방법으로 측정한 값으로 정의한다.
- [0022] 열전도성 필러의 형상은 특별히 제한은 없지만, 구 형상이나 관 형상인 것이 바람직하다. 이러한 형상인 것은, 열전도성 필러끼리가 접촉하여 열전도 패스가 형성되기 쉽기 때문에 열전도율이 높아지기 쉽다.
- [0023] 열전도성 필러의 입경은 특별히 제한은 없지만, 메디안 지름(D50)으로 나타나는 입자 지름은 0.5~100 μ m의 범위 내가 바람직하고, 1~80 μ m의 범위 내가 보다 바람직하며, 5~60 μ m가 특히 바람직하다. D50이 0.5 μ m 하회하면, 수지와 혼합하여 열전도성 수지 조성물로 했을 때에 점도가 상승하여 취급성이 나빠지기 쉬워지거나 한다. 한편, D50이 100 μ m를 초과하면 입자 지름이 지나치게 크기 때문에, 열전도성 수지 조성물의 외관을 손상시키거나 한다. 열전도성 필러의 입경은 파쇄, 분급(分級)을 조합함으로써 조정해도 된다.
- [0024] 열전도성 필러는 내습성이 뛰어나며, 구체적으로는 온도 85℃, 습도 85%에서 48시간 유지한 후의 하기 식(1)로 나타나는 질량 증가율이 0.5질량% 이하로 낮아지기 쉽다.
- [0025] 질량 증가율=(유지 후의 열전도성 필러의 질량 증가분/유지 전의 열전도성 필러의 질량) \times 100(%): 식(1)
- [0026] <열전도성 필러의 제조 방법>
- [0027] 상기의 열전도성 필러는 원료인 수산화마그네슘, 산화칼슘, 산화규소를 적어도 포함하는 혼합물인 것이 바람직하며, 혼합물을 고온에서 소성하는 소성 공정을 거침으로써 제조할 수 있다. 이하, 본 발명의 열전도성 필러의 제조 방법에 대해 설명한다.
- [0028] (1) 원료 조제

- [0029] 원료인 수산화마그네슘($Mg(OH)_2$), 산화칼슘(CaO), 산화규소(SiO_2)를 적어도 포함하는 혼합물이다. 수산화마그네슘의 제조 방법으로는, 해수와 석회를 반응시켜 생성하는 방법이나, 천연의 광물인 브루사이트(brucite)로부터 정제하는 방법 등을 들 수 있다. 또한 산화칼슘은 석회석 등으로부터 정제할 수 있고, 산화규소는 실리카 광물 등으로부터 정제할 수 있다. 원료 혼합물로는, 고순도로 정제한 수산화마그네슘, 산화칼슘 및 산화규소의 3개의 원료를 혼합하여 사용할 수 있다. 또한 원료로는, 수산화마그네슘에 불순물로서 포함되는 산화칼슘이나 산화규소를 사용함으로써, 상기한 바와 같이 정제한 산화칼슘이나 산화규소를 첨가하지 않아도 된다.
- [0030] 또한 칼슘이나 규소 등의 불순물량이 적은 고순도의 수산화마그네슘의 제조 방법에 대해서는, 예를 들면 일본국 공개특허공보 소59-190217호를 참조할 수 있다. 또한 산화칼슘이나 산화규소를 불순물로서 포함하는 수산화마그네슘에 대해서는, 최종적으로 함유되는 성분이 임의의 비율이 되도록 조정되면 되고, 해당 문헌에서 불순물을 제거하기 위한 이온 교환처리를 생략하는 등에 의해 제조하는 것이 가능하다. 원료의 혼합 방법으로는, 건식 혼합, 습식 혼합 모두 되고, 공지의 믹서를 사용하여 기계적으로 혼합하는 방법을 들 수 있다.
- [0031] (2) 소성 공정
- [0032] 혼합 공정에서 얻어진 혼합물을 고온에서 소성하는 공정이다. 소성은 전기로, 가스로, 로터리 킬른(rotary kiln) 등의 공지의 장치를 사용하여 실시할 수 있다. 소성 온도는 $1400\sim 2800^{\circ}C$ 의 범위 내에서 적절히 설정할 수 있지만, 바람직하게는 $1600\sim 2600^{\circ}C$, 보다 바람직하게는 $2000\sim 2400^{\circ}C$ 의 범위 내이다. 소성 온도가 $1400^{\circ}C$ 를 하회하면, 소성이 불충분하여 수산화마그네슘이 결정화되기 어렵고 저밀도가 되어 강도가 낮아지기 쉽다. 또한 소성 온도가 $2800^{\circ}C$ 를 상회하면, 산화마그네슘의 융점을 초과해 버린다.
- [0033] <열전도성 수지 조성물>
- [0034] 상기의 열전도성 필러는, 수지에 배합하여 수지 조성물의 열전도성을 높일 수 있다. 이하, 본 발명의 열전도성 수지 조성물(이하, 간단히 "열전도성 수지 조성물"이라고 함)에 대해 설명한다.
- [0035] 열전도성 수지 조성물에 배합되는 수지의 종류로는, 용도 등에 따라 적절히 설정할 수 있지만, 예를 들면 올레핀 수지나 아크릴계 수지 등의 열가소성 수지여도 되고, 에폭시 수지나 페놀 수지 등의 열변화성 수지여도 된다. 각 성분의 배합량은, 열전도성 수지 조성물의 전 질량을 100질량%로 했을 때에 열전도성 필러가 1~90질량부, 수지가 10~99질량부이다. 열전도성 필러의 배합량이 1질량부를 하회하면, 얻어지는 수지 조성물의 열전도율이 낮아지기 쉽다. 또한 열전도성 필러의 배합량이 90질량부를 상회하면, 열전도성 필러의 비율이 높아지기 때문에 제조 비용이 상승하는 것 외에, 수지 특성에 악영향을 끼치기 쉬워진다.
- [0036] 열전도성 수지 조성물은 수지와 열전도성 필러를 공지의 방법으로 혼합함으로써 제조할 수 있다. 또한 얻어진 열전도성 수지 조성물은, 압출 성형 등 공지의 방법으로 성형하여 원하는 형상으로 가공할 수 있다.
- [0037] 열전도성 수지 조성물은 내습성이 뛰어나며, 구체적으로는 온도 $85^{\circ}C$, 습도 85%에서 48시간 유지한 후의 하기식(2)로 나타나는 질량 증가율이 0.1질량% 이하로 낮아지기 쉽다.
- [0038] 질량 증가율=(유지 후의 열전도성 수지 조성물의 질량 증가분/유지 전의 열전도성 수지 조성물의 질량) \times 100(%): 식(2)
- [0039] 열전도성 수지 조성물은 각종 물품에 적용할 수 있는데, 특히 높은 열전도율과 내습성이 요구되는 물품에 대하여 바람직하게 사용할 수 있다. 이러한 물품으로는, 예를 들면 자동차 분야에서는 램프 소켓, 각종 전장 부품을 들 수 있다. 또한 전자기기 분야에서는 히트 싱크(heat sink), 다이 패드, 프린트 배선 기판, 반도체 패키징 부품, 냉각팬용 부품, 픽업 부품, 커넥터, 스위치, 베어링, 케이스 하우징 등을 들 수 있다.
- [0040] 실시예
- [0041] 이하, 본 발명을 실시예에 기초하여 구체적으로 설명하지만, 이들은 본 발명의 목적을 한정하는 것이 아니며, 또한 본 발명은, 이들 실시예에 한정되는 것이 아니다.
- [0042] 1. 평가 방법
- [0043] (1) 혼련에 사용한 물질
- [0044] (a) 열전도성 필러(MgO -A, -B, -C, -D)
- [0045] (b) 수지: 에틸렌에틸아크릴레이트(EEA)(우베마루젠 폴리에틸렌사 제품, ZE708)

2. 열전도성 필러의 제조

원료인 수산화마그네슘, 산화칼슘, 산화규소의 함유량을 조정한 혼합물을 로터리 킬른에서 1800℃로 30분 소성 함으로써 산화마그네슘 분말을 제조했다. 얻어진 분말은 200mesh의 체로 체별(sieving)하여 조립자(coarse particle)를 제거하고 입경을 고르게 하여, 이것을 열전도성 필러로 했다. 준비한 열전도성 필러는 4종류로, MgO-A부터 Mg-C까지를 실시예 1~3, MgO-D를 비교예 1로 했다. 각각의 성분을 표 1에 나타낸다. CaO와 SiO₂의 함유량은 JIS R 2212-4에 준하여 ICP법에 의한 분석에 의해 산출하고, Ca/Si비는 얻어진 CaO와 SiO₂의 함유량으로부터 물질량(몰수)을 계산하여 이것을 나눴으로써 구했다. 또한 닛키소 가부시킴이가이샤 제품 HRA형 마이크로트랙 입도분포 측정 장치를 사용하여 얻어진 열전도성 필러의 메디안 지름(D50)을 측정했다. 이들 결과도 표 1에 나타낸다.

표 1

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	비교예 1
샘플 명칭	MgO-A	MgO-B	MgO-C	MgO-D
D50 (μm)	50.2	46.2	53.1	31.4
MgO (%)	95.5	97.0	99.5	99.0
CaO (%)	1.05	0.99	0.25	0.60
SiO ₂ (%)	2.82	1.06	0.18	0.21
B ₂ O ₃ (%)	0.31	0.84	0.003	0.026
Ca/Si비(몰비)	0.4	1.0	1.5	3.1

3. 열전도성 필러의 내습성 시험

"2. 열전도성 필러의 제조"에서 제조한 열전도성 필러에 대해 내습성의 평가를 실시했다. 평가 방법은 EIAJ ED-4701/103에 규정되어 있는 신뢰성 시험(고온 고습 보존)에 준거하여 평가 시간을 48시간으로 설정하여 실시했다. 먼저, 열전도성 필러의 샘플 20g을 자성(磁性) 접시에 넣고 온도 85℃, 습도 85%의 항온항습조(야마토 카가쿠 제품 IW222)에 샘플이 들어간 자성 접시를 넣고 48시간 유지했다. 그 후, 항온항습조로부터 자성 접시를 꺼내고 샘플의 질량 증가율을 측정했다. 질량 증가율=(유지 후의 질량 증가분(g)/최초의 샘플 질량(20g))×100(%)으로 계산했다. 이 질량 증가율이 0.5% 미만인 것을 합격으로 했다. 그 결과를 표 2에 나타낸다.

표 2

	실시예 1-1	실시예 2-1	실시예 3-1	비교예 1-1
샘플 명칭	MgO-A	MgO-B	MgO-C	MgO-D
Ca/Si비(몰비)	0.4	1.0	1.5	3.1
질량 증가율(질량%)	0.18	0.27	0.36	0.79
합격 여부(0.5% 미만)	합격	합격	합격	불합격

4. 수지와 열전도성 필러의 혼련(열전도성 수지 조성물의 제조)

열전도성 필러를 EEA 수지에 대하여 100질량부의 배합비로 수지와 혼련했다. 배합 비율을 표 3에 나타낸다. 혼련은 혼련 장치(도요세이키 세이사쿠쇼 제품 라보플라스토밀(Labo Plastomill))를 사용하여 160℃에서 10분간을 실시했다. 혼련물을 165℃에서 히트 프레스하여 120mm×120mm×2mmT의 시험편을 제작했다.

표 3

	실시에 1-2	실시에 2-2	실시에 3-2	비교예 1-2
EEA	100	100	100	100
MgO-A	100			
MgO-B		100		
MgO-C			100	
MgO-D				100

[0054]

[0055]

5. 열전도성 수지 조성물의 내습성 평가

[0056]

"4. 수지와 열전도성 필러의 혼련(열전도성 수지 조성물의 제조)"에서 제작한 시험편을 50mm×50mm로 가공하여, "3. 열전도성 필러의 내습성 시험"과 동일하게, 이것을 온도 85℃, 습도 85%의 항온항습조 안에 넣고 48시간 유지했다. 그 후 샘플을 꺼내고 질량 증가율을 측정했다. 질량 증가율=(유지 후의 질량 증가분(g)/최초의 샘플 질량(g))×100(%)으로 계산했다. 이 질량 증가율이 0.1% 미만인 것을 합격으로 했다.

표 4

	실시에 1-3	실시에 2-3	실시에 3-3	비교예 1-3
샘플 명칭	MgO-A	MgO-B	MgO-C	MgO-D
Ca/Si비(몰비)	0.4	1.0	1.5	3.1
질량 증가율(질량%)	0.07	0.05	0.07	0.11
합격 여부(0.1% 미만)	합격	합격	합격	불합격

[0057]

[0058]

이상의 결과로부터, Ca/Si비가 0.1~2.0의 범위 내인 실시예 1~3은, 열전도성 필러, 열전도성 수지 조성물 모두 습열 조건하에서의 질량 증가율이 비교예 1과 비교하여 대폭 낮고 내습성이 뛰어난 것을 알았다. 한편, Ca/Si비가 2.0을 초과하는 비교예 1은, 열전도성 필러, 열전도성 수지 조성물 모두 실시예 1~3과 비교하여 질량 증가율이 대폭 높아지고 내습성이 극단적으로 저하되는 것을 알았다.