

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6358795号  
(P6358795)

(45) 発行日 平成30年7月18日(2018.7.18)

(24) 登録日 平成30年6月29日(2018.6.29)

(51) Int.Cl.

F I

<b>A 6 1 B</b>	<b>8/00</b>	<b>(2006.01)</b>	A 6 1 B	8/00	
<b>H 0 4 R</b>	<b>17/00</b>	<b>(2006.01)</b>	H 0 4 R	17/00	3 3 0 J
<b>C 0 8 L</b>	<b>101/00</b>	<b>(2006.01)</b>	C 0 8 L	101/00	
<b>C 0 8 K</b>	<b>3/04</b>	<b>(2006.01)</b>	C 0 8 K	3/04	
<b>G 0 1 N</b>	<b>29/24</b>	<b>(2006.01)</b>	G 0 1 N	29/24	

請求項の数 11 (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2013-233450 (P2013-233450)  
 (22) 出願日 平成25年11月11日(2013.11.11)  
 (65) 公開番号 特開2015-93012 (P2015-93012A)  
 (43) 公開日 平成27年5月18日(2015.5.18)  
 審査請求日 平成28年9月15日(2016.9.15)

(73) 特許権者 000005957  
 三菱鉛筆株式会社  
 東京都品川区大井一丁目28番1号  
 (74) 代理人 100099759  
 弁理士 青木 篤  
 (74) 代理人 100092624  
 弁理士 鶴田 準一  
 (74) 代理人 100114018  
 弁理士 南山 知広  
 (74) 代理人 100165191  
 弁理士 河合 章  
 (74) 代理人 100141162  
 弁理士 森 啓

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 複合板とその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

板状の母材と、

前記母材中に分散し、板面に垂直な方向に配向した黒鉛粒子とを含む音響整合層。

【請求項 2】

前記母材はアモルファス炭素を含む請求項 1 記載の音響整合層。

【請求項 3】

前記母材は硬化後の樹脂を含む請求項 1 または 2 記載の音響整合層。

【請求項 4】

前記黒鉛粒子は前記母材中に均一に分散している請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の音響整合層。 10

【請求項 5】

前記黒鉛粒子は、天然鱗状黒鉛粒子および/または薄片状黒鉛粒子である請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項記載の音響整合層。

【請求項 6】

樹脂に黒鉛粒子を均一に分散させ、

前記黒鉛粒子が均一に分散した樹脂を押出成形機にて棒状に成形し、

前記成形物を加熱して樹脂を硬化させ、

前記成形物を樹脂の硬化前または硬化後において、押出方向と垂直な方向で所要の長さ  
に切断して所要の厚みの板とすること 20

を含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項記載の音響整合層の製造方法。

【請求項 7】

前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記樹脂が硬化された成形物を前記切断の前または切断の後において非酸化性雰囲気中で焼成・炭素化することをさらに含む請求項 6 記載の音響整合層の製造方法。

【請求項 8】

樹脂に黒鉛粒子を均一に分散させ、  
前記黒鉛粒子が均一に分散した樹脂に型内で厚み方向に磁場を印加し、  
磁場を印加した樹脂を硬化させること

を含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項記載の音響整合層の製造方法。

10

【請求項 9】

前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記硬化後において、非酸化性雰囲気中で樹脂を焼成・炭素化することをさらに含む請求項 8 記載の音響整合層の製造方法。

【請求項 10】

アモルファス炭素または硬化した樹脂の棒状の母材と、該母材の軸方向に配向し母材中均一に分散した黒鉛粒子とを含む軸材を複数本束ね、

前記束ねられた軸材の隙間に樹脂を注入して軸材を相互に接着し、

前記隙間に注入された樹脂を硬化させ、そして

前記軸材を、前記軸方向と垂直な方向で所要の長さに切断して所要の厚みの板とすることを、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項記載の音響整合層の製造方法。

20

【請求項 11】

前記軸材は、

樹脂に黒鉛粒子を均一に分散させ押出成形機にて棒状に成形し、そして非酸化性雰囲気中で焼成した軸材、または

樹脂に黒鉛粒子を均一に分散させ押出成形機にて棒状に成形した非焼成の軸材

を含む請求項 10 記載の音響整合層の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、複合板とその製造方法、特に、超音波診断装置において振動子からの波の反射を抑え測定対象層へ通過させる音響整合層または電子部品の放熱のための放熱部材として好適な複合板とその製造方法に関する。

30

【背景技術】

【0002】

超音波診断装置において、振動子として用いられる P Z T の音響インピーダンスは約 35 Mrayl (メガレイル) であるのに対して、測定対象となる人体の音響インピーダンスは 1 ~ 2 Mrayl と著しく異なっている。そのため、振動子と測定対象の中間的な音響インピーダンス値を有する整合層を介在させて超音波を効率よく透過させる必要がある。

【0003】

下記特許文献 1 には、整合層として音響インピーダンスが 1.7 ~ 1.8 程度のポリメチルペンテンを用いることが記載されている。

40

【0004】

特許文献 2 には、エポキシ樹脂のマトリクス中に、4.0 g / cc 以下の密度を有する軽粒子と 4.0 g / cc を超える密度を有する重粒子とを分散させて 3.0 メガレイルから約 7.0 メガレイルの間の音響インピーダンスを有する整合層 108 を得ること、及び、エポキシ樹脂のマトリクス中に、ミクロンサイズの粒子とナノサイズの粒子とを分散させて約 7.0 メガレイルから約 14.0 メガレイルの間の音響インピーダンスを有する整合層 110 を得ることが記載されている。

【先行技術文献】

50

## 【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2013-34138号公報

【特許文献2】特開2013-81241号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、超音波診断装置における音響整合層としての使用に適した新規な複合板とその製造方法を提供することにある。

【0007】

本発明の第2の目的は、電子部品の放熱のための放熱部材としての使用にも適した複合板とその製造方法を提供することにある。

## 【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明によれば、板状の母材と、前記母材中に分散し、板面に垂直な方向に配向した結晶性炭素粉とを含む複合板が提供される。

【0009】

前記母材はアモルファス炭素を含む。

【0010】

或いはまた、前記母材は硬化後の樹脂を含む。

【0011】

前記結晶性炭素粉は前記母材中に均一に分散していることが好ましい。

【0012】

前述の複合板は、樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ、前記結晶性炭素粉が均一に分散した樹脂を押出成形機にて棒状に成形し、前記成形物を加熱して樹脂を硬化させ、前記成形物を樹脂の硬化前または硬化後において所要の長さに切断して所要の厚みの板とすることを含む方法により製造される。

【0013】

前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記樹脂が硬化された成形物を前記切断の前または切断の後において非酸化性雰囲気中で焼成・炭素化することをさらに含むことが好ましい。

【0014】

前述の複合板は、樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ、前記結晶性炭素粉が均一に分散した樹脂に型内で厚み方向に磁場を印加し、磁場を印加した樹脂を硬化させることを含む方法によっても製造される。

【0015】

前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記硬化後において、非酸化性雰囲気中で樹脂を焼成・炭素化することをさらに含むことが好ましい。

【0016】

前述の複合板は、アモルファス炭素または硬化した樹脂の棒状の母材と、該母材の軸方向に配向し母材中に均一に分散した結晶性炭素粉とを含む軸材を複数本束ね、前記束ねられた軸材の隙間に樹脂を注入して軸材を相互に接着し、前記隙間に注入された樹脂を硬化させることを含む方法によっても製造される。

【0017】

前記軸材は、樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ押出成形機にて棒状に成形し非酸化性雰囲気中で焼成しまたは非焼成の軸材、鉛筆芯またはシャープ芯を含む。なお、鉛筆芯やシャープ芯は、樹脂に黒鉛を混合して均一に分散させ押出成形機で細線状に成形した後、熱処理して樹脂を炭素化したものである。

【0018】

軸材の並べ方は、最密充填が望ましいが、一定の間隔を置いても良い。

【0019】

10

20

30

40

50

前述の結晶性炭素粉は、例えば、黒鉛粒子および/または炭素繊維である。

【図面の簡単な説明】

【0020】

【図1】実施例1において得られた複合板の厚み方向の断面の顕微鏡写真である。

【図2】実施例1において得られた複合板の板面方向の断面の顕微鏡写真である。

【図3】厚み方向に磁場を印加しない比較例2において得られた複合板の厚み方向の断面の顕微鏡写真である。

【図4】厚み方向に磁場が印加される実施例2において得られた複合板の厚み方向の断面の顕微鏡写真である。

【図5】軸材の接着による実施例3において得られた複合板の断面の写真である。

10

【実施例】

【0021】

押出成形による配向

<実施例1>

塩化ビニル樹脂30部、フラン樹脂30部、天然鱗状黒鉛(平均粒子径5 $\mu$ m)20部、およびピッチ系黒鉛質炭素繊維(日本グラファイトファイバー製 HC600-15M、平均直径7 $\mu$ m、平均長さ150 $\mu$ m)20部に、可塑剤としてジアリルフタレートモノマーを添加して、ヘンシェルミキサーで分散させた後、3本ロールにて混練し、ペレタイザーにてペレット化し成形用組成物を得た。

【0022】

20

この成形用組成物を、口径20mmのダイスを装着した押出成形機にて棒状に成形して炭素繊維を押し出方向に配向させ、180 $^{\circ}$ のエアオープン中で3時間処理して炭素前駆体とした。その後窒素ガス中で毎時15 $^{\circ}$ で昇温し、1000 $^{\circ}$ で3時間保持して焼成・炭素化し、17mmの軸材を得た。得られた軸材の軸方向(すなわち、後述するように厚み方向)の音速を超音波プローブを使用した水浸法により測定し、密度を測定し、音速と密度から音響インピーダンスを(音速) $\times$ (密度)により計算した。結果を表1に示す。また、軸方向(厚み方向)および軸に垂直な面の方向(すなわち、後述するように板面方向)の断面の顕微鏡写真をそれぞれ図1および図2に示す。

得られた軸材を、焼成・炭素化の前または焼成・炭素化の後において所要の長さに切断することで、所要の厚みを有する複合板が得られる。この場合に、切断前の軸材の軸方向は切断後の複合板の「厚み方向」に相当し、軸に垂直な面の方向は複合板の「板面方向」に相当する。

30

<比較例1>

実施例1で得られた成形用組成物を、口径2.0mmのシート用ダイスを装着した押出成形機にてシート状に成形して炭素繊維を押し出方向に配向させ、180 $^{\circ}$ のエアオープン中で3時間処理し炭素前駆体とした。その後窒素ガス中で毎時15 $^{\circ}$ で昇温し、1000 $^{\circ}$ で3時間保持して焼成・炭素化し、1.5mm厚のシート材を得た。得られたシート材の厚み方向の音速を実施例1と同様にして測定し、密度を測定し、音速と密度から音響インピーダンスを(音速) $\times$ (密度)により計算した。結果を表1に示す。

【0023】

40

【表1】

	音速[m/s]	密度[g/cm <sup>3</sup> ]	音響インピーダンス[Mrayl]
比較例1	2760	1.55	4.3
実施例1	7470	1.55	11.6

図1および図2からわかるように、実施例1で得られる複合板において、黒鉛粒子および炭素繊維が複合板の厚み方向に配向しており、そのため、表1に示すように、音速の値が向上し、11.6Mraylという高い音響インピーダンス値が得られている。また、

50

樹脂を焼成する前においても黒鉛粒子および炭素繊維が焼成後と同じ方向に配向していると考えられるので、焼成前の、硬化した樹脂を母材とする複合板も、音響整合層として有用であることが理解される。

【0024】

磁場による配向

<実施例2>

フラン樹脂90部および薄片状黒鉛（日本黒鉛製UP-5N平均粒子径5 $\mu$ mまたは日本黒鉛製UP-20N平均粒子径20 $\mu$ m）10部に、硬化剤としてp-トルエンスルホン酸3部とメタノール液3部を添加して、高速ホモミキサーを用いて室温化において充分攪拌しながら減圧脱泡操作を施したものを用意した。

10

【0025】

この溶液を厚み2mmの型枠に流し込み、YS型可変式電磁石（玉川製作所製）にて1テスラの磁場を厚み方向に印加後に加熱硬化し、180 $^{\circ}$ のエアオープン中で3時間処理し炭素前駆体とした。その後窒素ガス中で毎時15 $^{\circ}$ で昇温し、1400 $^{\circ}$ で3時間保持し、1.5mm厚のシート材を得た。

【0026】

得られたシート材について、実施例1と同様に音速と密度を測定して音響インピーダンスの値を算出し、さらに、NETZSCH社製レーザーフラッシュ熱物性測定装置LFA457にて厚み方向の熱伝導率を測定した。結果を表2に示す。また、平均粒子径5 $\mu$ mの黒鉛を用いたものについて、厚み方向の断面の顕微鏡写真を図4に示す。

20

<比較例2>

実施例2と同様な工程で、ただし磁場を印加することなく、1.5mm厚のシート材を得た。結果を表2に示す。また、平均粒子径5 $\mu$ mの黒鉛を用いたものについて、厚み方向の断面の顕微鏡写真を図3に示す。

【0027】

【表2】

	平均粒子径	音速 [m/s]	密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	音響インピーダンス [Mrayl]	熱伝導率 [W/(m·K)]
実施例2	5 $\mu$ m	5320	1.55	8.2	11.9
	20 $\mu$ m	5220	1.52	7.9	9.3
比較例2	5 $\mu$ m	4020	1.55	6.2	6.2
	20 $\mu$ m	3860	1.52	5.9	7.7

30

図3および図4からわかるように、樹脂の硬化前に厚み方向に磁場を印加することで、黒鉛粒子が厚み方向に配向し、そのため、表2に示すように、音響インピーダンスの値が向上する。黒鉛の熱伝導率の異方性により、熱伝導率の値も向上するので、放熱部材としても有用である。また、樹脂を焼成する前においても黒鉛粒子が焼成後と同じ方向に配向していると考えられるので、焼成前の、硬化した樹脂を母材とする複合板も、音響整合層および放熱部材として有用であることが理解される。

40

【0028】

黒鉛に代えて炭素繊維を用いても磁場を厚み方向に印加することにより炭素繊維が厚み方向に配向することが確認されている。

【0029】

軸材の接着

<実施例3>

0.5のシャープ芯（uni Nano Dia 0.5mm HB）を束ね、その隙間に、フラン樹脂100部に硬化剤としてp-トルエンスルホン酸3部とメタノール液3部を添加して高速ホモミキサーを用いて室温化において充分攪拌したものを注入し、減

50

圧脱泡操作で脱気し、加熱硬化後、180 のエアオープン中で3時間処理した。実施例1と同様にしてその厚み方向の特性を測定し算出した結果を以下の表3に示す。また、その断面の写真を図5に示す。

【0030】

【表3】

	音速[m/s]	密度[g/cm <sup>3</sup> ]	音響インピーダンス[Mrayl]
実施例3	10450	1.34	14.0

10

本発明の実施態様の一部を以下の項目 1 ~ 12 に記載する。

- 1 板状の母材と、  
前記母材中に分散し、板面に垂直な方向に配向した結晶性炭素粉とを含む複合板。
- 2 前記母材はアモルファス炭素を含む項目1記載の複合板。
- 3 前記母材は硬化後の樹脂を含む項目1または2記載の複合板。
- 4 前記結晶性炭素粉は前記母材中に均一に分散している項目1~3のいずれか1項記載の複合板。
- 5 前記結晶性炭素粉は、黒鉛粒子および/または炭素繊維である項目1~4のいずれか1項記載の複合板。
- 6 樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ、  
前記結晶性炭素粉が均一に分散した樹脂を押出成形機にて棒状に成形し、  
前記成形物を加熱して樹脂を硬化させ、  
前記成形物を樹脂の硬化前または硬化後において所要の長さに切断して所要の厚みの板とすることを含む、複合板の製造方法。
- 7 前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記樹脂が硬化された成形物を前記切断の前または切断の後において非酸化性雰囲気中で焼成・炭素化することをさらに含む項目6記載の複合板の製造方法。
- 8 樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ、  
前記結晶性炭素粉が均一に分散した樹脂に型内で厚み方向に磁場を印加し、  
磁場を印加した樹脂を硬化させることを含む、複合板の製造方法。
- 9 前記樹脂は炭素含有樹脂であり、前記硬化後において、非酸化性雰囲気中で樹脂を焼成・炭素化することをさらに含む項目8記載の複合板の製造方法。
- 10 アモルファス炭素または硬化した樹脂の棒状の母材と、該母材の軸方向に配向し母材中均一に分散した結晶性炭素粉とを含む軸材を複数本束ね、  
前記束ねられた軸材の隙間に樹脂を注入して軸材を相互に接着し、  
前記隙間に注入された樹脂を硬化させることを含む、複合板の製造方法。
- 11 前記軸材は、樹脂に結晶性炭素粉を均一に分散させ押出成形機にて棒状に成形し非酸化性雰囲気中で焼成しまたは非焼成の軸材、鉛筆芯またはシャープ芯を含む項目10記載の複合板の製造方法。
- 12 前記結晶性炭素粉は、黒鉛粒子および/または炭素繊維である項目6~11のいずれか1項記載の複合板の製造方法。

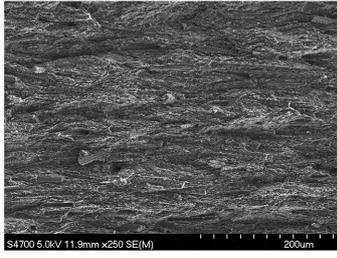
20

30

40

【 図 1 】

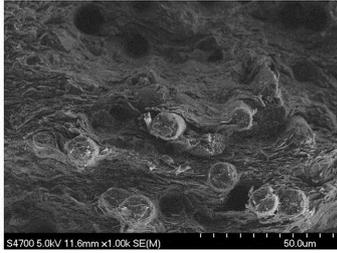
図1



厚み方向の断面

【 図 2 】

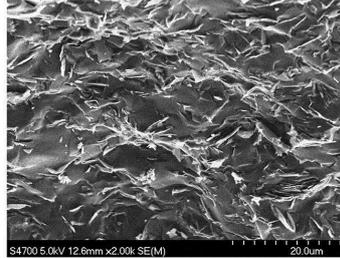
図2



板面方向の断面

【 図 3 】

図3

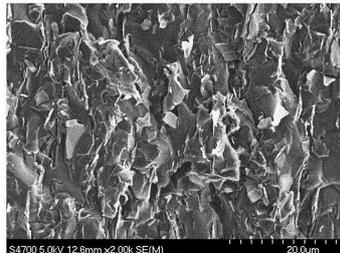


磁場印加なし

↑  
厚み方向

【 図 4 】

図4

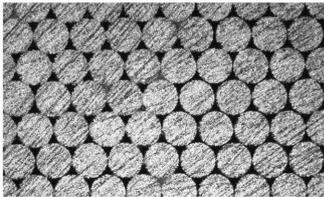


磁場印加あり

↑  
厚み方向

【 図 5 】

図5



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
H 0 4 R 31/00 (2006.01) H 0 4 R 31/00 3 3 0

(72)発明者 大野 俊樹  
群馬県藤岡市立石 1 0 9 1 三菱鉛筆株式会社 群馬工場内

(72)発明者 佐竹 厚則  
群馬県藤岡市立石 1 0 9 1 三菱鉛筆株式会社 群馬工場内

審査官 奥田 雄介

(56)参考文献 特開 2 0 0 0 - 3 2 3 6 3 3 ( J P , A )  
特開 2 0 1 0 - 0 8 4 3 1 6 ( J P , A )  
特開昭 5 7 - 0 5 7 6 9 6 ( J P , A )  
実公昭 5 0 - 0 3 4 1 1 2 ( J P , Y 1 )  
特開 2 0 1 3 - 1 5 3 3 9 8 ( J P , A )  
特開平 0 7 - 2 8 4 1 9 8 ( J P , A )  
米国特許第 0 8 4 3 5 6 0 6 ( U S , B 1 )  
特開 2 0 1 2 - 1 3 4 2 2 1 ( J P , A )  
特開 2 0 0 4 - 1 7 9 9 5 4 ( J P , A )  
特開 2 0 1 2 - 2 4 4 2 7 3 ( J P , A )  
特開 2 0 0 6 - 1 2 9 9 6 5 ( J P , A )  
特開 2 0 0 1 - 3 0 9 4 9 5 ( J P , A )  
特開 2 0 0 3 - 3 2 4 7 9 7 ( J P , A )  
国際公開第 2 0 0 4 / 0 7 5 7 5 3 ( W O , A 1 )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

A 6 1 B 8 / 0 0  
C 0 8 K 3 / 0 4  
C 0 8 L 1 0 1 / 0 0  
G 0 1 N 2 9 / 2 4  
H 0 4 R 1 7 / 0 0  
H 0 4 R 3 1 / 0 0