

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-199562

(P2005-199562A)

(43) 公開日 平成17年7月28日(2005.7.28)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
B 3 2 B 7/02	B 3 2 B 7/02 1 0 5	4 F 1 0 0
D 2 1 H 13/44	D 2 1 H 13/44	4 L 0 5 5

審査請求 未請求 請求項の数 12 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2004-8270 (P2004-8270)	(71) 出願人	000003078 株式会社東芝 東京都港区芝浦一丁目1番1号
(22) 出願日	平成16年1月15日(2004.1.15)	(74) 代理人	100058479 弁理士 鈴江 武彦
		(74) 代理人	100091351 弁理士 河野 哲
		(74) 代理人	100088683 弁理士 中村 誠
		(74) 代理人	100108855 弁理士 蔵田 昌俊
		(74) 代理人	100084618 弁理士 村松 貞男
		(74) 代理人	100092196 弁理士 橋本 良郎

最終頁に続く

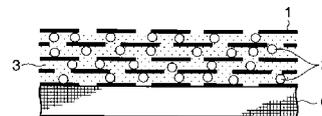
(54) 【発明の名称】 テープ部材或いはシート部材並びにテープ部材或いはシート部材の製造方法

(57) 【要約】

【課題】熱伝導性が高いテープ部材或いはシート部材を提供することを目的とし、また製造法が容易な高熱伝導化されたテープ部材或いはシート部材の製造方法を提供すること。

【解決手段】マイカを含む層と裏打ち材からなるマイカテープ部材或いはマイカシート部材において、前記マイカを含む層が鱗片状粒子と0.5 W/mK以上の熱伝導率を持ち、かつ1 μm以下の粒子と結着剤からなるテープ部材或いはシート部材である。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

マイカを含む層と裏打ち材からなるマイカテープ部材或いはマイカシート部材において、
前記マイカを含む層が鱗片状粒子と 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子と結着剤からなるテープ部材或いはシート部材。

【請求項 2】

前記結着剤は、ゾルゲル法により析出又は合成した物質である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 3】

前記結着剤は、ゾルゲル法により析出又は合成し、かつ有機系樹脂を含む物質である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 4】

前記結着剤は、ゾルゲル法により析出又は合成した無機酸化物が高分子鎖と化学的に結合した構造の物質である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 5】

前記結着剤は、水溶性高分子である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 6】

前記結着剤は、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 7】

前記マイカを含む層が鱗片状粒子とゾルゲル法により析出又は合成した物質である請求項 1 記載のテープ部材或いはシート部材。

【請求項 8】

鱗片状粒子と、 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーと、結着剤を媒体中に入れて混合液体を得る第 1 の工程と、

前記第 1 の工程で得た混合液体を濾過乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第 2 の工程と、

前記第 2 の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第 3 の工程と

からなるテープ部材或いはシート部材の製造方法。

【請求項 9】

鱗片状粒子と、 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーと、水中に入れて混合液体を得る第 1 の工程と、

前記第 1 の工程で得た混合液体を濾過乾燥し、この濾過乾燥により得られた中間体のペーパーに結着剤を含浸すると共に乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第 2 の工程と、

前記第 2 の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第 3 の工程と

からなるテープ部材或いはシート部材の製造方法。

【請求項 10】

0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーに、結着剤を入れてスラリー液体を得る第 1 の工程と、

鱗片状粒子と、水又は溶剤を混合して鱗片状粒子混入スラリーを得る第 2 の工程と、

前記第 2 の工程で得られた鱗片状粒子混入スラリーを濾過乾燥することにより中間体のペーパーを得る第 3 の工程と、

前記第 3 の工程で得られた中間体のペーパーに、前記第 1 の工程で得られたスラリー液体を含浸し、かつ乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/mK 以上の熱伝導

10

20

30

40

50

率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第 4 の工程と、
前記第 4 の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第 5 の工程と、

からなるテープ部材或いはシート部材の製造方法。

【請求項 1 1】

金属アルコキシドと水と溶剤を混合して混合液体を得る第 1 の工程と、
第 1 の工程で得られた混合液体に触媒を混合してゾル液を得る第 2 の工程と、
鱗片状粒子と水を混合した液体を、濾過乾燥することにより中間体のペーパーを得る第 3 の工程と、
前記第 3 の工程で得たペーパーに前記第 2 の工程で得たゾル液を含浸乾燥して微粒子混入ペーパーを得る第 4 の工程と、
前記第 4 の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第 5 の工程と、

10

からなるテープ部材或いはシート部材の製造方法。

【請求項 1 2】

金属アルコキシドと、水と、 $0.5\ \text{W/mK}$ 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリと、溶剤を混合して混合液体を得る第 1 の工程と、
第 1 の工程で得られた混合液体に触媒を混合してゾル液を得る第 2 の工程と、
鱗片状粒子と水を混合した液体を、濾過乾燥することにより中間体のペーパーを得る第 3 の工程と、
前記第 3 の工程で得たペーパーに前記第 2 の工程で得たゾル液を含浸乾燥して微粒子混入ペーパーを得る第 4 の工程と、
前記第 4 の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第 5 の工程と、

20

からなるテープ部材或いはシート部材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、例えば電磁コイル、電磁機器に使用されるテープ部材或いはシート部材並びにテープ部材或いはシート部材の製造方法に関する。

30

【背景技術】

【0002】

電磁機器を高効率、小型、低コスト化は、電磁コイルの冷却性能を向上させることにより実現できる。電磁コイルの冷却性能を向上させる方法として、電磁コイル周辺に用いられる電気絶縁性の材料を高熱伝導化させることが望まれる。これまでも、無機粉末を含有する裏打ち材を有する高熱伝導性のマイカ基材シート状体が公開されている（特許文献 1 参照）が、この方法では、マイカ層が十分な熱伝導性を示さないため電磁コイルを形成したときの絶縁層の熱伝導率の上昇は不十分であった。

【0003】

また、樹脂に結晶性エポキシ樹脂を用いることにより樹脂の熱伝導率を向上させる方法が公開されている（特許文献 2 参照）が、常温で固形であるなど取り扱いが難しかった。

40

【0004】

さらに、鱗片状の高熱伝導材料とマイカを用いた方法が公開されている（特許文献 3 参照）が、この方法では、鱗片状の高熱伝導材料のアスペクト比が十分に大きくないとマイカペーパーを作製することができず、直径と厚みの比であるアスペクト比が大きい例として鱗片アルミナを用いているが、誘電率が大きいため、電気絶縁材料の用途としては好ましくない。

【特許文献 1】特開 2002 - 93257 号公報

【特許文献 2】特開平 11 - 323162 号公報

【特許文献 3】特開 2000 - 58314 号公報

50

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、熱伝導性が高いテープ部材或いはシート部材を提供することを目的とし、また製造法が容易な高熱伝導化されたテープ部材或いはシート部材の製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

前記目的を達成するため、請求項1に対応する発明は、マイカを含む層と裏打ち材からなるマイカテープ部材或いはマイカシート部材において、前記マイカを含む層が鱗片状粒子と 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子と結着剤からなるテープ部材或いはシート部材である。

10

【0007】

前記目的を達成するため、請求項8に対応する発明は、鱗片状粒子と、 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーと、結着剤を媒体中に入れて混合液体を得る第1の工程と、前記第1の工程で得た混合液体を濾過乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第2の工程と、前記第2の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第3の工程とからなるテープ部材或いはシート部材の製造方法である。

20

【0008】

前記目的を達成するため、請求項9に対応する発明は、鱗片状粒子と、 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーと、水中に入れて混合液体を得る第1の工程と、前記第1の工程で得た混合液体を濾過乾燥し、この濾過乾燥により得られた中間体のペーパーに結着剤を含浸すると共に乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第2の工程と、前記第2の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第3の工程とからなるテープ部材或いはシート部材の製造方法である。

【0009】

前記目的を達成するため、請求項10に対応する発明は、 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーに、結着剤を入れてスラリー液体を得る第1の工程と、鱗片状粒子と、水又は溶剤を混合して鱗片状粒子混入スラリーを得る第2の工程と、前記第2の工程で得られた鱗片状粒子混入スラリーを濾過乾燥することにより中間体のペーパーを得る第3の工程と、前記第3の工程で得られた中間体のペーパーに、前記第1の工程で得られたスラリー液体を含浸し、かつ乾燥することにより前記鱗片状粒子に、前記 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を混入した微粒子混入ペーパーを得る第4の工程と、前記第4の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第5の工程とからなるテープ部材或いはシート部材の製造方法である。

30

40

【0010】

前記目的を達成するため、請求項12に対応する発明は、金属アルコキシドと、水と、 0.5 W/m K 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリーと、溶剤を混合して混合液体を得る第1の工程と、第1の工程で得られた混合液体に触媒を混合してゾル液を得る第2の工程と、鱗片状粒子と水を混合した液体を、濾過乾燥することにより中間体のペーパーを得る第3の工程と、前記第3の工程で得たペーパーに前記第2の工程で得たゾル液を含浸乾燥して微粒子混入ペーパーを得る第4の工程と、前記第4の工程で得られた微粒子混入ペーパーと裏打ち材を貼り合わせる第5の工程とからなるテープ部材或いはシート部材の製造方法である。

【発明の効果】

50

【0011】

本発明では、熱伝導性が高いテープ部材或いはシート部材を提供でき、かつ、製造法が容易な高熱伝導化されたテープ部材或いはシート部材の製造方法を提供できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

<実施例1>

図1は、本発明のマイカテープ部材或いはマイカシート部材の断面図を示している。このマイカテープ部材或いはマイカシート部材は、マイカを含む層と、裏打ち材からなり、前記マイカを含む層は鱗片状粒子1と、 0.5 W/mK 以上の熱伝導率を持ち、かつ $1\ \mu\text{m}$ 以下の粒子（以下熱伝導粒子と呼ぶ）2と、結着剤3からなる。

10

【0013】

ここで、鱗片状粒子1としては、マイカ、窒化ホウ素の少なくとも1つを含むものである。

【0014】

また、熱伝導粒子2としては、窒化ホウ素、アルミナ、窒化珪素、酸化マグネシウム、カーボン、窒化アルミニウム、酸化珪素（シリカ）、人工ダイヤモンド、酸化チタンのうちの少なくとも1つを含むものである。

【0015】

更に、裏打ち材6としてはガラスクロス、高分子フィルム例えばポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ノームックス（商品名）のいずれかである。

20

【0016】

鱗片状粒子1として窒化ホウ素（水島合金鉄製HP-1CAW）を使用し、また結着剤3として水溶性高分子の一例であるイソプロピレンエラストマー（クラレ製セプトン2007）を使用し、窒化ホウ素にエラストマーを複合し、これに熱伝導粒子2として平均粒径が $90\ \text{nm}$ のカーボンブラック（旭カーボン製アサヒサーマル）を添加した場合である。この場合、窒化ホウ素の充填量は、窒化ホウ素とイソプロピレン系エラストマーの体積和に対して0.6倍の体積量で一定とした。

【0017】

このように構成したことにより、図2に示すようにカーボンブラックの添加量に伴って熱伝導率が上昇し、これに対し何も添加しない樹脂の場合には、熱伝導率が $0.25\sim 0.5\ (\text{W/mK})$ であり、窒化ホウ素だけを添加した場合には、本実施例のようにカーボンブラックを添加することで4倍近くの熱伝導率を得ることができた。これは、カーボンブラック粒子が窒化ホウ素粒子間に存在することによって窒化ホウ素間の樹脂の弾性率が上昇し、その結果、窒化ホウ素粒子間の熱の流れが改善されたため、熱伝導性能が向上したと考えられる。

30

【0018】

図3は、熱伝導粒子2として前述のカーボンブラックの代わりに、 $70\ \text{nm}$ のアルミナを充填したものである。この場合、カーボンブラックと比較してさらに熱伝導率の上昇が観測された。この結果は、PCT/JP03/08564に本出願人が開示した内容である。同様の考え方により、マイカ鱗片とアルミナの粒子を複合することによって高い熱伝導率が得られる。

40

【0019】

そこで、 $3\ (\text{g})$ のマイカ鱗片と、 $40\ (\text{nm})$ のアルミナの $15\ (\text{wt}\%)$ の水スラリー（シーアイ化成製）を $1\ (\text{g})$ を、 $2000\ (\text{ml})$ の水例えば蒸留水中に攪拌混合（混合分散）し、この液体を濾紙の上に流し、水を濾過した後、 25°C で24時間放置、乾燥することによってマイカ鱗片と微細アルミナを複合したマイカペーパーを得た。しかしながら、このような微細アルミナ複合マイカペーパーは極めて強度が悪く、触れるとばらばらになってしまうほどであり、取扱い上問題があった。これは、微細な粒子がマイカ鱗片間に存在することによって、マイカ鱗片間のファンデルワールス力に起因する結合力が弱くなったためと考えられた。

50

【0020】

この結合力を強めるため、2000 (ml) の蒸留水中に水溶性高分子であるポリエチレングリコールをマイカ鱗片に対して1 (phr) となるように溶解させ、上述と同様の手法によって微細アルミナを複合したマイカペーパーを得た。その結果、十分にハンドリングできる程度の強度を有するマイカペーパーを得ることができた。このように、マイカ層と裏打ち材からなるマイカテープあるいはマイカシートにおいて、マイカ層が鱗片状粒子と0.5 (W/mK) 以上の熱伝導率を持つ粒子と結着剤からなることにより、熱伝導性が高く、かつ、製造法が容易な高熱伝導化された電磁コイルおよび電磁機器を提供できた。

【0021】

ここで、鱗片状の粒子として、マイカ層の代わりに窒化ホウ素を使用すれば、窒化ホウ素はマイカ層の数10倍の熱伝導性を有しているため高い熱伝導率を得ることができる。従来も鱗片状のアルミナを用いた例があるが、アルミナの誘電率が7と高いため、電気絶縁用途として使用すると、絶縁材料表面の電界が高くなるため、高電圧印加時の電気特性(誘電損失)が低下する。それに対して、窒化ホウ素の誘電率は4であり、マイカと同等であるため、電気特性を低下させることはない。

【0022】

このように、窒化ホウ素をマイカの代わりに使用する、あるいは、マイカと窒化ホウ素を混用して使用することにより、熱伝導性が高く、かつ、製造法が容易な高熱伝導化された電磁コイルおよび電磁機器を提供できる。

【0023】

ここで、熱伝導粒子の熱伝導率を0.5 (W/mK) 以上に限定したのは、バインダーとなる結着剤よりも高い熱伝導率を持つことが重要であるためである。なお、結着剤としてポリエチレングリコールを使用したが、水溶性であることが重要であり、その他の水溶性高分子においても同様の効果が得られることは明らかである。水溶性であれば、従来の製造方法における工程を変更する必要がないので、都合がよい。

【0024】

なお、実施例1における熱伝導率は、レーザーフラッシュ法により測定した値である。

【0025】

<実施例2>

本発明の実施例2のテープ部材或いはシート部材は、結着剤として熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂のいずれかを使用したものである。実施例1では、結着剤として水溶性高分子を使用した場合であるが、従来のマイカテープ部材或いはシート部材の造工程では水溶性高分子を用いないため、コストが上がる原因になる。この点を改善するため、以下のようにしたものである。

【0026】

図4に示すように、鱗片状粒子1としてマイカを使用し、これを蒸留水10を攪拌混合する(S1)と共に濾過し(S2)、25で24時間乾燥して(S3)、マイカペーパー14を得る。一方、実施例1で使用したアルミナ水スラリーの代わりに、40 (nm) のアルミナのメチルイソブチルケトンスラリー(アルミナMIBKスラリー)11を使用し、これを、40 (nm) のアルミナのメチルイソブチルケトンスラリー1000 (ml) 中に液状エポキシ樹脂(チバスペシャルティエケミカルズ製CY225)12を20 (g) と酸無水物硬化剤(チバスペシャルティエケミカルズ製HY925)13を16 (g) を攪拌混合(S4)し、未硬化状態の樹脂を得る。この未硬化状態の熱硬化性樹脂を前述のように得られたマイカペーパー14に滴下含浸し(S5)、150で24時間乾燥硬化する(S6)ことによりアルミナ微粒子混入マイカペーパー15を得た。

【0027】

以上述べた実施例は、結着剤として熱硬化性樹脂を使用した例であるが、これを熱可塑性樹脂に代えてもよい。

【0028】

このようにして製造したマイカペーパーは、十分にハンドリングできる程度の強度を有していた。このように、テープおよびシート部材において結着剤が熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂であることにより、熱伝導性が高く、かつ、製造法が容易な高熱伝導化された電磁コイルおよび電磁機器を提供できた。

【0029】

<実施例3>

実施例1および2に示した手法は、40 (nm) のナノアルミナを高分子系の結着剤で保持する手法であり、この手法においても、熱伝導性が向上するが、高分子の熱伝導率は、高いものでも0.5 (W/mK) 程度であるため限界がある。

【0030】

そこで、実施例3では結着剤として、ゾルゲル法により析出又は合成し、かつ有機系樹脂を含む物質を使用した。具体的には図5で示すように、金属アルコキシド例えばテトラエトキシシラン (例えば、高純度化学製) 16を10 (ml) と、水例えば蒸留水17を20 (ml) 中に15 (wt%) の40 (nm) のアルミナ水スラリー18と溶剤例えばエタノール19を10 (ml) ビーカーに入れ、スターラーで20分間攪拌混合する (S7)。その後、触媒例えば蒸留水21に2規定の塩酸 (2Nの塩酸) 20を1 (ml) を攪拌しながら滴下し10分間攪拌したゾル液22を得た。マイカ鱗片23を蒸留水24に分散した水を濾過して常温常圧で12時間放置し (S8) て得たマイカペーパー25に、前述のゾル液22を所定の条件で滴下含浸し (S9)、常温常圧で12時間放置して (S10)、アルミナ粒子入りマイカペーパー26を得た。

【0031】

なお、前述の結着剤の滴下の条件は、600 (cm²) あたり10 (ml) 滴下することである。このようにして得たマイカペーパー26は、取扱いに十分な強度を有した。

【0032】

このようにして得たマイカペーパー26を24枚重ねてビスフェノールA型のエポキシ樹脂を真空含浸、硬化させてマイカ板を作製した。硬化条件は150 10時間である。なお、マイカ板の厚みが2mmになるように制御した。このようにして作製したマイカ板の熱伝導率をアセトン・ベンゼン法を用いて、62における熱伝導率を測定した結果、0.36 (W/mK) であった。比較のため、アルミナ粒子と結着剤を含まないマイカペーパーを同様に24枚重ねてエポキシ樹脂を真空含浸、硬化させてマイカ板を作製したものが表1に示す比較例であり、この熱伝導率は、0.23 (W/mK) であった。これに対して実施例3の熱伝導率は、0.36 (W/mK) であった。この結果、比較例と実施例3の両者の熱伝導率の比較を行うと、実施例3の熱伝導率は、比較例と比べて熱伝導率が1.55倍程度の値を示し、高い熱伝導率を有することが明らかとなった。

【0033】

この場合、微細なアルミナが無機結着剤に取り囲まれた状態で、マイカ鱗片間に存在することにより、マイカ鱗片間の熱的な接触を高めたことが要因であると考えられる。

【0034】

実施例3で用いた触媒以外に、酢酸、三弗化ホウ素溶液のような酸、或いは、アンモニア水、水酸化ナトリウム水、アミンのようなアルカリでも、同様に実施できる。

10

20

30

40

【表 1】

	比較例	実施例3	実施例4
マイカ貼りこみ量	120g/m ²	120g/m ²	120g/m ²
アルミナ微粒子	なし	マイカ100に対して5	なし
結着剤	なし	無機結着剤	無機結着剤
熱伝導率	0.23W/mK	0.36W/mK	0.32W/mK

10

【0035】

< 実施例 4 >

実施例 3 では、無機結着剤中に 40 (nm) のアルミナを含む手法を示した。しかしながら、この手法では、アルミナ微粒子のコストが高いため、最終製品であるテープ部材或いはシート部材の価格が高くなる可能性がある。そこで、実施例 4 はアルミナ微粒子を含まない方法である。すなわち、実施例 3 の手法では、40 (nm) のナノアルミナ粒子の水スラリー 18 を用いたが、ここでは水スラリー 18 を用いない点のみが異なり、これ以外は全て実施例 3 と同じ手法である。この結果得られたマイカ板の熱伝導率は、0.32 (W/mK) であった。実施例 4 の結果は、表 1 中に併記した。比較例と比べて 1.3 倍程度の熱伝導率が得られた。

20

【0036】

なお、実施例 4 における熱伝導率は、実施例 2 と同じくアセトン・ベンゼン法を用いて測定した値であり、以下に述べる実施例 3 ~ 12 も同じくアセトン・ベンゼン法を用いて測定した値である。

【0037】

< 実施例 5 >

前述した実施例 3 又は実施例 4 では、結着剤としてゾルゲル法で作製したシリカゲルを用いた手法を記載した。この方法により製造したマイカペーパーは無機の結着剤を用いるため、柔軟性がない。マイカペーパーをガラスクロスと貼り合わせた後にスリットにかけて製造したマイカテープは、電磁機器 (例えば、発電機や電動機) のコイルに巻回し、絶縁層を構成するが、柔軟性がないと巻き回時にマイカペーパーに亀裂が入り、電気絶縁性を低下させる恐れがある。そこで、幅 25 (mm)、厚み 5 (mm) の角棒にマイカペーパーを 25 (mm) 幅に裁断したテープ状の試料を巻回し、テープ切れの試験を行った。マイカの張り込み量が 120 (g/cm²) の場合、テープ切れは発生しなかったが、張り込み量を 240 (g/cm²) とした試料は、テープ切れを起こした。これは、シリカゲルが無機の結着剤であり、伸びが小さいためであると考えられる。

30

【0038】

そこで、ゾルゲル法により得られたマイカペーパーに、未硬化のビスフェノール A 型エポキシ樹脂をメチルエチルケトンで希釈した溶液を塗布した。具体的には、図 6 に示すように、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (チバスベシャリティーケミカルズ社製 CY 225) 12 と酸無水物硬化剤 (チバスベシャリティーケミカルズ社製 HY 925) 13 とメチルエチルケトン (メチルエチルケトン: 和光純率社製) 27 を混ぜ、上部よりアルミナ微粒子混入マイカペーパー 26 に対して滴下含浸し (S 11)、150 で 5 時間加熱硬化して柔軟性を付与したアルミナ微粒子混入マイカペーパー 29 を得た。

40

【0039】

このようにして製造したマイカペーパー 29 を 25 (mm) 幅に裁断し、上述の角棒に巻きつけたところ、テープ切れは起きなかった。これは、結着剤に有機系の樹脂を用いることにより、柔軟性を確保したためであると考えられ、エポキシ樹脂の他にも、シリコー

50

ンゴム、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラールなどにおいても同様の効果が得られることは明らかである。また、テープ切れを起こした張り込み量 $240 \text{ (g/cm}^2\text{)}$ の無機結着剤を用いたマイカペーパーに、メチルエチルケトン $600 \text{ (cm}^2\text{)}$ に対して 4 (ml) 滴下し、5時間常温常圧で乾燥したところ、柔軟性を持ったマイカペーパーを得ることができた。詳細な理由は明らかでないが、溶剤や樹脂がマイカ鱗片間に入ることによって潤滑剤のように働いたためであると考えられる。

【0040】

今回効果を確認したのは、メチルエチルケトン 27 であるが、その他の溶剤、例えば、エチルアルコール、ブチルアルコール、イソプロパノール、トルエン、キシレンなどにおいても同様の効果が得られることは明らかである。

10

【0041】

<実施例 6>

本実施例は、結着剤としてゾルゲル法により析出又は合成した無機酸化物が高分子鎖と化学的に結合した構造の物質を使用した場合である。前述の実施例 3 では、無機結着剤に加えて、有機結着材あるいはさらに樹脂を含浸させることによって柔軟性を発揮できた。しかしながら、無機結着剤を合成、乾燥した後に有機結着剤を塗布乾燥する必要があり、この方法では、製造工程が長くなってしまふ。そこで、図 7 に示したゾルゲル法により製造した無機酸化物が高分子鎖と化学的に結合した構造を持つ結着剤を用いることが有効である。テトラエトキシシラン（高純度化学製）30 を 30 (ml) と、ポリジメチルシロキサン（東芝シリコン製 XF3095）31 を 20 (ml) と、イソプロピルアルコール（和光純薬製）32 を 15 (ml) と、テトラヒドロキシフラン（BASF 製）33 を 10 (ml) を、 200 (ml) のビーカーに入れ、常温常圧でスターラーで 2 時間攪拌混合し (S13)、A 液 34 を得た。2 規定の塩酸 35 を 10 (ml) と、蒸留水 36 を 30 (ml) を、上記 A 液 34 中に攪拌しながら滴下して加えた。この液を密閉された丸底フラスコ内にて 70 () で 48 時間加温し (S14)、B 液 37 を得た。B 液 37 を実施例 3 の無機結着剤と同様にしてマイカペーパー 38 に滴下含浸し (S15)、その後 300 () で 24 時間加温し (S16)、有機無機ハイブリッドマイカペーパー 39 を得た。

20

【0042】

このようにして製造したマイカペーパー 39 は、無機微粒子を含有し、さらに無機微粒子と有機成分が化学的に結合しているため、高い熱伝導性と柔軟性を兼ね備えた材料とすることができた。

30

【0043】

表 2 は、実施例 1 から実施例 5 に示した各実施例のまきつけ性に関する試験結果を示す。ここでまきつけ性とは、 5×25 のアルミバーに 25 (mm) 幅に裁断した各テープを巻きつけた際、テープ切れを起こす確率で求めた。結着剤を用いることにより、箔が形成できるようになり、さらに実施例 2 を除くすべての方法でまきつけ性が改善することが明らかである。

【表 2】

	比較例1	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
マイカ箔 貼り込み量	240g/m ²	120g/m ²	240g/m ²	240g/m ²	240g/m ²	240g/m ²
アルミナ (40nm)	12g/m ²	6g/m ²	12g/m ²	12g/m ²	12g/m ²	12g/m ²
結着剤	なし	無機 結着剤	無機 結着剤	無機 結着剤 +溶剤	無機 結着剤 +樹脂	有機無機 ハイ ブリッド
ペーパー 製造可否	否	可	可	可	可	可
亀裂が 入る確率	—	0	3/4	0	0	0

10

20

【0044】

この実施例6は、シリコン系の樹脂を有機高分子鎖に用いたものであるが、同様に、エポキシ樹脂を用いたものでも効果がある。テトラエトキシシラン30を30(m^l)と、シランカップリング剤A187 10(m^l)と蒸留水5(m^l)とエタノール10(m^l)を200(m^l)のビーカーで10分攪拌し、攪拌しながらジエチレンアミンを0.6(m^l)を滴下した液をB液として、上述の主方と同様にマイカペーパーを作製したところ、テープ切れを起こさないマイカペーパーを製造できた。これは、A187中のエポキシ基がアミンと結合し、有機高分子鎖を形成し、柔軟性を確保したためであると考えられる。

30

【0045】

<実施例7>

実施例7は、図8に示すように結着剤3として連続する空孔4を有するものを使用したものである。マイカテープは、電磁機器(例えば、発電機や電動機)のコイルに巻回し、絶縁層を構成するが、この構成方法として真空加圧含浸法がある。これは、マイカテープをコイル導体に巻き回した後、含浸樹脂中に浸漬し、真空引き後、加圧し、しかる後、乾燥機で硬化させる方法である。このとき、マイカテープ中に含浸樹脂を十分に染み込ませることで、コイルとしての電気絶縁性能を高めることが必要であるが、マイカテープへの含浸樹脂の染み込みやすさが重要な要素になる。

40

【0046】

そこで、結着剤4を図8に示すように連続する空孔4を有した構成にすることにより、染み込みやすくなる。この構成によれば、高い電気絶縁性能と高い熱伝導性能を兼ね備えた絶縁を形成することができる。

50

【0047】

<実施例8>

実施例8は、テープ部材或いはシート部材の製造方法として、図9に示すように鱗片状粒子例えばマイカ鱗片40と、0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つ15(wt%)の40(nm)のアルミナ水スラリー18と、結着剤42を媒体例えば蒸留水43中に攪拌混合(分散)させ(S17)、ろ過し(S18)、しかる後25で24時間乾燥させて(S19)、アルミナ微粒子混入マイカペーパー44を得る。その後、以下のような工程を経てアルミナ微粒子混入マイカシート48を得る方法である。すなわち、前述のマイカペーパー44に、裏打ち材例えばガラスクロス45を、エポキシ樹脂46及び硬化剤47を用いて貼り合せ(S20)、その後130で10分間乾燥し(S21)、アルミナ微粒子混入マイカシート48を得る方法である。

10

【0048】

ここで、従来通常に行われているマイカペーパー及びマイカシートの製造工程について、図10を参照して説明する。マイカ鱗片40と蒸留水43を攪拌混合し(S17)、これを濾過し(S18)、更に25で24時間乾燥し(S19)、マイカペーパー49を得る。その後マイカペーパー49に裏打ち材例えばガラスクロス45を、エポキシ樹脂46及び硬化剤47を用いて貼り合せ(S20)、その後130で10分間乾燥し(S21)、マイカシート50を得る方法である。

【0049】

以上述べた実施例8は、図10に示す従来の通常行われている製造方法において、0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つ15(wt%)の40(nm)のアルミナ水スラリー18と結着剤42をさらに加えるだけで製造工程を大きく変えることなく製造できる。そのため、製造に掛かるコストを低減できる最も優れた製造法である。

20

【0050】

なお、以上述べた実施例8の製造方法は、前述した実施例1～実施例4の製造方法としても使用できる。

【0051】

<実施例9>

実施例9のテープ部材或いはシート部材の製造方法は、図11に示すようにマイカ鱗片40と0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つ15(wt%)の40(nm)のアルミナ水スラリー18を媒体例えば蒸留水43中に攪拌混合(分散)させ(S17)、更に濾過し(S18)、25で24時間乾燥させ(S19)、この後結着剤42を含浸させた後再度25で24時間乾燥させ(S19a)、これによりアルミナ微粒子混入マイカペーパー44を得る。このようにして得られたマイカペーパー44に、裏打ち材例えばガラスクロス45を、エポキシ樹脂46及び硬化剤47を用いて貼り合せ(S20)、その後130で10分間乾燥し(S21)、マイカシート48を得る方法である。

30

【0052】

実施例9の製造方法によれば、環境にやさしく材料コストを低減した製造方法にすることができる。ここで、前述の実施例8で示した製造工程は、工数を増やすことなくテープ部材或いはシート部材を得ることができる点で優れているものの、図9に示した製造方法では、結着剤42が、濾過する段階で排出されてしまうため、無駄になる材料が多くなる。これに比べて図11に示す製造方法では、濾過した後乾燥した後であって、マイカペーパーを製造する際の最後の乾燥工程の前に結着剤42を含浸させるようにしたので、結着剤42のロスが減らし、結果として、環境にやさしく材料コストを低減した製造方法にすることができる。

40

【0053】

<実施例10>

実施例10のテープ部材或いはシート部材の製造方法は、図12に示すように、鱗片状粒子例えばマイカ鱗片40を媒体例えば蒸留水43中に攪拌混合(混合分散)させ(S17)、

50

この混合液体を濾過し(S 1 8)、その後25で24時間乾燥させ(S 1 9)、これにより中間体のペーパーを得る。

【0054】

一方、後結着剤42及び0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つ15(wt%)の40(nm)のアルミナ水スラリー18を攪拌混合(混合分散)し(S 1 9 b)、これにより得られたアルミナ微粒子のスラリーを、前述した中間体のペーパーに含浸させた後再度25で24時間乾燥させ(S 1 9 a)、これによりアルミナ微粒子混入マイカペーパー44を得る。このようにして得られたマイカペーパー44に、裏打ち材例えばガラスクロス45を、エポキシ樹脂46及び硬化剤47を用いて貼り合せ(S 2 0)、その後130で10分間乾燥し(S 2 1)、マイカシート48を得る方法である。

10

【0055】

以上述べた実施例10によれば、次のような作用効果が得られる。前述した実施例8ならびに実施例9に示した製造方法を用いると濾過の工程で、0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つ粒子が排出されてしまうため、無駄になる粒子が多くなる。これに対して図12に示す製造方法では、マイカペーパー44中に後から0.5(W/mK)以上の熱伝導率を持つアルミナ微粒子41と結着剤42を含浸するため、結着剤42ならびにアルミナ微粒子41のロスを減らし、結果として、環境にやさしく材料コストを低減した製造方法を提供することができる。

【0056】

<実施例11>

実施例11は、図13に示すように、金属アルコキシド例えばテトラエトキシラン16と水例えば蒸留水17と溶剤例えばエタノール19を混合して混合液体を得る。その後、その混合液体に触媒例えば蒸留水21に2規定の塩酸(2Nの塩酸)20を1(ml)を攪拌しながら滴下し10分間攪拌したゾル液22を得た。一方、マイカ鱗片23を水例えば蒸留水24に攪拌混合(分散混合)した水を濾過して常温常圧で12時間放置し(S 8)

20

)、中間体のマイカペーパー25を得る。次に、中間体のマイカペーパー25に前述のように得られたゾル液22を滴下含浸し(S 9)、これを常温常圧で12時間放置し(S 1 0)、この結果乾燥して無機結着材入りペーパー例えばシリカゲル入りマイカペーパー49を得る。この後、シリカゲル入りマイカペーパー49に、実施例11と同様に、マイカペーパー26に、裏打ち材例えばガラスクロス45を、エポキシ樹脂46及び硬化剤47を用いて貼り合せ(S 2 0)、その後130で10分間乾燥し(S 2 1)、マイカシート例えばシリカゲル入りマイカシート50を得る方法である。

30

【0057】

この実施例も、前述と同様な作用効果が得られる。

【0058】

<実施例12>

実施例12は、図14に示すように、金属アルコキシド例えばテトラエトキシラン16と、水例えば蒸留水17と、0.5W/mK以上の熱伝導率を持ち、かつ1μm以下の粒子を水又は溶剤に混合したスラリー例えばアルミナ水スラリー18と、溶剤例えばエタノール19を混合して混合液体を得る。その後の工程は、前述したな実施例11と同一である。

40

【0059】

<実施例13>

図15は、前述の実施例1乃至実施例7のいずれかの製造方法により得られたシート部材或いはテープ部材を用いて電磁コイルの導体5を構成した例を説明するための図である。実施例1乃至実施例7のいずれかの製造方法により得られたシート部材或いはテープ部材は、熱伝導性と柔軟性に優れた部材である。さらに、裏打ち材であるガラスクロスに高熱伝導性の窒化ホウ素(たとえば、水島合金鉄製HP-6)を充填することによって高い熱伝導性を持つことができる。

50

【0060】

実施例3で示した高い熱伝導率を持つマイカペーパーの裏打ち材であるガラスクロスにセプトン2007に窒化ホウ素60(vol%)と70(nm)のアルミナ10(vol%)を混練した樹脂を塗りこむことによって得られたマイカシートを30mm幅に裁断したマイカテープをコイル導体に巻き回し、その上からポリプロピレンの離型テープを巻き回し、ビスフェノールA型エポキシ樹脂中で真空含浸した。これを取り出し、アルミ製のあて板をコイルの4面に当て、熱収縮チューブを巻回した。これを150の乾燥機で10時間乾燥硬化させ、コイルを得た。

【0061】

このようにして製造した電磁コイルは熱放散性に優れている。絶縁層6から2mm厚み、直径35mmの円盤を切り抜き、アセトン・ベンゼン法にて熱伝導率を測定したところ、0.8W/mKであった。通常の方法で形成した主絶縁層の熱伝導率は0.22W/mK程度である。

【0062】

<実施例14>

図16は、前述した実施例8の製造方法により作製したシート部材或いはテープ部材を発電機の絶縁物に使用した例を説明するための断面図である。このようにして製造した発電機は、コイルの冷却性能が優れているため、コイルの温度上昇を抑制することができる。実施例13で得た熱放散性に優れたコイルを鉄心に挿入し、電流を流し、コイルの温度上昇を計測した。その結果、本実施例で製造したコイルは、通常のマイカテープを用いたときと比較してコイル温度を10(K)程度に低減することができ、極めて冷却性能が高いことが明らかになった。これは、同じ形格、体格でも電流密度を上昇できることから、銅や鉄の量を軽減することができる。

【0063】

また、前述の実施例9に示した製造方法により得られたシート部材或いはテープ部材を発電機に使用することによって高効率の発電機が提供できた。

【図面の簡単な説明】

【0064】

【図1】本発明の実施例1を説明するためのシート部材或いはテープ部材の断面図。

【図2】図1のシート部材或いはテープ部材の熱伝導率のカーボンブラック量依存性を示す図。

【図3】図1のシート部材或いはテープ部材の熱伝導率のアルミナ量依存性を示す図。

【図4】本発明の実施例2のアルミナ微粒子混入マイカペーパーの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図5】本発明の実施例3のアルミナ微粒子混入マイカペーパーの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図6】本発明の実施例4のアルミナ微粒子混入マイカペーパーの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図7】本発明の実施例5の有機無機ハイブリッドマイカペーパーの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図8】本発明の実施例7を説明するためのシート部材或いはテープ部材の断面図。

【図9】本発明の実施例8のアルミナ微粒子混入マイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図10】従来のマイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図11】本発明の実施例9のアルミナ微粒子混入マイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図12】本発明の実施例10のアルミナ微粒子混入マイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図13】本発明の実施例11のアルミナ微粒子混入マイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図14】本発明の実施例12のアルミナ微粒子混入マイカシートの製造方法を説明するためのフローチャート。

【図15】本発明の実施例13を説明するための発電機の coils の一部を断面した図。

【図16】本発明の実施例14を説明するための発電機の coils の一部を断面した図。

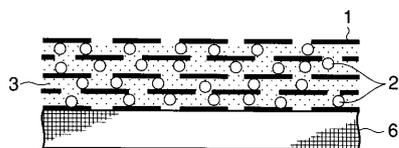
【符号の説明】

【0065】

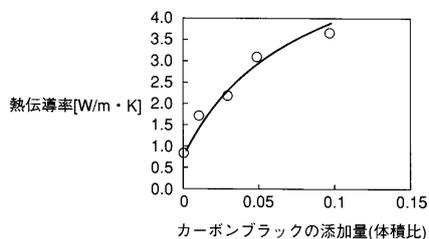
1 ... 鱗片状粒子、2 ... 熱伝導粒子、3 ... 結着剤、4 ... 空孔、5 ... 蒸留水、10 ... 蒸留水、11 ... メチルイソブチルケトンスラリー、12 ... 液状エポキシ樹脂、13 ... 酸無水物硬化剤、14 ... マイカペーパー、15 ... アルミナ微粒子混入マイカペーパー、16 ... テトラエトキシシラン、17 ... 蒸留水、18 ... アルミナ水スラリー、19 ... エタノール、20 ... 塩酸、21 ... 蒸留水、22 ... ゾル液、23 ... マイカ鱗片、24 ... 蒸留水、25 ... マイカペーパー、26 ... アルミナ粒子入りマイカペーパー、27 ... ブチルグリシジルエーテル、29 ... 柔軟性を付与したアルミナ微粒子混入マイカペーパー、30 ... テトラエトキシシラン、31 ... ポリジメチルシロキサン、32 ... イソプロピルアルコール、33 ... テトラヒドロキシフラン、34 ... A液、35 ... 塩酸、36 ... 蒸留水、37 ... B液、38 ... マイカペーパー、39 ... 有機無機ハイブリッドマイカペーパー、40 ... マイカ鱗片、41 ... アルミナ微粒子、42 ... 結着剤、43 ... 蒸留水、44 ... アルミナ微粒子混入マイカペーパー、45 ... ガラスクロス、46 ... エポキシ樹脂、47 ... 硬化剤、48 ... アルミナ微粒子混入マイカシート、49 ... シリカゲル入りマイカペーパー、50 ... シリカゲル入りマイカシート。

10

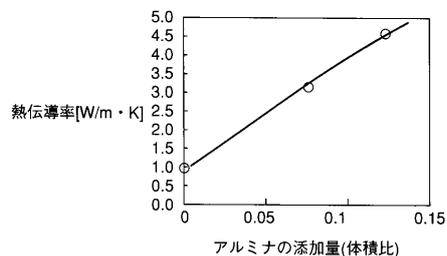
【図1】



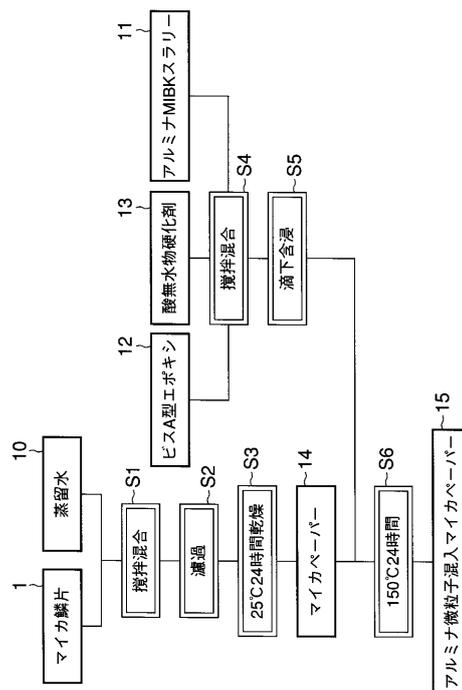
【図2】



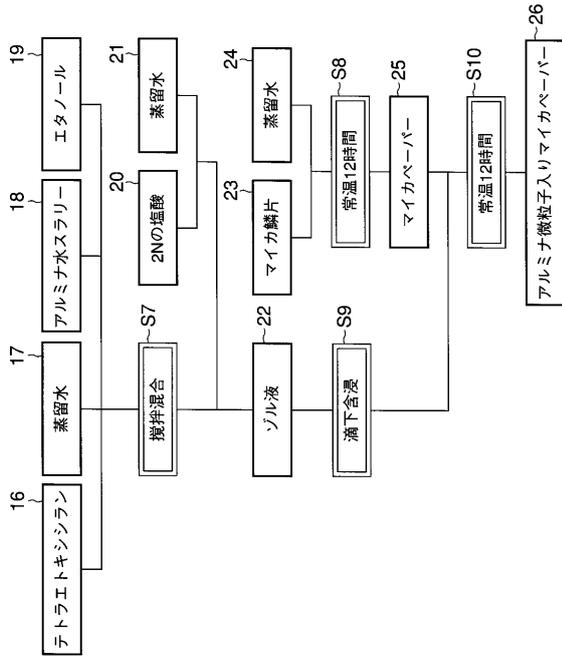
【図3】



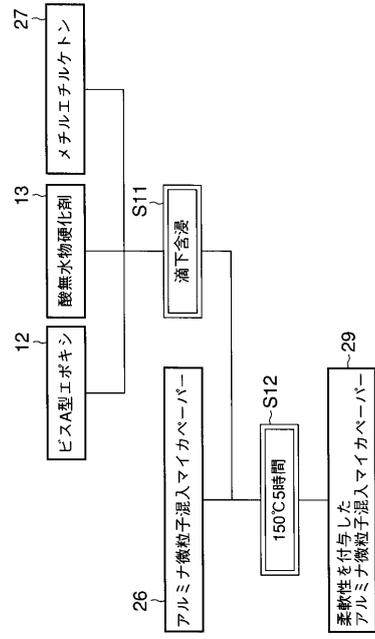
【図4】



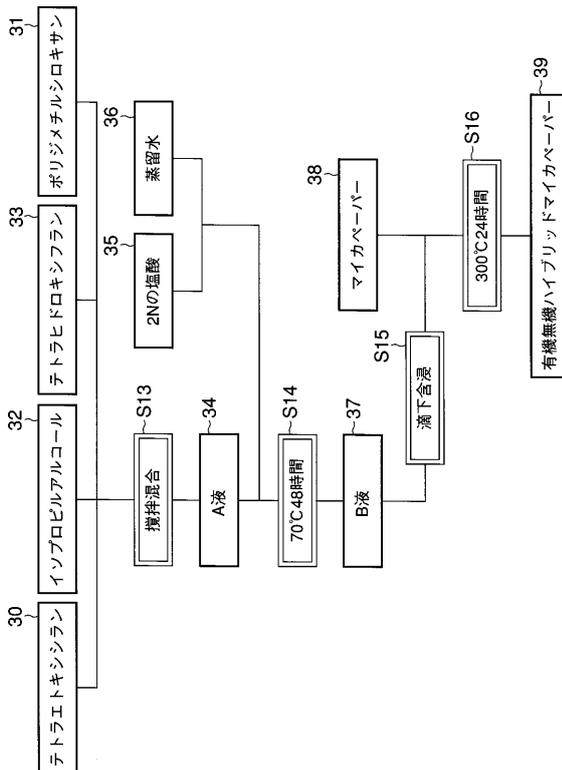
【 図 5 】



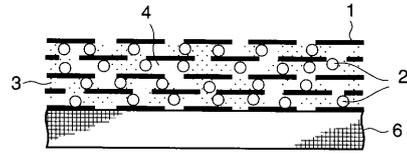
【 図 6 】



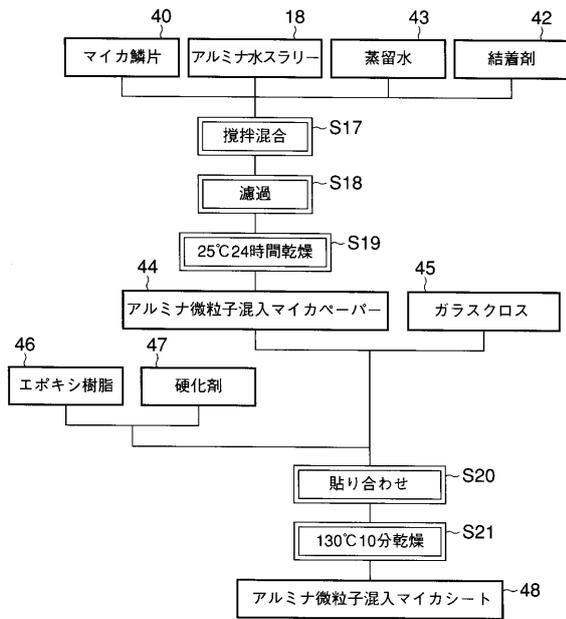
【 図 7 】



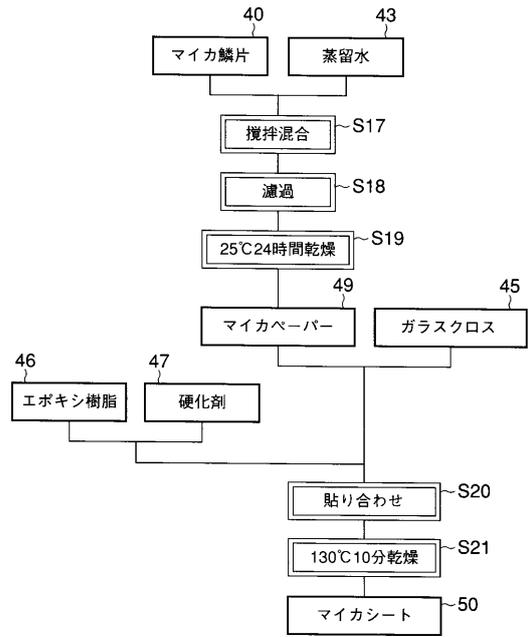
【 図 8 】



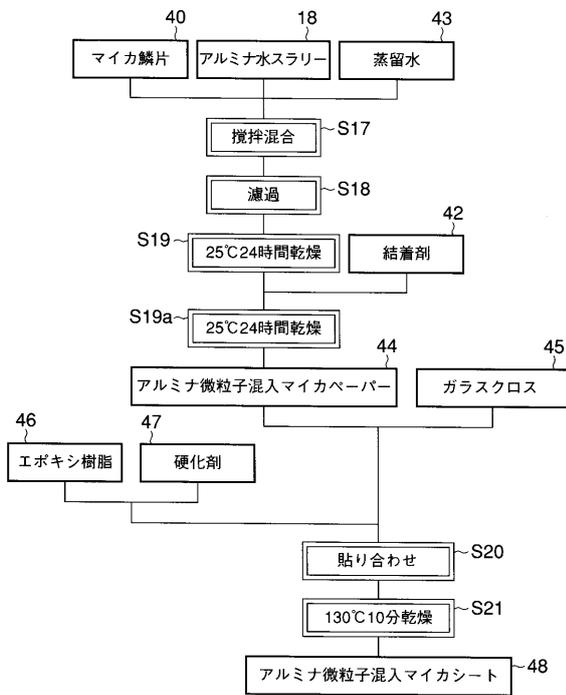
【 図 9 】



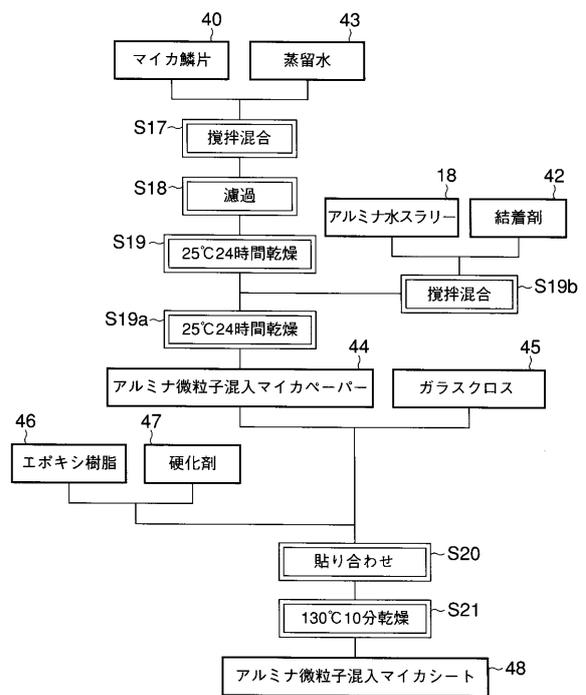
【 図 10 】



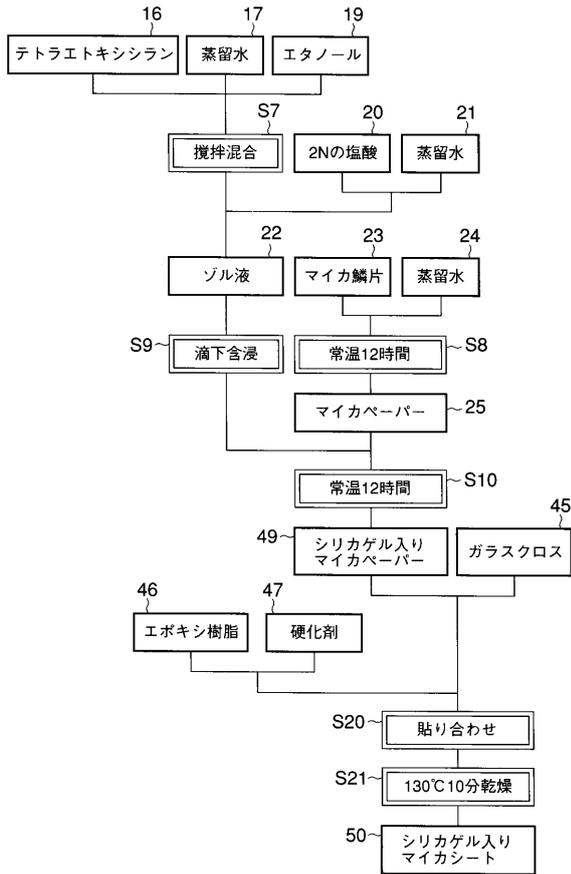
【 図 11 】



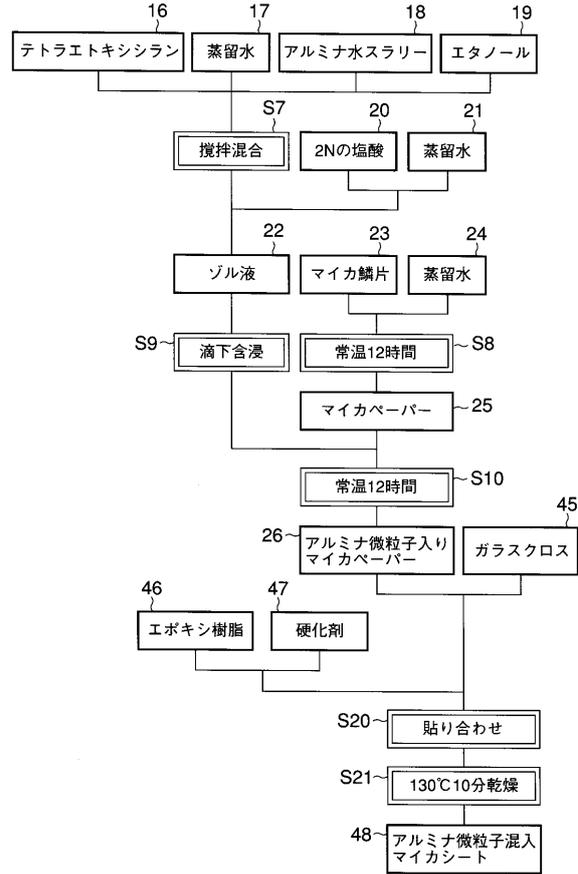
【 図 12 】



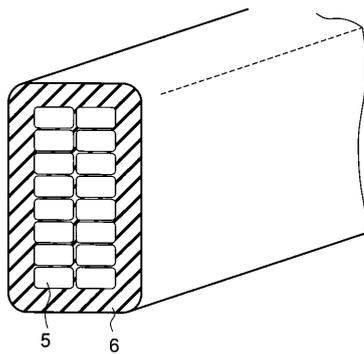
【 図 1 3 】



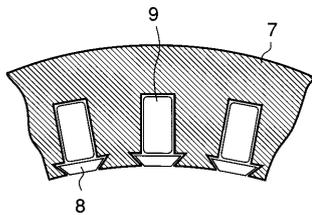
【 図 1 4 】



【 図 1 5 】



【 図 1 6 】



フロントページの続き

(72)発明者 岡本 徹志
神奈川県横浜市鶴見区末広町2丁目4番地 株式会社東芝京浜事業所内

(72)発明者 澤 史雄
神奈川県横浜市鶴見区末広町2丁目4番地 株式会社東芝京浜事業所内

(72)発明者 岩田 憲之
神奈川県横浜市鶴見区末広町2丁目4番地 株式会社東芝京浜事業所内

(72)発明者 垣内 幹雄
神奈川県横浜市鶴見区末広町2丁目4番地 株式会社東芝京浜事業所内

(72)発明者 山田 利光
神奈川県横浜市鶴見区末広町2丁目4番地 株式会社東芝京浜事業所内

Fターム(参考) 4F100 AA00A AA14 AA18 AA19 AA20 AA21 AA37 AC05A AG00 AK01A
AK21 AK42 AK47 AK53 AR00B BA02 DE01A DE02A DG12 GB41
JB09A JB13A JB16A JJ01A YY00A
4L055 AF05 AG17 AG38 AH01 EA16 EA19 FA30 GA38 GA42 GA50