

明 細 書

熱伝導改良剤

5 技術分野

本発明は熱伝導改良剤、それを配合した樹脂組成物、およびその成形品に関する。また本発明は、樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法に関する。

背景技術

- 10 合成樹脂、ゴム類、セラミック等の熱伝導性改良剤として、これまで酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、シリカ等が使われてきた（特許文献1）。シリカは熱伝導性が低い。酸化アルミニウムは、熱伝導性は高いが硬度が高いため成形時に成形機や金型を摩耗する欠点がある。そのため硬度が低く、熱伝導率がアルミナの約3倍である酸化マグネシウムが熱伝導性改良剤として注目された。しかしながら、酸化マグネシウムは水あるいは水蒸気により徐々に侵され水酸化マグネシウムに変化し、物理的性質が失われるという欠点があり、より高い熱伝導率を目指し種々の改良が行われてきた。例えば、酸化マグネシウムの表面にケイ素および／またはアルミニウムとマグネシウムとの複酸化物の被覆層を持たせたもの（特許文献2）、リン化合物により表面被覆された酸化マグネシウム（特許文
- 15 献3）が挙げられる。また水酸化マグネシウムを熱伝導改良剤とする技術も提案された（特許文献4）。しかしながら、いずれも満足できる結果ではなかった。
- 20

（特許文献1）特開平7-324146号

（特許文献2）特開2004-27177号

（特許文献3）特開2006-282783号

- 25 （特許文献4）特開平9-176368号

発明の開示

本発明の目的は、樹脂の熱伝導性を改良することができる熱伝導改良剤を提供

することにある。さらに本発明の目的は、引っ張り強度、伸びなどの機械強度に優れ、高い熱伝導性を有する樹脂組成物およびそれらの成形品を提供することにある。また本発明は、樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法を提供することにある。

- 5 本発明者は、水酸化マグネシウム粒子を有効成分とする熱伝導改良剤を改良する研究を進めた。その結果、高いアスペクト比を有する水酸化マグネシウム粒子が、熱伝導性改良剤として優れた効果を奏することを見出し、本発明を完成した。

すなわち本発明は、 $10\text{ nm}\sim 0.2\text{ }\mu\text{ m}$ の厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上である水酸化マグネシウム粒子を有効成分とする熱伝導性改良剤である。

また本発明は、(i) 100重量部の樹脂および(ii) 20～300重量部の熱伝導性改良剤を含有する樹脂組成物であって、熱伝導性改良剤は $10\text{ nm}\sim 0.2\text{ }\mu\text{ m}$ の厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上の水酸化マグネシウム粒子である前記樹脂組成物である。

- 15 また本発明は、前記樹脂組成物からなる成形品である。

さらに本発明は、樹脂および水酸化マグネシウム粒子を含有する樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法であって、樹脂100重量部に対して、 $10\text{ nm}\sim 0.2\text{ }\mu\text{ m}$ の厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上である水酸化マグネシウム粒子を20～300重量部配合させることを特徴とする前記方法である。

発明を実施するための最良の形態

<熱伝導性改良剤>

本発明の熱伝導性改良剤は、 $10\text{ nm}\sim 0.2\text{ }\mu\text{ m}$ の厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上である水酸化マグネシウム粒子を有効成分とする。

水酸化マグネシウム粒子の厚みは、SEM法による測定で $10\text{ nm}\sim 0.2\text{ }\mu\text{ m}$ 、好ましくは $10\text{ nm}\sim 0.15\text{ }\mu\text{ m}$ 、さらに好ましくは $10\text{ nm}\sim 0.08$

μm である。水酸化マグネシウム粒子の厚みの下限は20nmでもよい。水酸化マグネシウム粒子の厚みは、SEM写真（20,000倍率）中、任意の10個の結晶子の厚さの測定値の算術平均である（平均厚み）。

水酸化マグネシウム粒子のアスペクト比（長径／厚み）は、10以上、好ましくは15以上、より好ましくは、10～100、さらに好ましくは50～200である。水酸化マグネシウム粒子のアスペクト比は、SEM写真（20,000倍率）中、任意の10個の結晶子の長径の測定値の算術平均から求めた平均長径を平均厚みで除した値である。

水酸化マグネシウム粒子のBET法比表面積は、好ましくは $5\sim 30\text{m}^2/\text{g}$ 、より好ましくは $10\sim 30\text{m}^2/\text{g}$ 、より好ましくは $10\sim 25\text{m}^2/\text{g}$ 、さらに好ましくは $10\sim 20\text{m}^2/\text{g}$ である。

水酸化マグネシウム粒子は、CaO含有量が0.01重量%以下、Cl含有量が0.05重量%以下、Na含有量が0.01重量%以下、さらに鉄化合物、マンガン化合物、コバルト化合物、クロム化合物、銅化合物、バナジウム化合物およびニッケル化合物の合計含有量が、金属に換算して0.02重量%以下であることが好ましい。

水酸化マグネシウム粒子は、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 含有量が、好ましくは99.0重量%以上、より好ましくは99.5重量%以上、さらに好ましくは99.8重量%以上である。

20 (水酸化マグネシウム粒子の製造方法)

水酸化マグネシウム粒子は、水溶性マグネシウム塩にアルカリを加え共沈させたスラリーを水熱処理して水酸化マグネシウム粒子を製造する際に1価有機酸を存在させると、アスペクト比が高い本発明の水酸化マグネシウムが得られる。

水溶性マグネシウム塩として、塩化マグネシウム、硝酸マグネシウム、酢酸マグネシウム、硫酸マグネシウム等が挙げられる。アルカリとして、苛性ソーダ、水酸化カルシウム、水酸化カリウム、アンモニア水等が挙げられる。1価の有機酸として、酢酸、プロピオン酸、酪酸、蟻酸が挙げられる。またそれらのナトリウム塩、カリウム塩、マグネシウム塩、カルシウム塩等が挙げられる。

アルカリの使用量は、水溶性マグネシウム塩 1 モルに対して、好ましくは 20
～ 200 モル、より好ましくは 30 ～ 100 モル、さらに好ましくは 40 ～ 90
モルである。1 価有機酸の使用量は、水溶性マグネシウム塩 1 モルに対して、好
ましくは 0.001 ～ 10 モル、より好ましくは 0.01 ～ 5.0 モル、さらに
5 好ましくは 0.05 ～ 3.0 モルである。

水熱処理の温度は、好ましくは 100 ～ 300℃、より好ましくは 110 ～ 2
50℃、さらに好ましくは 130 ～ 200℃である。

(表面処理剤)

水酸化マグネシウム粒子は、表面処理剤で表面処理をすることが好ましい。表
10 面処理剤としては、高級脂肪酸類、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、
カップリング剤（シラン系、チタネート系、アルミニウム系）および多価アルコ
ールと脂肪酸のエステル類、アクリルポリマーおよびシリコーン処理剤等からな
る群から選ばれた少なくとも 1 種が挙げられる。

高級脂肪酸類として、ステアリン酸、エルカ酸、パルミチン酸、ラウリン酸、
15 ベヘニン酸等の炭素数 10 以上の高級脂肪酸類、これら高級脂肪酸のアルカリ金
属塩が挙げられる。

アニオン系界面活性剤として、ステアリルアルコールやオレイルアルコール等
の高級アルコールの硫酸エステル塩、ポリエチレングリコールエーテルの硫酸エ
ステル塩、アミド結合硫酸エステル塩、エステル結合硫酸エステル塩、エステル
20 結合スルホネート、アミド結合スルホン酸塩、エーテル結合スルホン酸塩、エー
テル結合アルキルアリールスルホン酸塩、エステル結合アルキルアリールスルホ
ン酸塩、アミド結合アルキルアリールスルホン酸塩等が挙げられる。

リン酸エステル類として、オルトリン酸とオレイルアルコール、ステアリルア
ルコール等のモノまたはジエステルまたは両者の混合物であって、それらの酸型
25 またはアルカリ金属塩またはアミン塩等が挙げられる。

カップリング剤として、ビニルエトキシシラン、ビニルトリシラン（2-メトキシ
エトキシ）シラン、ガンマーメタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、
ガンマーアミノプロピルトリメトキシシラン、ベーター（3, 4-エポキシシク

ロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、ガンマーグリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ガンマーメルカプトプロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤類; イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス (ジオクチルパイロフォスフェート) チタネート、イソプロピルトリ (N-アミノエチル-アミノエチル) チタネート、イソプロピルトリデシルベンゼンスルホニルチタネート等のチタネート系カップリング剤類; アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート等のアルミニウム系カップリング剤類等が挙げられる。

多価アルコールと脂肪酸のエステル類として、グリセリンモノステアレート、
10 グリセリンモノオレエート等が挙げられる。

表面処理剤を使用して、水酸化マグネシウム粒子の表面コーティング処理をするには、それ自体公知の湿式または乾式法により実施できる。例えば湿式法としては、水酸化マグネシウムのスラリーに該表面処理剤を液状またはエマルジョン状で加え、約100℃までの温度で機械的に十分混合すればよい。乾式法として
15 は、水酸化マグネシウムの粉末をヘンシェルミキサー等の混合機により、十分攪拌下で表面処理剤を液状、エマルジョン状、固形状で加え、加熱または非加熱下に十分に混合すればよい。表面処理剤の添加量は、水酸化マグネシウム粒子の重量に基づいて、好ましくは10重量%以下、より好ましくは1.0~8.0重量%、より好ましくは1.0~3.0重量%である。

20 表面処理をした水酸化マグネシウム粒子は、必要により、例えば水洗、脱水、造粒、乾燥、粉碎、分級等の手段を適宜選択して実施し、最終製品形態とすることができる。

(被覆層)

水酸化マグネシウム粒子の耐酸性を上げるために、水酸化マグネシウム粒子の
25 表面を、耐酸性を有する被覆剤より表面被覆することが出来る。被覆剤としては、例えばケイ素、アルミニウム、チタン、ジルコニア、亜鉛およびホウ素からなる群より選ばれる少なくとも一種の元素の、酸化物または水酸化物である。ケイ酸およびその可溶性塩類を作用させて形成したケイ素の酸化物または水酸化物から

なる被覆層を有することが好ましい。

被覆剤の使用量は水酸化マグネシウム粒子に対し、好ましくは2重量%以下、より好ましくは0.01～1.5重量%、より好ましくは0.01～1.0重量%である。

- 5 被覆層の上をさらに、高級脂肪酸類、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、カップリング剤および多価アルコールと脂肪酸のエステル類からなる群より選ばれる少なくとも一種の表面処理剤で表面処理することができる。

<樹脂組成物>

- 本発明の樹脂組成物は、(i) 100重量部の樹脂および(ii) 20～300重量部の熱伝導性改良剤を含有する樹脂組成物であって、熱伝導性改良剤は20nm～0.2μmの厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比(長径/厚み)が10以上の水酸化マグネシウム粒子である前記樹脂組成物である。
- 10

- 本発明の樹脂組成物は、半導体や抵抗体やコンデンサー等の発熱部分の封止材料、基盤、ハウジング、熱交換器、軸受け等の放熱性の要求される部品の材料として用いることができる。
- 15

- 樹脂は、通常、成形品として使用されるものであればよい。その例としてはポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン/プロピレン共重合体、ポリブデン、ポリ・4-メチルペンテン-1等の如きC₂～C₈オレフィン(α-オレフィン)の重合体もしくは共重合体、これらオレフィンとジエンとの共重合体類、エチレン-アクリレート共重合体、ポリスチレン、ABS樹脂、AAS樹脂、AS樹脂、MBS樹脂、エチレン/塩ビ共重合樹脂、エチレン酢ビ共重合樹脂、エチレン-塩ビ-酢ビグラフト重合樹脂、塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニル、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、塩ビプロピレン共重合体、酢酸ビニル樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアセタール、ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイド、ポリフェニレンサルファイド、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、メタクリル樹脂等の熱可塑性樹脂が例示できる。
- 20
- 25

熱可塑性樹脂の好ましい例としては、ポリオレフィンまたはその共重合体が挙

げられる。具体的には、ポリプロピレンホモポリマー、エチレンプロピレン共重合体の様なポリプロピレン系樹脂、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、EVA（エチレンビニルアセテート樹脂）、EEA（エチレンエチルアクリレート樹脂）、EMA（エチレンアクリル酸メチル共重合樹脂）、EAA（エチレンアクリル酸共重合樹脂）、超高分子量ポリエチレンの様なポリエチレン系樹脂、およびポリブテン、ポリ4-メチルペンテン-1等の $C_2 \sim C_6$ のオレフィン（ α -エチレン）の重合体もしくは共重合体が挙げられる。

さらに、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、尿素樹脂等の熱硬化性樹脂およびEPDM、ブチルゴム、イソプレングム、SBR、NBR、クロロスルホン化ポリエチレン、NIR、ウレタンゴム、ブタジエンゴム、アクリルゴム、シリコンゴム、フッ素ゴム等の合成ゴムを例示することができる。

樹脂組成物中の水酸化マグネシウム粒子の含有量は、100重量部の樹脂に対して、好ましくは10～300重量部、より好ましくは25～200重量部である。

本発明の樹脂組成物は、熱伝導性改良助剤を含有していてもよい。熱伝導性改良助剤としては、繊維状または鎖上の無機物質が使用され、これらは天然品でも合成品でもよい。これら助剤の具体例を示すと、繊維状の無機物質としては、例えば、塩基性硫酸マグネシウム、炭素繊維、ワラスナイト、ホウ酸アルミニウム、チタン酸カリウム、セピオライト、ゾノトライトが例示され、また鎖状の無機物質としては、例えばアセチレンブラックが例示される。樹脂組成物中の熱伝導性改良助剤の含有量は、100重量部の樹脂に対して、好ましくは200重量部以下、より好ましくは0.01～150重量部、さらに好ましくは0.1～100重量部である。

本発明の樹脂組成物には、各種の添加剤、補強材、充填剤等を加えることが出来る。これらを例示すると加硫剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、難燃剤、光安定剤、金属不活性化剤、架端剤、着色剤、硬化剤、滑剤、造核剤、発泡剤、脱臭剤、リトポン、クレー、木片、ガラス繊維、フェライト、カーボンブラック、タルク、

マイカ、炭酸カルシウム、赤燐、錫およびその無機塩類、金属繊維、金属粉末などの添加剤、補強材、充填剤が挙げられる。

<成形品>

- 本発明は、前記樹脂組成物からなる成形品を包含する。成形品として放熱シート、放熱板、放熱ケース、放熱カバーなどが挙げられる。

<樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法>

- 本発明は、樹脂および水酸化マグネシウム粒子を含有する樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法であって、樹脂100重量部に対して、10nm~0.2μmの厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上である水酸化マグネシウム粒子を20~300重量部配合させることを特徴とする前記方法を包含する。樹脂および水酸化マグネシウム粒子は前述の通りである。

実施例

水酸化マグネシウム粒子、樹脂組成物の特性は以下の方法で測定した。

- (a) 熱伝導率：ISO/CD 22007-2による。装置：ホットディスク法熱物性測定装置 TPA-501（京都電子工業製）7mmφセンサー RTK-7を使用。

(b) BET法比表面積：「触媒」（Vol. 2 No. 4 473ページ 1960年 高木徳二）記載の方法に従って測定した。

- (c) アスペクト比：

SEM法：水酸化マグネシウム粒子のSEM写真（20000倍率？）中、任意の10個の結晶子の長径、厚さの測定値の算術平均から求める。

原子間力顕微鏡法：OLYMPUS社製 OLS3500タイプにより測定。

(d) CaO、Cl, Na：蛍光X線法（ベース：原子吸光法）

- (e) Fe, Mn, Cu, V, Co, Ni, Crの分析：ICP-MS法（Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry）

(f) Mg(OH)₂：キレート滴定法

- (g) 引っ張り強さ : J I S K 6 3 0 1 (加硫ゴム物理試験方法)
(h) 伸び : J I S K 6 3 0 1 (加硫ゴム物理試験方法)
(i) 硬さ : J I S K 6 2 5 3 (スプリング式タイプA)

5 実施例 1

塩化マグネシウムと酢酸ソーダの混合水溶液 ($Mg = 1.0$ モル/L, 酢酸ソーダ $= 1.5$ モル/L, $30^{\circ}C$) 400 L に、 3.0 モル/L の水酸化ナトリウム水溶液 ($30^{\circ}C$) 213 L を攪拌下に加え共沈反応させた。この反応物全量を 1.0 KL オートクレーブにより $160^{\circ}C$ で 5 時間水熱処理を行った。 $100^{\circ}C$

- 10 以下に冷却後、オートクレーブから取り出し、ろ過、水洗、乾燥、粉碎した。

得られた水酸化マグネシウムを SEM で観察し、写真を取り、10 個の結晶子の長径と厚みを測定し平均した。その結果長径は、 $2.6 \mu m$ 、厚さは $0.12 \mu m$ 、したがってアスペクト比が 21 であった。原子間力顕微鏡で測定したアスペクト比は 46 であった。

15 実施例 2

試薬 1 級の塩化マグネシウムと酢酸ソーダの混合水溶液 ($Mg = 2.0$ モル/L, 酢酸ソーダ $= 2.0$ モル/L, $30^{\circ}C$) 4 L に、 8 モル/L のアンモニア水溶液 ($30^{\circ}C$) 1.8 L を攪拌下に加え共沈反応させた。この反応物 1 L をとり、オートクレーブに入れ、 $250^{\circ}C$ で 3 時間水熱処理を行った。 $100^{\circ}C$ 以下に冷却後、オートクレーブから取り出し、ろ過、水洗、乾燥、粉碎した。

- 20

得られた水酸化マグネシウムを SEM で観察し、写真を取り、10 個の結晶子の横幅と厚みを測定し平均した。その結果横幅は、 $4.5 \mu m$ 、厚さは $0.06 \mu m$ 、したがってアスペクト比が 75 であった。原子間力顕微鏡で測定したアスペクト比は 130 であった。

25 実施例 3

試薬 1 級の硝酸マグネシウムとプロピオン酸ソーダの混合水溶液 ($Mg = 1.5$ モル/L, プロピオン酸ソーダ $= 1.0$ モル/L, $35^{\circ}C$) 5 L に 8 モル/L のカセイソーダ ($35^{\circ}C$) 1.6 L を攪拌下に加え共沈反応させた。この反応物 1

Lを取り、オートクレーブにより180℃で4時間水熱処理を行った後、実施例1と同様に処理した。

得られた水酸化マグネシウムをSEMで測定した結果、結晶の横幅は、3.8 μm 、厚さは0.09 μm 、アスペクト比は42であった。原子間力顕微鏡で測定したアスペクト比は73であった。

実施例4

硝酸マグネシウムと酢酸アンモニウムの混合水溶液 ($\text{Mg} = 1.5 \text{ モル/L}$, 酢酸アンモニウム = 1.5 モル/L , 35℃) 400 Lに4 モル/L のアンモニア水 (35℃) 240 Lを攪拌下に加え共沈反応させた。この反応物全量を1.0 KLオートクレーブにより200℃で4時間水熱処理を行った後、実施例1と同様にして行った。得られた水酸化マグネシウムをSEMで観察し、写真を取り測定した結果、結晶子の長径は、3.5 μm 、厚さは0.11 μm 、アスペクト比は31であった。原子間力顕微鏡で測定したアスペクト比は78であった。

実施例5 (表面処理)

実施例1で得られた水酸化マグネシウム粒子500 gをヘンシェルミキサーに入れ、高速攪拌下に水酸化マグネシウム粒子の重量に対し、1重量%に相当する5 gのビニルシランを50 mLのエタノールに希釈後、添加し表面処理した。これを120℃で乾燥した。

比較例1

実施例1において、酢酸ソーダを用いない以外は実施例1と同様に行った。得られた水酸化マグネシウム粒子の結晶子の長径は0.77 μm 、厚さは0.14 μm 、アスペクト比が5.5であった。原子間力顕微鏡で測定したアスペクト比は10であった。

実施例1～4、比較例1で得られた水酸化マグネシウム粒子の特性を表1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
アスペクト比 ¹⁾	21	75	42	31	5.5
アスペクト比 ²⁾	46	130	73	78	10
BET 法比表面積 (m ² /g)	9.5	17.0	12.1	13.5	6.5
CaO (wt%)	0.001>	0.001>	0.001>	0.001>	0.011
Cl (wt%)	0.005	0.011	0.010	0.010	0.037
Na (wt%)	0.001	0.001	0.002	0.001	0.013
Fe (wt%)	0.001	0.003	0.002	0.003	0.005
Mn (wt%)	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
Cu (wt%)	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下
V (wt%)	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下
Co (wt%)	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下
Ni (wt%)	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下
Cr (wt%)	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下	0.0001 以下
Mg(OH) ₂ (wt%)	99.91	99.90	99.87	99.90	99.58

1) SEM 法によるアスペクト比

2) 原子間力顕微鏡法によるアスペクト比

実施例 6

ジメチルビニルシリコーンゴム (T S E 2 0 1 モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製) 1 0 0 重量部と、熱伝導性充填剤として実施例 1 で得られた水酸化マグネシウム粒子 1 0 0 重量部をニーダーに仕込み、
5 混練を行った。充分混練されたジメチルビニルシリコーンゴムコンパウンドを取り出し、これに架橋剤、2, 5-ジメチル-2, 5-tert-ブチルパーオキシヘキササン (T C-8, モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製) 1. 0 重量部を均一に混合し組成物を調製した。

得られた組成物を厚さ 2 mm のシートとし、1 6 0 °C × 1 0 分の条件でプレス加硫を行った後、2 0 0 °C × 4 時間で二次加硫を行った。その後、常温に戻して 2 4 時間経過後に、シートの硬度、引っ張り強さ、伸びを J I S - K 6 3 0 1 (加硫ゴム物理試験方法) に従って測定した。さらに熱伝導率を I S O / C C 2 2 0 0 7 - 2 に従い、ホットディスク法熱物性測定装置 T P A - 5 0 1 (京都電子工業製) を用いて測定した。評価結果を表 2 に示す。

15 実施例 7

実施例 6 において実施例 1 で得られた水酸化マグネシウム粒子を、実施例 2 で得られた水酸化マグネシウム粒子に置き換える以外は実施例 6 と同様にシートを調製し、熱伝導率を測定した。評価結果を表 2 に示す。

実施例 8

20 実施例 6 において実施例 1 で得られた水酸化マグネシウム粒子を、実施例 3 で得られた水酸化マグネシウム粒子に置き換える以外は実施例 6 と同様にシートを調製し、熱伝導率を測定した。評価結果を表 2 に示す。

実施例 9

25 実施例 6 において実施例 1 で得られた水酸化マグネシウム粒子を、実施例 4 で得られた水酸化マグネシウム粒子に置き換える以外は実施例 6 と同様にシートを調製し、熱伝導率を測定した。評価結果を表 2 に示す。

比較例 2

実施例 6 において実施例 1 で得られた水酸化マグネシウム粒子を、比較例 1 で

得られた水酸化マグネシウム粒子に置き換える以外は実施例 6 と同様にシートを調製し、熱伝導率を測定した。評価結果を表 2 に示す。

表 2

試料	使用した水酸化 マグネシウム粒 子	温度	出力	時間	熱伝導率 (W/m・K)				硬度 (JIS A)	引っ張り 強さ (MPa)	伸び (%)
		(°C)	(W)	(sec)	r=1	r=2	r=3	平均			
実施例 6	実施例 1	23	0.12	10	0.953	0.945	0.941	0.946	41	1.57	350
実施例 7	実施例 2	23	0.12	10	0.959	0.952	0.948	0.953	46	2.26	210
実施例 8	実施例 3	23	0.12	10	0.948	0.941	0.939	0.942	45	2.15	220
実施例 9	実施例 4	23	0.12	10	1.010	0.987	0.981	0.992	46	2.30	190
比較例 2	比較例 1	23	0.07	20	0.548	0.548	0.542	0.545	39	1.35	425

実施例 10-1 (放熱シートの作成)

ジメチルビニルシリコーンゴム (TSE 201 モメンティブ・パホーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製) 100重量部と、実施例4で得られた水酸化マグネシウム粒子25重量部を二軸オープンロールで混練した。この場合
5 のロール幅10目盛にて生のジメチルビニルシリコーンゴムをロールに巻き付け、高アスペクト比水酸化マグネシウム粒子を徐々に投入。ロール幅13目盛りで10回切り返し、加硫剤2, 5-ジメチル-2, 5-tert-ブチルパーオキシヘキサ
ン (TC-8、モメンティブ・パホーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製) を添加し、再度10回切り返し混練する。取り出しはロール幅15目盛で1
10 0回切り返し後、シリコーンゴムコンパウンドを採取した。

このシリコーンゴムコンパウンドを厚さ2mmのシートとし、160℃×10分の条件でプレス加硫を行った後、200℃×4時間で二次加硫を行い、放熱シートを調製した。その後、常温に戻して24時間経過後に、シートの、引っ張り強さ、伸び、硬度および熱伝導率を測定した。評価結果を表3に示す。

15 実施例 10-2～実施例 10-4 (放熱シートの作成)

実施例4で得られた水酸化マグネシウム粒子の配合量を表3に示す量にする以外は、実施例10-1と同様に放熱シートを調製した。評価結果を表3に示す。

実施例 10-5

実施例2で得られた水酸化マグネシウム300gを粉碎し、イソプロピルアルコールに攪拌機を用い、分散させた後、メチルハイドロジェンシリコーン (信越化学性、KF-9901) を9g加え、表面処理した。この後、ろ過、乾燥、粉碎した。この粉末を、ジメチルビニルシリコーンゴム100重量部に対し、100重量部、および架橋剤 (パーオキサイド) を加え、オープンロールで、混合後、
20 プレス成型機を用い160℃で、10分架橋させ、直径50mm、厚さ3.0mmに加圧成型した。この試料を用い、定常熱流法 (ASTM E1530に準拠) で熱伝導率を測定した。その結果を表3に示す。

実施例 10-6

実施例3で得られた水酸化マグネシウムを粉碎し、実施例5と同様にして、シ

リコーンで表面処理した後、ジメチルビニルシリコーンゴム 100 重量部に対し、100 重量部配合した後、混練、成型し試験片を作成した。この試験片の、熱伝導性の測定結果を表 3 に示す。

比較例 3

- 5 実施例 10-1 において実施例 4 で得られた水酸化マグネシウム粒子 25 重量部の代わりに、キスマ 8（協和化学工業株式会社製水酸化マグネシウム、SEM 法によるアスペクト比 4.8）を 100 重量部用いる以外は、実施例 10-1 と同様に放熱シートを調製し熱伝導率を測定した。評価結果を表 3 に示す。

10

表 3

	実施 例 10-1	実施 例 10-2	実施 例 10-3	実施 例 10-4	実施 例 10-5	実施 例 10-6	比較 例 3
ジメチルビニルシリコーンゴムの量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100
実施例 4 で得られた水酸化マグネシウムの量(重量部)	25	45	70	100	-	-	-
実施例 2 で得られた水酸化マグネシウムの量(重量部)	-	-	-	-	100	-	-
実施例 3 で得られた水酸化マグネシウムの量(重量部)	-	-	-	-	-	100	-
キスマ 8 の量(重量部)	-	-	-	-	-	-	100
引っ張り強度 (Mpa)	1.12	1.46	1.81	2.13	1.07	0.89	0.81
伸び(%)	347	340	418	351	210	215	428
硬さ(JIS A)	22	27	38	46	46	49	29
熱伝導率(W/m・K)	0.35	0.50	0.65	0.80	0.85	0.91	0.54

キスマ 8: 協和化学工業株式会社製水酸化マグネシウム(SEM 法によるアスペクト比 : 4.8)

発明の効果

- 15 本発明の熱伝導性改良剤は、高いアスペクト比を有する水酸化マグネシウム粒子を有効成分とするので樹脂に高い熱伝導性を付与することが出来る。本発明の熱

伝導性改良剤を含有する樹脂組成物は、高い熱伝導性を有する。本発明の熱伝導性を向上させる方法によれば、樹脂組成物の物性を低下させることなく樹脂組成物の熱伝導性を向上させることが出来る。

請 求 の 範 囲

1. 10 nm～0.2 μ mの厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比（長径／厚み）が10以上である水酸化マグネシウム粒子を有効成分とする熱伝導性改良剤。
- 5
2. 水酸化マグネシウム粒子のアスペクト比が15以上である請求項1記載の熱伝導性改良剤。
- 10
3. 水酸化マグネシウム粒子のBET法比表面積が10～30 m²/gである請求項1記載の熱伝導性改良剤。
- 15
4. 水酸化マグネシウム粒子の、CaO含有量が0.01重量%以下、Cl含有量が0.05重量%以下、Na含有量が0.01重量%以下、さらに鉄化合物、マンガン化合物、コバルト化合物、クロム化合物、銅化合物、バナジウム化合物およびニッケル化合物の合計含有量が、金属に換算して0.02重量%以下であり、Mg(OH)₂含有量が99.5重量%以上である請求項1記載の熱伝導性改良剤。
- 20
5. 高級脂肪酸類、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、カップリング剤および多価アルコールと脂肪酸のエステル類、シリコーンオイル、からなる群より選ばれる少なくとも一種の表面処理剤により表面処理されている請求項1記載の熱伝導性改良剤。
- 25
6. ケイ素、アルミニウム、チタン、ジルコニア、亜鉛およびホウ素からなる群より選ばれる少なくとも一種の元素の、酸化物または水酸化物からなる被覆層を有する請求項1記載の熱伝導性改良剤。

7. ケイ酸およびその可溶性塩類を作用させて形成したケイ素の酸化物または水酸化物からなる被覆層を有する請求項1記載の熱伝導性改良剤。

8. 被覆層の上がさらに、高級脂肪酸類、アニオン系界面活性剤、リン酸エステル類、カップリング剤および多価アルコールと脂肪酸のエステル類からなる群より選ばれる少なくとも一種の表面処理剤により表面処理されている請求項6または7に記載の熱伝導性改良剤。

9. 請求項1記載の熱伝導性改良剤を有効成分とする放熱剤。

10. (i) 100重量部の樹脂および(ii) 20~300重量部の熱伝導性改良剤を含有する樹脂組成物であって、熱伝導性改良剤は10nm~0.2μmの厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比(長径/厚み)が10以上の水酸化マグネシウム粒子である前記樹脂組成物。

11. 樹脂が、シリコンゴムである請求項10記載の樹脂組成物。

12. 請求項10記載の樹脂組成物からなる成形品。

13. 請求項10記載の樹脂組成物からなる放熱シート。

14. 樹脂および水酸化マグネシウム粒子を含有する樹脂組成物の熱伝導性を向上させる方法であって、樹脂100重量部に対して、10nm~0.2μmの厚みを有し、かつSEM法によるアスペクト比(長径/厚み)が10以上である水酸化マグネシウム粒子を20~300重量部配合させることを特徴とする前記方法。