

**(19) 대한민국특허청(KR)**
(12) 공개특허공보(A)**(11) 공개번호** 10-2020-0135992
(43) 공개일자 2020년12월04일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 83/04 (2006.01) *C08G 77/12* (2006.01)
C08G 77/20 (2006.01) *C08K 3/04* (2006.01)
C08K 5/14 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C08L 83/04 (2013.01)
C08G 77/12 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2020-7030101
(22) 출원일자(국제) 2019년03월14일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2020년10월20일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2019/010477
(87) 국제공개번호 WO 2019/181713
국제공개일자 2019년09월26일
- (30) 우선권주장
JP-P-2018-056869 2018년03월23일 일본(JP)

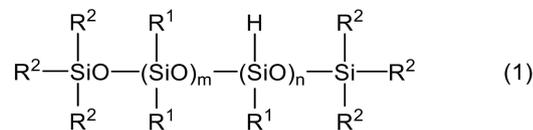
- (71) 출원인
신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤
일본 도쿄도 지요다꾸 오테마치 2쥬메 6방 1고
- (72) 발명자
토야 와타루
일본 3790224 군마켄 안나카시 마츠이다마치 히토미 1반지 10 신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤
실리콘 텐시 자이료 기쥬즈 켄큐쇼 내
- (74) 대리인
특허법인와이에스장

전체 청구항 수 : 총 6 항

(54) 발명의 명칭 **실리콘 조성물****(57) 요약**

(A) 1 분자 중에 적어도 2개의 지방족 불포화 탄화수소기를 가지고, 25℃에서의 동점도가 60~100,000mm²/s인 오가노폴리실록산,

(B) 하기 일반식 (1)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산,



(R¹은 탄소수 1~6의 알킬기, R²는 R¹ 또는 수소 원자, n은 2~40, m은 0~98의 정수이며, n+m은 5≤n+m≤100.)

(C) 평균 두께 100nm 이하로 박편화된 흑연 분말,

(D) 10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 열전도성 충전제,

(E) 백금족 금속 촉매,

(G) 상기 (A) 성분 및 (B) 성분을 분산 또는 용해할 수 있는 비점 160~360℃의 미휘발성 이소파라핀 화합물을 함유하는 실리콘 조성물이, 종래의 실리콘 그리스에 비해, 높은 열전도율을 가지고, 또한 취급성이 양호한 실리콘 그리스를 공급할 수 있다.

(52) CPC특허분류

C08G 77/20 (2013.01)

C08K 3/04 (2013.01)

C08K 5/14 (2013.01)

C08L 2205/025 (2013.01)

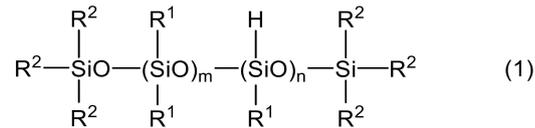
명세서

청구범위

청구항 1

(A) 1 분자 중에 적어도 2개의 지방족 불포화 탄화수소기를 가지고, 25℃에서의 동점도가 60~100,000mm²/s인 오가노폴리실록산: 100질량부,

(B) 하기 일반식 (1)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산: 조성물 중의 규소 원자 결합 알케닐기 1몰에 대하여 규소 원자 결합 수소 원자가 0.5~3몰이 되는 양,



(식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, R²는 서로 독립적으로 R¹ 또는 수소 원자이고, n은 2~40의 정수, m은 0~98의 정수이며, n+m은 5≤n+m≤100이다.)

(C) 평균 두께 100nm 이하로 박편화된 흑연 분말: 1~50질량부,

(D) 10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 열전도성 충전제: 100~4,000질량부,

(E) 백금족 금속 촉매: 유효량,

(G) 상기 (A) 성분 및 (B) 성분을 분산 또는 용해할 수 있는 비점 160~360℃의 미휘발성 이소파라핀 화합물: 실리콘 조성물 전체량의 0.1~20질량%

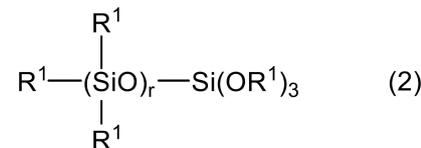
를 함유하는 실리콘 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, (F) 반응제어제를 (A) 성분 100질량부에 대하여 0.05~5질량부 더 함유하는 것을 특징으로 하는 실리콘 조성물.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, (H) 하기 일반식 (2)

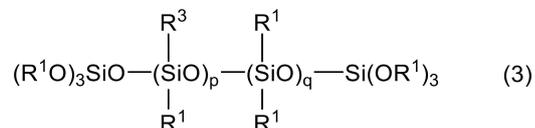


(식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이며, r은 5~100의 정수이다.)

로 표시되는 가수분해성 알킬 폴리실록산을 (A) 성분 100질량부에 대하여 1~400질량부 더 함유하는 것을 특징으로 하는 실리콘 조성물.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, (I) 하기 일반식 (3)



(식 중, R^1 은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, R^3 은 독립적으로 탄소수 2~6의 알케닐기이고, p 는 1~20의 정수, q 는 0~99의 정수이며, $p+q$ 는 $5 \leq p+q \leq 100$ 이다.)

으로 표시되는 가수분해성 오가노폴리실록산을 (A) 성분 100질량부에 대하여 1~50질량부 더 함유하는 것을 특징으로 하는 실리콘 조성물.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, (J) 1 분자 중에 에폭시기, (메타)아크릴로일기, (메타)아크릴록시기, 알콕시실릴기, 에테르기 및 카르보닐기로부터 선택되는 적어도 1종의 작용기를 가지는 오가노하이드로젠폴리실록산을 조성물 중의 규소 원자 결합 알케닐기 1몰에 대하여 규소 원자 결합 수소 원자가 0.5~3몰이 되는 양으로 더 함유하는 것을 특징으로 하는 실리콘 조성물.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, (K) 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상인 유기 과산화물을 (A) 성분 100질량부에 대하여 0.01~10질량부 더 함유하는 것을 특징으로 하는 실리콘 조성물.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 실리콘 조성물에 관한 것이다. 상세하게는, 열전도성 충전제를 다량으로 함유해도, 양호한 취급성과 경화 후에 우수한 열적 성능을 공급하는 실리콘 그리스로 될 수 있는 실리콘 조성물에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 반도체 소자는 사용 중의 발열 및 그것에 의한 성능의 저하가 널리 알려져 있어, 이것을 해결하기 위한 수단으로서, 여러 방열 기술이 사용되고 있다. 일반적으로, 발열부의 부근에 냉각 부재(히트싱크 등)를 배치하고, 양자를 밀접시킨 다음 냉각 부재로부터 효율적으로 열을 제거함으로써 방열을 행하고 있다. 그때, 발열 부재와 냉각 부재의 사이에 간극이 있으면, 열전도성이 나쁜 공기가 개재함으로써 열전도율이 저하되어, 발열 부재의 온도가 충분히 떨어지지 않게 되어 버린다. 이러한 현상을 막기 위해, 열전도율이 좋고, 부재의 표면에 추종성이 있는 방열 재료, 예를 들면, 방열 그리스나 방열 시트가 사용되고 있다(특허문헌 1~13: 일본 특허 제 2938428호 공보, 일본 특허 제 2938429호 공보, 일본 특허 제 3580366호 공보, 일본 특허 제 3952184호 공보, 일본 특허 제 4572243호 공보, 일본 특허 제 4656340호 공보, 일본 특허 제 4913874호 공보, 일본 특허 제 4917380호 공보, 일본 특허 제 4933094호 공보, 일본 특개 2008-260798호 공보, 일본 특개 2009-209165호 공보, 일본 특개 2012-102283호 공보, 일본 특개 2012-96361호 공보).

[0003] 최근 서버 대상 CPU 등 고품위 기종의 반도체에 관하여, 점점 동작 시의 발열량이 증대하고 있다. 발열량의 증대에 따라 방열 그리스나 방열 시트에 요구되는 방열 성능도 향상하고 있다. 방열 성능의 향상이란 즉 방열 그리스나 방열 시트 등의 열저항을 낮추거나 또는 열전도율을 높이는 것이다. 그러나, 종래기술에서는 열전도율을 높이기 위해 열전도성 필러의 충전율을 향상시켜 가면 조성물의 점도가 상승해 버려, 토출하는 것이 곤란하게 되어 버리는 과제가 있었다. 이러한 과제를 해결하기 위해, 지금까지 여러 종류의 열전도성 필러의 검토나 그 조합의 검토가 이루어졌지만, 열전도율의 관점에서 보면 충분하지 않았다(특허문헌 14~16: 일본 특허 제 3891969호 공보, 일본 특허 제 3957596호 공보, 일본 특허 제 3948642호 공보).

선행기술문헌

특허문헌

- [0004] (특허문헌 0001) 일본 특허 제 2938428호 공보
- (특허문헌 0002) 일본 특허 제 2938429호 공보
- (특허문헌 0003) 일본 특허 제 3580366호 공보

- (특허문헌 0004) 일본 특허 제3952184호 공보
- (특허문헌 0005) 일본 특허 제4572243호 공보
- (특허문헌 0006) 일본 특허 제4656340호 공보
- (특허문헌 0007) 일본 특허 제4913874호 공보
- (특허문헌 0008) 일본 특허 제4917380호 공보
- (특허문헌 0009) 일본 특허 제4933094호 공보
- (특허문헌 0010) 일본 특개 2008-260798호 공보
- (특허문헌 0011) 일본 특개 2009-209165호 공보
- (특허문헌 0012) 일본 특개 2012-102283호 공보
- (특허문헌 0013) 일본 특개 2012-96361호 공보
- (특허문헌 0014) 일본 특허 제3891969호 공보
- (특허문헌 0015) 일본 특허 제3957596호 공보
- (특허문헌 0016) 일본 특허 제3948642호 공보

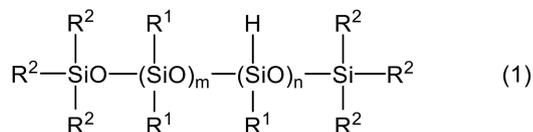
발명의 내용

해결하려는 과제

- [0005] 상기한 바와 같이, 최근, 고품위 기종의 반도체 장치에 있어서, 동작 시의 발열량이 증대하고 있어, 높은 열전도율, 또한 충분한 유동성을 가지는 실리콘 그리스의 개발이 요구되고 있다.
- [0006] 본 발명은 상기 사정을 감안하여 이루어진 것으로, 종래의 실리콘 그리스에 비해, 높은 열전도율을 가지며, 또한 취급성이 양호한 실리콘 그리스를 공급할 수 있는 실리콘 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명자는 상기 목적을 달성하기 위하여 예의 검토를 행한 결과, (A) 1 분자 중에 적어도 2개의 지방족 불포화 탄화수소기를 가지고, 25℃에서의 동점도가 60~100,000mm²/s인 오가노폴리실록산, (B) 후술하는 일반식 (1)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산, (C) 평균 두께 100nm 이하로 박편화된 흑연 분말, (D) 10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 열전도성 충전제, (E) 백금족 금속 촉매, (G) 상기 (A) 성분 및 (B) 성분을 분산 또는 용해할 수 있는 비점 160~360℃의 미휘발성(微揮發性) 이소파라핀 화합물을 함유하는 실리콘 조성물이 열전도성 충전제를 다량으로 함유해도 양호한 유동성을 가지는 실리콘 그리스가 될 수 있는 것을 발견하고, 본 발명을 이루게 되었다.
- [0008] 즉 본 발명은 하기의 실리콘 조성물을 제공한다.
- [0009] 1.
- [0010] (A) 1 분자 중에 적어도 2개의 지방족 불포화 탄화수소기를 가지고, 25℃에서의 동점도가 60~100,000mm²/s인 오가노폴리실록산: 100질량부,
- [0011] (B) 하기 일반식 (1)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산: 조성물 중의 규소 원자 결합 알케닐기 1몰에 대하여 규소 원자 결합 수소 원자가 0.5~3몰이 되는 양,



[0012]

[0013] (식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, R²는 서로 독립적으로 R¹ 또는 수소 원자이고, n은 2~40의 정수, m은 0~98의 정수이며, n+m은 5≤n+m≤100이다.)

[0014] (C) 평균 두께 100nm 이하로 박편화된 흑연 분말: 1~50질량부,

[0015] (D) 10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 열전도성 충전제: 100~4,000질량부,

[0016] (E) 백금족 금속 촉매: 유효량,

[0017] (G) 상기 (A) 성분 및 (B) 성분을 분산 또는 용해할 수 있는 비점 160~360℃의 미휘발성 이소파라핀 화합물: 실리콘 조성물 전체량의 0.1~20질량%

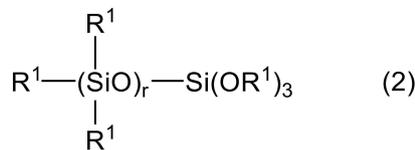
[0018] 를 함유하는 실리콘 조성물.

[0019] 2.

[0020] (F) 반응제어제를 (A) 성분 100질량부에 대하여 0.05~5질량부 더 함유하는 1에 기재된 실리콘 조성물.

[0021] 3.

[0022] (H) 하기 일반식 (2)



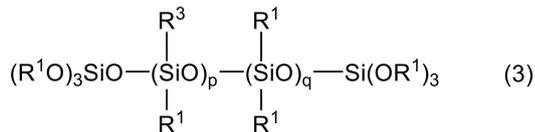
[0023]

[0024] (식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이며, r은 5~100의 정수이다.)

[0025] 로 표시되는 가수분해성 알킬폴리실록산을 (A) 성분 100질량부에 대하여 1~400질량부 더 함유하는 1 또는 2에 기재된 실리콘 조성물.

[0026] 4.

[0027] (I) 하기 일반식 (3)



[0028]

[0029] (식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, R³은 독립적으로 탄소수 2~6의 알케닐기이고, p는 1~20의 정수, q는 0~99의 정수이며, p+q는 5≤p+q≤100이다.)

[0030] 으로 표시되는 가수분해성 오가노폴리실록산을, (A) 성분 100질량부에 대하여 1~50질량부 더 함유하는 1~3 중 어느 하나에 기재된 실리콘 조성물.

[0031] 5.

[0032] (J) 1 분자 중에 에폭시기, (메타)아크릴로일기, (메타)아크릴록시기, 알콕시실릴기, 에테르기 및 카르보닐기로부터 선택되는 적어도 1종의 작용기를 가지는 오가노하이드로젠폴리실록산을 조성물 중의 규소 원자 결합 알케닐기 1몰에 대하여 규소 원자 결합 수소 원자가 0.5~3몰이 되는 양으로 더 함유하는 1~4 중 어느 하나에 기재된 실리콘 조성물.

[0033] 6.

[0034] (K) 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상인 유기 과산화물을, (A) 성분 100질량부에 대하여 0.01~10질량부 더 함유하는 1~5 중 어느 하나에 기재된 실리콘 조성물.

발명의 효과

[0035] 본 발명의 실리콘 조성물은 열전도성 충전제를 다량으로 함유해도 양호한 유동성을 가질 수 있기 때문에, 높은

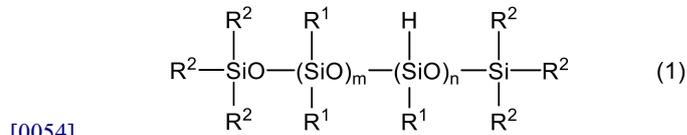
열전도율을 가지며, 또한 취급성이 양호한 실리콘 그리스로 될 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0036] (발명을 실시하기 위한 형태)
- [0037] 이하, 본 발명을 상세하게 설명한다.
- [0038] (A) 성분
- [0039] (A) 성분은 1 분자 중에 적어도 2개, 바람직하게는 2~40개의 지방족 불포화 탄화수소기를 가지며, 25℃에서의 동점도가 60~100,000mm²/s인 오가노폴리실록산이다.
- [0040] 지방족 불포화 탄화수소기는 바람직하게는 탄소수 2~8, 더욱 바람직하게는 탄소수 2~6의 지방족 불포화 결합을 가지는 1가 탄화수소기이며, 보다 바람직하게는 탄소수 2~8, 특히 탄소수 2~6의 알케닐기이다. 예를 들면, 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 이소프로페닐기, 부테닐기, 헥세닐기, 시클로헥세닐기, 및 옥테닐기 등의 알케닐기를 들 수 있다. 특히 바람직하게는 비닐기이다.
- [0041] 지방족 불포화 탄화수소기는 분자쇄 말단의 규소 원자, 분자쇄 도중의 규소 원자 중 어디에 결합하고 있어도 되고, 양자에 결합하고 있어도 된다.
- [0042] 상기 오가노폴리실록산의 25℃에서의 동점도는 60~100,000mm²/s, 바람직하게는 100~30,000mm²/s이다. 이 동점도가 60mm²/s 미만이면, 실리콘 조성물의 물리적 특성이 저하하고, 100,000mm²/s를 초과하면, 실리콘 조성물의 신전성이 부족한 것으로 된다.
- [0043] 또한, 본 발명에 있어서, 동점도는 우벨로데형 오스왈드 점도계에 의해 측정된 25℃에서의 값이다.
- [0044] 상기 오가노폴리실록산의 규소 원자에 결합하는 지방족 불포화 탄화수소기 이외의 유기기는 탄소수 1~18, 바람직하게는 탄소수 1~10, 더욱 바람직하게는 1~8의, 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 비치환 또는 치환 1가 탄화수소기이다. 예를 들면, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, 이소부틸기, tert-부틸기, 펜틸기, 네오펜틸기, 헥실기, 시클로헥실기, 옥틸기, 노닐기, 데실기 등의 알킬기; 페닐기, 톨릴기, 크실릴기, 나프틸기 등의 아릴기; 벤질기, 페닐에틸기, 페닐프로필기 등의 아릴킬기, 또는, 이들 기의 수소 원자의 일부 또는 전부를 불소, 브롬, 염소 등의 할로겐 원자, 사이아노기 등으로 치환한 것, 예를 들면, 클로로메틸기, 클로로프로필기, 브로모에틸기, 트리플루오로프로필기, 시아노에틸기 등을 들 수 있다. 특히는 메틸기인 것이 바람직하다.
- [0045] 상기 오가노폴리실록산은 상기 성질을 가지는 것이면 그 분자 구조는 특별히 한정되지 않고, 직쇄상, 분기쇄상, 일부 분기 또는 환상 구조를 가지는 직쇄상 등을 들 수 있다. 특히는, 주쇄가 디오가노실록산 단위의 반복으로 이루어지고, 분자쇄 양쪽 말단이 트리오가노실록시기로 봉쇄된 직쇄상 구조를 가지는 것이 바람직하다. 이 직쇄상 구조를 가지는 오가노폴리실록산은 부분적으로 분기상 구조, 또는 환상 구조를 가지고 있어도 된다. 이 오가노폴리실록산은 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 사용할 수 있다.
- [0046] 이러한 (A) 성분의 오가노폴리실록산으로서는 하기 평균 조성식 (4)로 표시되는 것을 들 수 있다.
- [0047] $R_aR'_bSiO_{(4-a-b)/2}$ (4)
- [0048] (식 중, R은 탄소수 2~8의 지방족 불포화 결합을 가지는 1가 탄화수소기이며, R'은 탄소수 1~18의 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 비치환 또는 치환 1가 탄화수소기이다. a는 0.0001~0.2의 정수이고, b는 0.7~2.2의 정수이며, a+b는 0.8~2.3의 정수이다.)
- [0049] 식 (4) 중, R은 탄소수 2~8의 지방족 불포화 결합을 가지는 1가 탄화수소기이며, 상기한 지방족 불포화 탄화수소기로서 예시한 것과 동일한 것을 예시할 수 있다.
- [0050] 또한, R'은 탄소수 1~18의 지방족 불포화 결합을 갖지 않는 비치환 또는 치환 1가 탄화수소기이며, 상기한 지방족 불포화 탄화수소기 이외의 유기기로서 예시한 것과 동일한 것을 예시할 수 있다.
- [0051] a는 0.0001~0.2의 정수, 바람직하게는 0.0005~0.1의 정수, 보다 바람직하게는 0.01~0.05의 정수이고, b는 0.7~2.2의 정수, 바람직하게는 1.8~2.1의 정수, 보다 바람직하게는 1.95~2.0의 정수이며, a+b는 0.8~2.3의 정수, 바람직하게는 1.9~2.2의 정수, 보다 바람직하게는 1.98~2.05의 정수이다.

[0052] (B) 성분

[0053] (B) 성분은 하기 일반식 (1)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산이다. 이 오가노하이드로젠폴리실록산은 분자 중의 규소 원자 결합 수소 원자(SiH기)가 조성물 중의 지방족 불포화 탄화수소기와 후술하는 백금족 금속 촉매의 존재하에 부가 반응하여, 가교 구조를 형성하는 것이다.



[0054] (식 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, R²는 서로 독립적으로 R¹ 또는 수소 원자이고, n은 2~40의 정수, m은 0~98의 정수이며, n+m은 5≤n+m≤100이다.)

[0055] 식 (1) 중, R¹은 서로 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기이고, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, 펜틸기, 헥실기 등을 들 수 있다. R¹로서는 메틸기가 가장 바람직하다.

[0056] 또한, R²는 서로 독립적으로 R¹ 또는 수소 원자이다. R²로서는 메틸기, 수소 원자가 바람직하다.

[0057] 식 (1) 중, n은 2~40의 정수, 바람직하게는 2~20의 정수이고, m은 0~98의 정수, 바람직하게는 8~60의 정수이며, n+m은 5≤n+m≤100, 바람직하게는 10≤n+m≤80을 만족하는 수이다. n이 2 미만에서는 충분히 경화하지 않고, 40보다 크면 미반응의 SiH기가 잉여의 가교 반응을 일으켜, 경화물의 경도가 상승할 우려가 있다. 또한, n+m이 5 미만에서는 실리콘 조성물의 물리적 특성이 저하하고, n+m이 100보다 큰 경우에는 실리콘 조성물의 신전성이 부족한 것으로 된다.

[0058] 또한, 1 분자 중의 SiH기는 3~40개, 특히 4~20개인 것이 바람직하다.

[0059] 이 오가노하이드로젠폴리실록산은 1종 단독이어도, 2종 이상을 혼합하여 사용해도 된다.

[0060] (B) 성분의 배합량은 (A) 성분 100질량부에 대하여 0.1~20질량부, 바람직하게는 0.1~10질량부인 것이 바람직하다.

[0061] 또한, (B) 성분의 배합량으로서의 조성물 중의 규소 원자 결합 알케닐기 1몰에 대하여 SiH기가 0.5~3몰, 바람직하게는 1~2몰이 되는 양이다. SiH기가 지나치게 적으면 얻어지는 조성물이 충분히 경화하지 않고, 지나치게 많으면 미반응의 SiH기가 잉여의 가교 반응을 일으켜, 경화물의 경도가 상승해 버린다.

[0062] (C) 성분

[0063] (C) 성분은 평균 두께 100nm 이하로 박편화된 흑연 분말이다.

[0064] (C) 성분의 흑연 분말의 평균 두께는 100nm 이하, 바람직하게는 50nm 이하이다. 평균 두께가 100nm 이하로 됨으로써, 흑연 분말의 비표면적이 커진다. 그 결과, 소량의 첨가로 실리콘 조성물의 열전도율을 향상시킬 수 있다. 또한, 흑연 분말의 평균 두께는 0.5nm 이상, 특히는 1nm 이상인 것이 바람직하다. 또한, 본 발명에 있어서, 흑연 분말의 평균 두께는 가스 흡착법에 의해 측정된 비표면적과 주사 현미경에 의한 화상 해석으로부터 산출할 수 있다(이하, 같음).

[0065] (C) 성분의 면의 형상은 원형, 타원형, 인편형 등 어떠한 형상이어도 되고, 그 면 방향의 평균 입경은 0.05~2,000μm, 특히는 5~2,000μm의 범위가 바람직하다. 길이(면 방향의 평균 입경)가 0.05μm보다 짧으면 얻어지는 조성물의 열전도율이 저하하고, 2,000μm보다 크면 충전성이 악화하고, 역시 열전도율이 저하해 버린다. 또한, 본 발명에 있어서, 흑연 분말의 면 방향의 평균 입경은 주사 현미경에 의한 화상 해석에 의해 얻어진 면적 기준의 면적 평균 직경이다(이하, 같음).

[0066] 본 발명에 사용되는 박편화된 흑연 분말은 시판되고 있으며, 예를 들면, (주)아이테크제 iGurafen-α, iGurafen-Σ 등을 이용할 수 있다.

[0067] (C) 성분은 1종 단독이어도, 2종 이상을 혼합하여 사용해도 된다.

[0068] (C) 성분의 충전량은 (A) 성분의 합계 100질량부에 대하여 1~50질량부이다. 충전제의 양이 1질량부 미만에서는, 얻어지는 조성물의 열전도율이 부족하게 되고, 50질량부를 초과하면 얻어지는 조성물이 그리스 형상으로 되

지 않는다.

(D) 성분

(D) 성분은 10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 열전도성 충전제이다.

(D) 성분의 열전도성 충전제로서는 열전도율이 10W/m·℃ 이상, 바람직하게는 15W/m·℃ 이상의 것이 사용된다. 충전제가 가지는 열전도율이 10W/m·℃보다 작으면, 실리콘 조성물의 열전도율 그 자체가 작아져 버린다.

이러한 열전도성 충전제로서는 알루미늄 분말, 구리 분말, 은 분말, 철 분말, 니켈 분말, 금 분말, 주석 분말, 금속 규소 분말, 질화알루미늄 분말, 질화붕소 분말, 알루미늄나 분말, 다이아몬드 분말, 인듐 분말, 갈륨 분말, 산화아연 분말 등을 들 수 있다.

10W/m·℃ 이상의 열전도율을 가지는 것이면 어떠한 열전도성 충전제이어도 되며, 1종류이어도, 2종류 이상을 혼합한 것이어도 되지만, 바람직하게는 산화아연, 알루미늄 분말, 및 이것들의 조합이어도 된다.

(D) 성분의 평균 입경은 0.1~100 μ m의 범위가 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.1~90 μ m의 범위이다. 이 평균 입경이 0.1 μ m보다 작으면 얻어지는 조성물이 그리스 형상으로 되지 않아, 신전성이 부족한 것으로 되는 경우가 있고, 100 μ m보다 크면 얻어지는 조성물의 열저항이 커져 버려, 성능이 저하하는 경우가 있다. 또한, 본 발명에 있어서, 평균 입경은 니키소(주)제 마이크로 트랙 MT3300EX에 의해 측정할 수 있고, 체적 기준의 체적평균 직경이다.

(D) 성분의 형상은 부정형이어도 구형이어도 어떠한 형상이어도 된다.

(D) 성분의 충전량은 (A) 성분의 합계 100질량부에 대하여 100~4,000질량부이고, 바람직하게는 200~4,000질량부이며, 더욱 바람직하게는 400~4,000질량부이다. 열전도성 충전제의 양이 100질량부 미만에서는, 얻어지는 조성물의 열전도율이 부족하고, 4,000질량부를 초과하면 얻어지는 조성물이 그리스 형상으로 되지 않는다.

(E) 성분

(E) 성분은 백금족 금속 촉매이며, 부가 반응을 촉진하기 위해 기능한다. 백금족 금속 촉매는 부가 반응에 사용되는 종래 공지의 것을 사용할 수 있다. 예를 들면, 백금계, 팔라듐계, 로듐계의 촉매를 들 수 있지만, 그중에서도 비교적 입수하기 쉬운 백금 또는 백금 화합물이 바람직하다. 예를 들면, 백금의 단체, 백금흑, 염화백금산, 백금-올레핀 착체, 백금-알코올 착체, 백금 배위 화합물 등을 들 수 있다.

백금족 금속 촉매는 1종 단독이어도 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.

(E) 성분의 함유량은 촉매로서의 유효량, 즉 부가 반응을 촉진하여 본 발명의 실리콘 조성물을 경화시키기 위해 필요한 유효량이면 된다. 바람직하게는, (A) 성분에 대하여, 백금족 금속 원자로 환산한 질량 기준으로 0.1~500ppm, 보다 바람직하게는 1~200ppm이다. 촉매의 양이 상기 하한값보다 적으면 촉매로서의 효과가 얻어지지 않는 경우가 있다. 또한, 상기 상한값을 초과해도 촉매 효과가 증대하지는 않아, 비경제적이기 때문에 바람직하지 않다.

(F) 성분

본 발명의 실리콘 조성물에는, 또한, 실온에서의 히드로실릴화 반응의 진행을 억제하고, 셀프 라이프, 포트 라이프를 연장시키는 점에서, (F) 반응제어제를 함유할 수 있다. (F) 반응제어제로서는 부가 경화형 실리콘 조성물에 사용되는 종래 공지의 반응제어제를 사용할 수 있다. 예를 들면, 아세틸렌 알코올류(예를 들면, 에틸닐메틸데실카르비놀, 1-에틸닐-1-시클로헥산올, 3,5-디메틸-1-헥신-3-올, 1-시클로헥실-2-프로판-1-올) 등의 아세틸렌 화합물, 트리부틸아민, 테트라메틸에틸렌디아민, 벤조트리아졸 등의 각종 질소 화합물, 트리페닐포스핀 등의 유기 인 화합물, 옥심 화합물, 유기 클로로 화합물 등을 들 수 있다.

(F) 성분을 배합하는 경우의 첨가량은, (A) 성분의 합계 100질량부에 대하여, 0.05~5질량부, 바람직하게는 0.1~2질량부이다. 반응제어제의 첨가량이 0.05질량부 미만에서는, 원하는 충분한 셀프 라이프, 포트 라이프가 얻어지지 않을 우려가 있고, 또한, 5질량부보다 많은 경우에는, 실리콘 조성물의 경화성이 저하한다.

또한, 반응제어제는, 실리콘 조성물에서의 분산성을 좋게 하기 위해, 오가노(폴리)실록산이나 톨루엔 등으로 희석하여 사용해도 된다.

(G) 성분

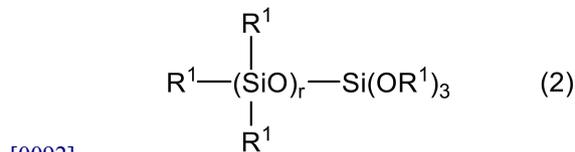
[0087] (G) 성분은 희석제이며, 안전면, 작업성의 관점에서, 상기 (A) 성분 및 (B) 성분을 분산 또는 용해할 수 있는 비점 160~360℃, 바람직하게는 200~360℃의 미휘발성 이소파라핀 화합물을 사용한다. 비점이 160℃ 미만에서는 실온 사용 시에도 사용 환경에 따라서는 휘발해 버린다. 또한, 360℃를 초과하는 것과 같은 비점이 지나치게 높은 희석제를 사용하면 실리콘 조성물로 이루어지는 방열용의 실리콘 그리스 중에 지나치게 잔존해 버리므로, 방열 특성이 저하해 버린다.

[0088] 이러한 이소파라핀 화합물로서는 시판품을 사용할 수 있고, 구체적으로는, IP 솔벤트 MU2028(이데미츠코산(주)제, 비점 213~277℃의 이소파라핀의 혼합물), IP 솔벤트 MU2835(이데미츠코산(주)제, 비점 277~353℃의 이소파라핀의 혼합물) 등을 예시할 수 있다.

[0089] (G) 성분의 첨가량이 실리콘 조성물 전체량의 0.1질량%보다 적으면 충분히 실리콘 조성물의 점도를 낮출 수 없고, 20질량%보다 많으면 충전제의 침강이 빨라져, 실리콘 조성물의 보존성이 나빠지기 때문에, 0.1~20질량%의 범위, 보다 바람직하게는 0.1~10질량%의 범위가 좋다.

[0090] (H) 성분

[0091] 본 발명의 실리콘 조성물에는, 또한 (H) 하기 일반식 (2)로 표시되는 가수분해성 알킬폴리실록산을 함유할 수 있다. (H) 성분을 배합함으로써, 열전도성 충전제의 표면이 처리되어, 조성물의 점도의 저하나 열전도성의 향상 등의 효과가 얻어진다.



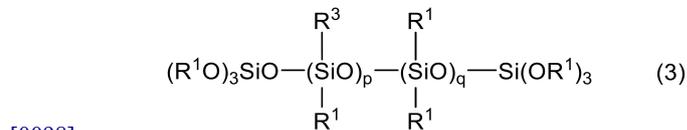
[0092] (식 중, R¹은 상기와 같으며, r은 5~100의 정수이다.)

[0094] 상기 식 (2) 중, R¹은 상기와 같으며, 바람직하게는 메틸기이다. r은 5~100의 정수, 바람직하게는 10~60의 정수이다. r의 값이 상기 하한값보다 작으면, 얻어지는 조성물로부터 블리딩해 버려, 신뢰성이 나빠질 우려가 있다. 또한, r의 값이 상기 상한값보다 크면, 충전제와의 젖음성이 충분하지 않게 될 우려가 있다.

[0095] (H) 성분의 배합량은 (A) 성분 100질량부에 대하여 1~400질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 40~400질량부이다. (H) 성분의 양이 상기 하한값보다 적으면 충분한 젖음성을 발휘할 수 없는 경우가 있다. 또한, (H) 성분의 양이 상기 상한값보다 많으면 얻어지는 조성물로부터 블리딩해 버리는 경우가 있다.

[0096] (I) 성분

[0097] 본 발명의 실리콘 조성물에는, 열전도성의 충전제와의 젖음성 및 실리콘 조성물에 접착성을 부여하는 점에서, 하기 일반식 (3)으로 표시되는 가수분해성 오가노폴리실록산을 배합하는 것이 바람직하다.



[0099] (식 중, R¹은 상기와 같고, R³은 독립적으로 탄소수 2~6의 알케닐기이고, p는 1~20의 정수, q는 0~99의 정수이며, p+q는 5≤p+q≤100이다.)

[0100] 식 (3) 중, R¹은 상기와 같고, 바람직하게는 메틸기이다.

[0101] R³은 탄소수 2~6의 알케닐기이며, 예를 들면, 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 이소프로페닐기, 부테닐기, 헥세닐기, 시클로헥세닐기 등을 들 수 있고, 비닐기가 바람직하다.

[0102] 식 (3) 중, p는 1~20의 정수, 바람직하게는 1~5의 정수이고, q는 0~99의 정수, 바람직하게는 4~59의 정수이며, p+q는 5≤p+q≤100, 바람직하게는 5≤p+q≤60을 만족하는 수이다. p가 1 미만에서는 얻어지는 조성물이 충분한 접착성을 얻을 수 없고, 20보다 크면 얻어지는 조성물의 경화 후의 경도가 급격하게 상승해 버린다. 또한, p+q가 5 미만에서는 얻어지는 조성물로부터 블리딩해 버릴 우려가 있고, 한편, p+q가 100보다 클 경우에

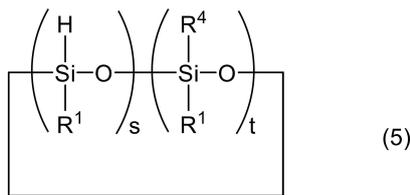
는, 충전제와의 젖음성이 충분하지 않게 될 우려가 있다.

[0103] (I) 성분은 1종 단독으로 또는 2종 이상을 적당히 조합하여 사용할 수 있다.

[0104] (I) 성분의 함유량은 상기 (A) 성분 100질량부에 대하여 1~50질량부가 바람직하고, 1~20질량부가 보다 바람직하다. (I) 성분의 함유량이 상기 하한 미만이면, 충분한 젖음성이나 접착성을 발휘할 수 없을 우려가 있다. 한편, (I) 성분의 양이 상기 상한을 초과하면, 얻어지는 조성물로부터 불리당해 버리는 경우가 있다.

[0105] (J) 성분

[0106] 본 발명의 실리콘 조성물에는, (J) 성분을 더 함유해도 된다. 이 성분은 1 분자 중에 에폭시기, (메타)아크릴로일기, (메타)아크릴록시기, 알콕시실릴기, 에테르기 및 카르보닐기로부터 선택되는 적어도 1종의 작용기를 가지는 오가노하이드로젠폴리실록산이며, 실리콘 조성물에 접착 성능을 부여할 수 있다. 이 오가노하이드로젠폴리실록산은 하기 일반식 (5)로 표시되는 것을 예시할 수 있다.



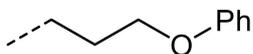
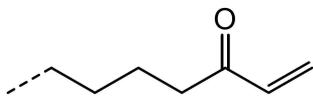
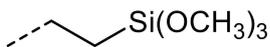
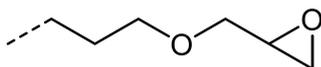
[0107]

[0108] (식 중, R¹은 상기와 같고, R⁴는 서로 독립적으로 탄소 원자 및/또는 산소 원자를 통하여 규소 원자에 결합하고 있는 에폭시기, 아크릴로일기, 메타크릴로일기, 카르보닐기, 에테르기 및 트리알콕시실릴기로부터 선택되는 기이다. s는 1~3의 정수이고, t는 1~8의 정수, 바람직하게는 1~3의 정수이며, s+t는 3~9의 정수이다.)

[0109] 식 (5) 중, R¹은 상기와 같고, 바람직하게는 메틸기이다.

[0110] R⁴는 서로 독립적으로 탄소 원자 및/또는 산소 원자를 통하여 규소 원자에 결합하고 있는 에폭시기, 아크릴로일기, 메타크릴로일기, 트리알콕시실릴기 등의 알콕시실릴기, 에테르기 및 카르보닐기로부터 선택되는 기이며, 실리콘 조성물에 접착성을 부여하는 효과를 가진다.

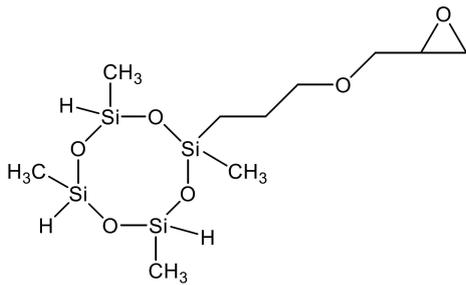
[0111] R⁴로서, 구체적으로는, 하기에 나타내는 것을 예시할 수 있다.



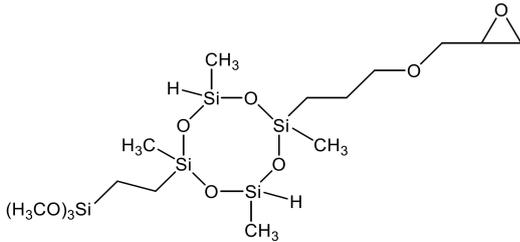
[0112]

[0113] (식 중, Ph는 페닐기이며, 파선은 결합손이다.)

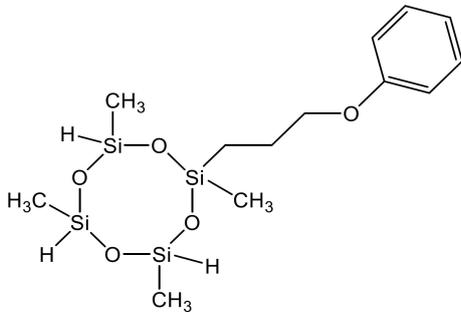
[0114] 식 (5)로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산으로서는, 예를 들면, 하기의 것을 예시할 수 있다.



[0115]



[0116]



[0117]

[0118] 이 오가노하이드로젠폴리실록산은 1종 단독이나, 2종 이상을 혼합하여 사용해도 된다.

[0119] (B) 성분 및 (J) 성분의 오가노하이드로젠폴리실록산의 합계량은, 실리콘 조성물 전체로서, (SiH기의 개수의 합계)/(Si 원자에 결합하는 지방족 불포화 탄화수소기의 개수의 합계)가 0.5~3이 되는 양이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1~2가 되는 양이다. 구체적으로는, ((B) 성분 및 (J) 성분 중의 SiH기의 개수의 합계)/((A) 성분, (I) 성분 중의 Si 원자에 결합하는 지방족 불포화 탄화수소기의 개수의 합계)가 0.5~3이 되는 양이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1~2가 되는 양이다. 상기 (B) 성분 및 (J) 성분의 양이 0.5보다 적으면, 충분한 접착 성능을 발휘할 수 없어, 기재와의 밀착성이 나빠질 우려가 있다. 또한, 3보다 많으면, 미반응의 SiH기가 잉여의 가교 반응을 일으켜, 경화물의 경도가 상승할 우려가 있다.

[0120] 또한, ((J) 성분 중의 SiH기의 개수)/((B) 성분 및 (J) 성분 중의 SiH기의 개수의 합계)는 0.3~0.7이 되는 양이 바람직하다. ((J) 성분 중의 SiH기의 개수)/((B) 성분 및 (J) 성분 중의 SiH기의 개수의 합계)가 0.3 미만에서는, 실리콘 조성물의 물리적 특성이 저하할 우려가 있고, 0.7을 초과하면, 충분한 접착 성능을 발휘할 수 없어, 기재와의 밀착성이 나빠질 우려가 있다.

[0121] (K) 성분

[0122] 본 발명의 실리콘 조성물에는, (K) 성분을 더 함유해도 된다. (K) 성분은 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상인 유기 과산화물이며, 1종 단독으로 또는 2종 이상을 적당히 조합하여 사용할 수 있다. 본 발명에 사용되는 유기 과산화물은 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상이며, (A), (B) 성분을 라디칼 반응에 의해 가교시키는 것이면, 특별히 한정되는 것은 아니지만, 예를 들면, 케톤퍼옥사이드, 하이드로퍼옥사이드, 디알킬퍼옥사이드, 디알킬퍼옥사이드, 퍼옥시케탈, 알킬페에스테르, 퍼카보네이트 등을 들 수 있다.

[0123] 또한, 이 유기 과산화물은 실리콘 조성물을 가열 경화시키는 온도와 보존성을 고려하여, 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상, 바람직하게는 50℃ 이상, 보다 바람직하게는 60℃ 이상, 더욱 바람직하게는 65℃ 이상의 것을 사용한다. 10시간 반감기 온도가 지나치게 낮으면, 얻어지는 조성물의 보존성을 충분히 확보하는 것이 곤란하게 된

다. 또한, 그 상한은 특별히 제한되지 않지만, 통상 200℃ 이하이다.

[0124] (K) 성분을 배합하는 경우의 배합량은 (A) 성분 100질량부에 대하여 0.01~10질량부가 바람직하고, 0.5~5질량부가 바람직하다. 배합량이 지나치게 적으면 경화 시에 충분히 경화하지 않고, 지나치게 많아도 경화성이 향상되지 않아 비경제적이 된다.

[0125] 그 밖의 성분

[0126] 본 발명의 실리콘 조성물은 조성물의 탄성률이나 점도를 조정하기 위해 메틸폴리실록산 등의 반응성을 갖지 않는 오가노(폴리)실록산을 함유해도 된다. 또한, 실리콘 조성물의 열화를 막기 위해, 2,6-디-*t*-부틸-4-메틸페놀 등의, 종래 공지의 산화방지제를 필요에 따라 함유해도 된다. 또한, 염료, 안료, 난연제, 침강방지제, 또는 텍스트로피성 향상제 등을, 필요에 따라 배합할 수 있다.

[0127] 다음에 본 발명의 실리콘 조성물의 제조 방법에 대해 설명하지만, 이것에 한정되는 것은 아니다.

[0128] 실리콘 조성물을 제작하는 공정

[0129] 본 발명의 실리콘 조성물을 제조하는 방법은 종래의 실리콘 그리스 조성물의 제조 방법에 따르면 되고, 특별히 제한되는 것은 아니다. 예를 들면, 상기 (A)~(G) 성분, 및 필요에 따라 그 밖의 성분을 트리 믹스, 트윈 믹스, 플래네티리 믹서(모두 (주)이노우에세사쿠쇼제 혼합기의 등록상표), 울트라 믹서(미즈호고교(주)제 혼합기의 등록상표), 하이비스디스퍼 믹스(토쿠슈키카고교(주)제 혼합기의 등록상표) 등의 혼합기로 혼합하는 방법에 의해 제조할 수 있다.

[0130] 본 발명의 실리콘 조성물은 바람직하게는 25℃에서 측정되는 절대점도가 3~500Pa·s, 보다 바람직하게는 10~400Pa·s이다. 절대점도가 3Pa·s 미만에서는, 형상 유지가 곤란하게 되는 등, 작업성이 나빠질 우려가 있다. 또한, 절대점도가 500Pa·s를 초과하는 경우에도 토출이 곤란하게 되는 등, 작업성이 나빠질 우려가 있다. 상기 절대점도는 상기한 각 성분의 배합을 조정함으로써 얻을 수 있다. 본 발명에 있어서, 절대점도는 (주)말콤 제 스파이럴 점도계(타입 PC-1T)에 의해 측정된 25℃의 값이다(로터 A로 10rpm, 전단 속도 6[1/s]).

[0131] 본 발명의 실리콘 조성물은 LSI 등의 전자부품, 그 밖의 발열 부재와 냉각 부재와의 사이에 개재시켜 발열 부재로부터의 열을 냉각 부재에 열전도하여 방열하기 위해 적합하게 사용할 수 있고, 종래의 열전도성 실리콘 그리스와 동일한 방법으로 사용할 수 있다. 예를 들면, 본 발명의 실리콘 조성물은 전자부품 등의 발열 부재로부터의 발열에 의해 경화할 수 있다. 또한, 본 발명의 실리콘 조성물을 도포한 후, 적극적으로 가열 경화시켜도 된다. 이것에 의해, 본 발명의 실리콘 조성물의 경화물을 발열 부재와 냉각 부재와의 사이에 개재시킨 반도체 장치를 제공할 수 있다. 본 발명의 실리콘 조성물을 가열 경화하는 경우의 경화 조건은 특별히 제한되는 것은 아니지만, 통상 80~200℃, 바람직하게는 100~180℃에서, 30분~4시간, 바람직하게는 30분~2시간이다.

[0132] 본 발명의 실리콘 조성물은 높은 열전도율을 가지며, 또한 취급성이 양호하기 때문에, 고품위 기종의 반도체 장치 등에 대한 방열 그리스로서 특히 적합하게 사용할 수 있다.

[0133] 실시예

[0134] 이하, 실시예 및 비교예를 제시하여, 본 발명을 보다 상세하게 설명하지만, 본 발명은 하기의 실시예에 제한되는 것은 아니다. 하기에서 동점도는 우벨로테형 오스왈드 점도계(시바타카가쿠사제)에 의해 25℃에서 측정된 값이다.

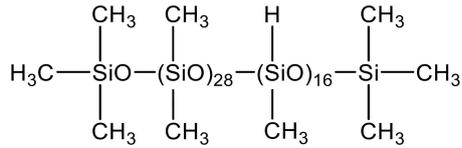
[0135] (A) 성분

[0136] A-1: 양쪽 말단이 디메틸비닐실릴기로 봉쇄되고, 25℃에서의 동점도가 600mm²/s의 디메틸폴리실록산

[0137] A-2: 양쪽 말단이 디메틸비닐실릴기로 봉쇄되고, 25℃에서의 동점도가 30,000mm²/s의 디메틸폴리실록산

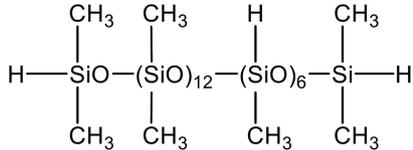
[0138] (B) 성분

[0139] B-1: 하기 식으로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산



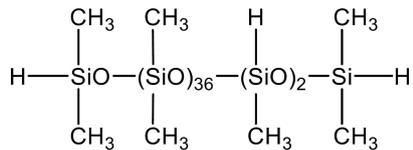
[0140]

[0141] B-2: 하기 식으로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산



[0142]

[0143] B-3: 하기 식으로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산



[0144]

[0145] (C) 성분

[0146] C-1: 평균 두께 30nm, 면 방향의 평균 입경 380 μm 의 박편화된 흑연 분말과, 평균 두께 30nm, 면 방향의 평균 입경 900 μm 의 박편화된 흑연 분말을 질량비 50:50으로 미리 혼합한 흑연 분말

[0147] C-2: 평균 두께 30nm, 면 방향의 평균 입경 380 μm 의 박편화된 흑연 분말과, 평균 두께 30nm, 면 방향의 평균 입경 1,800 μm 의 박편화된 흑연 분말을 질량비 50:50으로 미리 혼합한 흑연 분말

[0148] C-3: 평균 두께 10.0nm, 면 방향의 평균 입경 5 μm 의 박편화된 흑연 분말

[0149] C-4: 평균 입경 35.0nm의 구상의 흑연 분말

[0150] (D) 성분

[0151] D-1: 평균 입경 10.0 μm 의 알루미늄 분말과 평균 입경 2.0 μm 의 알루미늄 분말을 질량비 60:40으로 미리 혼합한 알루미늄 분말(열전도율: 237W/m \cdot °C)

[0152] D-2: 평균 입경 20.0 μm 의 알루미늄 분말과 평균 입경 2.0 μm 의 알루미늄 분말을 질량비 60:40으로 미리 혼합한 알루미늄 분말(열전도율: 237W/m \cdot °C)

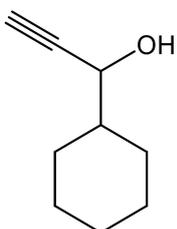
[0153] D-3: 평균 입경 1.0 μm 의 산화아연 분말(열전도율: 25W/m \cdot °C)

[0154] (E) 성분

[0155] E-1: 백금-디비닐테트라메틸디실록산 착체를 상기 A-1과 동일한 디메틸폴리실록산에 용해한 용액(백금 원자 함유량: 1질량%)

[0156] (F) 성분

[0157] F-1: 하기 식으로 표시되는 화합물



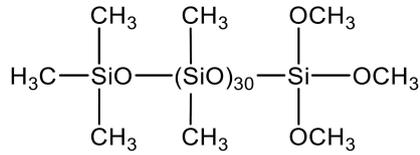
[0158]

[0159] (G) 성분

[0160] G-1: IP 솔벤트 MU2028(이데미츠코산(주)제, 비점 213~277℃의 이소파라핀의 혼합물)

[0161] (H) 성분

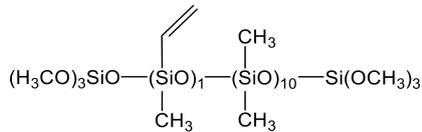
[0162] H-1: 하기 식으로 표시되는 편말단 트리메톡시실릴기 함유 디메틸폴리실록산



[0163]

[0164] (I) 성분

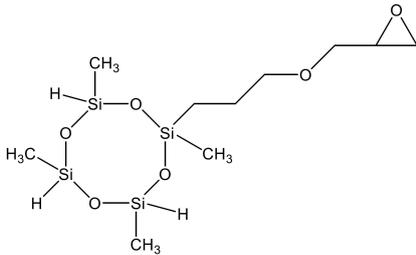
[0165] I-1: 하기 식으로 표시되는 폴리실록산



[0166]

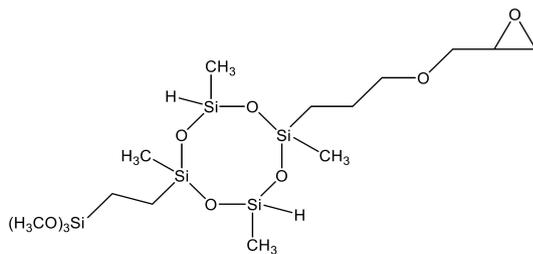
[0167] (J) 성분

[0168] J-1: 하기 식으로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산



[0169]

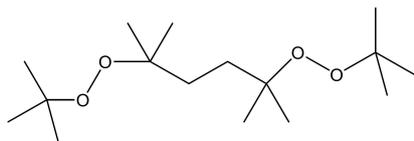
[0170] J-2: 하기 식으로 표시되는 오가노하이드로젠폴리실록산



[0171]

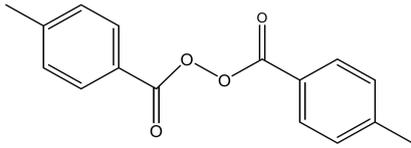
[0172] (K) 성분

[0173] K-1: 하기 식으로 표시되는 디알킬페옥사이드(가야쿠아쿠조(주)제, 카야핵사 AD, 10시간 반감기 온도: 118℃)



[0174]

[0175] K-2: 하기 식으로 표시되는 디아실페옥사이드(가야쿠아쿠조(주)제, 퍼카독스 PM-50S-PS, 10시간 반감기 온도: 71℃)



- [0176]
- [0177] [실시예 1~20, 비교예 1~5]
- [0178] <실리콘 조성물의 조제>
- [0179] 상기 (A)~(K) 성분을, 하기 표 1~4에 나타내는 배합량에 따라, 하기에 나타내는 방법으로 배합하여 실리콘 조성물을 조제했다. 또한, 표 1에서 (E) 성분의 질량은 백금-디비닐테트라메틸디실록산 착체를 디메틸폴리실록산에 용해한 용액(백금 원자 함유량: 1질량%)의 질량이다. 또한, SiH/SiVi는 (A) 성분, (I) 성분 중의 알케닐기의 개수의 합계에 대한 (B) 성분, (J) 성분 중의 SiH기의 개수의 합계의 비이다.
- [0180] 5리터의 플래니터리 믹서((주) 이노우에세사쿠쇼제)에 (A), (C), (D), (H), 및 (I) 성분을 가하고, 170℃에서 1시간반 혼합했다. 상온으로 될 때까지 냉각하고, 다음에 (B), (E), (F), (G), (J) 및 (K) 성분을 가하고 균일하게 되도록 혼합하여, 실리콘 조성물을 조제했다.
- [0181] 상기 방법으로 얻어진 각 조성물에 대해, 하기의 방법에 따라, 점도, 열전도율 및 접착 강도를 측정했다. 결과를 표 1~4에 나타낸다.
- [0182] [절대점도]
- [0183] 실리콘 조성물의 절대점도를 (주)말콤제 스파이럴 점도계(타입 PC-1T)를 사용하여 25℃에서 측정했다.
- [0184] [열전도율]
- [0185] 각 조성물을 150℃의 오븐에서 1시간 경화시키고, 성형한 시트의 열전도율을 교토덴시고교(주)제 TPA-501로 측정했다.
- [0186] [접착 강도]
- [0187] 각 조성물을 1mm×1mm의 실리콘 웨이퍼와 니켈 플레이트의 사이에 끼우고, 1.8kgf의 클립에 의해 가압하면서 150℃로 60분간 가열했다. 그 후, Dage series-4000PXY(Dage Deutschland GmbH제)를 사용하여 접착 강도를 측정했다.

표 1

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	실시예 7	실시예 8
조성 (질량부)	A-1	100	100	100	0	100	100	100	100
	A-2	0	0	0	100	0	0	0	0
	B-1	2.8	2.8	2.8	1.4	5.6	5.6	1.4	2.8
	B-2	0	0	0	0	0	0	0	0
	B-3	0	0	0	0	0	0	0	0
	C-1	10	0	0	10	10	20	20	20
	C-2	0	10	0	0	0	0	0	0
	C-3	0	0	10	0	0	0	0	0
	C-4	0	0	0	0	0	0	0	0
	D-1	2,000	2,000	2,000	2,000	2,000	2,000	2,000	2,000
	D-2	0	0	0	0	0	0	0	0
	D-3	492	492	492	492	492	492	492	492
	총전제의 합계량	2,492	2,492	2,492	2,492	2,492	2,492	2,492	2,492
	E-1	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	F-1	0.2	0.2	0.2	0.2	0.4	0.4	0.4	0.4
	G-1	35	35	35	35	35	35	35	24
	H-1	100	100	100	100	100	100	100	100
	I-1	0	0	0	0	0	0	0	0
	J-1	0	0	0	0	0	0	0.9	1.8
J-2	0	0	0	0	0	0	0	0	
K-1	0	0	0	0	0	0	0	0	
K-2	0	0	0	0	0	0	0	0	
SiH/SiVi	1	1	1	1	2	2	1	2	
평가결과	절대 점도 (Pa·s)	129	138	85	204	125	240	151	320
	열전도율 (W/(m·°C))	6.7	6.5	5.5	6	7	7.5	6.8	7.5
	접착 강도 (MPa)	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.4

[0188]

표 2

		실시예 9	실시예 10	실시예 11	실시예 12	실시예 13	실시예 14	실시예 15	실시예 16
조성 (질량부)	A-1	100	100	100	100	100	100	100	100
	A-2	0	0	0	0	0	0	0	0
	B-1	2.8	2.8	0	0	2.8	2.8	0	0
	B-2	0	0	2.8	0	0	0	6.2	6.2
	B-3	0	0	0	10	0	0	0	0
	C-1	50	20	20	20	20	20	17	17
	C-2	0	0	0	0	0	0	0	0
	C-3	0	0	0	0	0	0	0	0
	C-4	0	0	0	0	0	0	0	0
	D-1	2,000	2,000	2,000	2,000	0	0	0	0
	D-2	0	0	0	0	2,000	1,820	1,820	1,820
	D-3	492	492	492	492	492	492	492	492
	충전제의 합계량	2,492	2,492	2,492	2,492	2,492	2,312	2,312	2,312
	E-1	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	F-1	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
	G-1	24	40	40	40	40	28	16	40
	H-1	400	100	100	100	100	80	80	80
	I-1	0	0	0	0	0	0	17	17
	J-1	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8	4	4
	J-2	0	0	0	0	0	0	0	0
K-1	0	0	0	0	0	2	2	2	
K-2	0	0	0	0	0	0	0	0	
SiH/SiVi	2	2	2	2	2	2	2	2	
평가 결과	절대 점도 (Pa·s)	230	155	161	170	168	124	209	134
	열전도율 (W/(m·°C))	7.3	6.8	7	6.2	7.8	7.2	6.3	6.6
	접착 강도 (MPa)	0.1	0.6	0.8	0.3	0.7	0.5	2	1.5

[0189]

표 3

		실시예 17	실시예 18	실시예 19	실시예 20
조성 (질량부)	A-1	100	100	100	100
	A-2	0	0	0	0
	B-1	0	0	5.6	5.6
	B-2	6.2	6.2	0	0
	B-3	0	0	0	0
	C-1	17	17	1	50
	C-2	0	0	0	0
	C-3	0	0	0	0
	C-4	0	0	0	0
	D-1	0	0	0	0
	D-2	1,820	1,820	3,140	300
	D-3	492	492	811	100
	총전체의 합계량	2,312	2,312	3,951	400
	E-1	0.8	0.8	0.8	0.8
	F-1	0.4	0.4	0.2	0.2
	G-1	40	16	40	40
	H-1	80	80	300	0
	I-1	8.5	8.5	0	0
	J-1	0	4	0	0
	J-2	7.5	0	0	0
K-1	2	0	0	0	
K-2	0	4	0	0	
SiH/SiVi	2	2	2	2	
평가 결과	절대 점도 (Pa·s)	131	132	187	178
	열전도율 (W/(m·°C))	6.3	6.6	7	7
	접착 강도 (MPa)	1.6	1.5	0.1	0.1

[0190]

표 4

		비교예 1	비교예 2	비교예 3	비교예 4	비교예 5
조성 (질량부)	A-1	100	100	100	100	100
	A-2	0	0	0	0	0
	B-1	2.8	2.8	2.8	2.8	2.8
	B-2	0	0	0	0	0
	B-3	0	0	0	0	0
	C-1	0	0	10	60	10
	C-2	0	0	0	0	0
	C-3	0	0	0	0	0
	C-4	0	10	0	0	0
	D-1	2,000	2,000	2,000	2,000	4,000
	D-2	0	0	0	0	0
	D-3	492	492	492	492	984
	충전제의 합계량	2,492	2,492	2,492	2,492	4,984
	E-1	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	F-1	0.2	0.2	0.2	0.2	0.4
	G-1	0	0	0	40	40
	H-1	100	100	100	100	100
	I-1	0	0	0	0	0
	J-1	0	0	0	0	0
	J-2	0	0	0	0	0
K-1	0	0	0	0	0	
K-2	0	0	0	0	0	
SiH/SiVi	1	1	1	1	1	
평가 결과	절대 점도 (Pa·s)	230	289	685	그리스 형상으로 되지 않음	그리스 형상으로 되지 않음
	열전도율 (W/(m·°C))	5	5	7		
	접착 강도 (MPa)	0.1	0.1	0.1		

[0191]

[0192]

표 1~4의 결과로부터, 본 발명의 요건을 충족시키는 실시예 1~20에서는, 비교예 1~5에 비해, 실리콘 조성물의 열전도율은 커졌다.

[0193]

한편, (C) 성분을 함유하고 있지 않은 비교예 1, (C) 성분이 박편화되지 않은 C-4 성분을 사용한 비교예 2에서는, 모두 열전도율은 저하했다. 또한, (G) 성분을 갖지 않는 비교예 3에서는, 점도가 높아져 작업성이 저하되었다. 또한, (C) 성분이 60질량부로 본 발명의 배합 범위보다도 많은 비교예 4, (D) 성분의 합계량이 4,984질량부로 본 발명의 배합 범위보다도 많은 비교예 5에서는, 모두 조성물이 그리스 형상으로 되지 않았다.

[0194]

따라서, 본 발명의 실리콘 조성물은 열전도성 충전제를 다량으로 함유해도, 취급성과 경화 후에 우수한 열적 성능을 공급하는 실리콘 그리스를 제공하는 것을 알 수 있었다.