

(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup> C08L 83/04	(11) 공개번호 (43) 공개일자	특2001-0051681 2001년06월25일
(21) 출원번호	10-2000-0067482	
(22) 출원일자	2000년11월14일	
(30) 우선권주장	99-324086 1999년11월15일 일본(JP)	
(71) 출원인	다우 코닝 도레이 실리콘 캠페니 리미티드 일본국 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1-1-3	
(72) 발명자	에나미히로지 일본치바켄이치하라시치구사가이간2-2 오니시마사유키 일본치바켄이치하라시치구사가이간2-2 오카와다다시 일본치바켄이치하라시치구사가이간2-2 아마코마사아키 일본치바켄이치하라시치구사가이간2-2	
(74) 대리인	이병호	

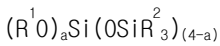
심사청구 : 없음

(54) 열전도성 실리콘 고무 조성물

요약

본 발명은 (A) 경화성 오가노폴리실록산, (B) 경화제 및 (C) 열경화성 충전제의 표면을 화학식 1 및 화학식 2로부터 선택된 화학식을 갖는 올리고실록산으로 처리하여 수득한 충전제를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물에 관한 것이다.

화학식 1



화학식 2



상기 식에서,

R<sup>1</sup>은 알킬이고,

R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이고,

a는 1 내지 3의 정수이고,

b는 1 내지 3의 정수이고,

n은 0 이상의 정수이다.

색인어

열전도성, 실리콘 고무 조성물, 올리고실록산, 취급성, 성형성, 열전도성 충전제

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 열전도성 실리콘 고무 조성물, 더욱 특히 다량의 열전도성 충전제를 함유할지라도 우수한 취

급성 및 성형성을 갖는 열전도성 실리콘 고무 조성물에 관한 것이다.

최근 몇 년 동안, 트랜지스터, IC, 메모리 부재 및 기타 전자 부품이 설치되는 하이브리드 IC 및 인쇄 회로판의 밀도 및 집적도에서의 향상에 이어서, 방열 효율성을 향상시키기 위해 다양한 열전도성 실리콘 고무 조성물이 사용되어 왔다. 부가 반응-경화성 열전도성 실리콘 고무 조성물이 당해 분야에 공지되어 있다. 예를 들면, 일본 공개특허공보 제(소)61[1986]-157569호에는 비닐 그룹-함유 오가노폴리실록산, 오가노하이드로겐폴리실록산, 열전도성 충전제, 알킬 티타네이트, 에폭시실란 및 아미노실란으로부터 선택된 점착제, 및 백금 촉매를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물이 기재되어 있다.

일본 공개특허공보 제(소)62[1987]-184058호에는 분자당 평균 두 개의 알케닐 그룹을 함유하는 오가노폴리실록산, 분자당 평균 세 개 이상의 규소-결합된 수소원자를 함유하는 오가노폴리실록산, 산화아연 및 산화마그네슘을 포함하는 열전도성 충전제, 충전제 처리제 및 백금 촉매를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물이 기재되어 있다.

일본 공개특허공보 제(소)63[1988]-251466호에는 분자당 0.1mol 이상의 알케닐 그룹을 함유하는 오가노폴리실록산, 한 개의 분자에 두 개 이상의 규소-결합된 수소원자를 함유하는 오가노하이드로겐폴리실록산, 평균 입자 크기가 10 내지 50 $\mu$ m인 구형 알루미늄 분말, 평균 입자 크기가 10 $\mu$ m 미만인 구형 또는 비구형 알루미늄 분말, 및 백금 또는 백금 화합물을 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물이 기재되어 있다.

일본 공개특허공보 제(평)02[1990]-041362호에는 알케닐 그룹 함유 오가노폴리실록산, 오가노하이드로겐폴리실록산, 평균 입자 크기가 0.1 내지 5 $\mu$ m인 무정형 알루미늄 분말, 평균 입자 크기가 5 내지 50 $\mu$ m인 구형 알루미늄 분말 및 백금 촉매를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물이 기재되어 있다.

일본 공개특허공보 제(평)02[1990]-097559호에는 한 개의 분자에 두 개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 함유하는 오가노폴리실록산, 한 개의 분자에 세 개 이상의 규소-결합된 수소원자를 함유하는 오가노하이드로겐폴리실록산, 평균 입자 크기가 5 내지 20 $\mu$ m인 열전도성 충전제, 점착 보조제, 및 백금 또는 백금 화합물을 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물이 기재되어 있다.

그러나, 이러한 열전도성 실리콘 고무 조성물에 있어서 문제점은, 이들을 경화시켜 수득되는 실리콘 고무의 열전도성 계수를 향상시키기 위해 조성물에 첨가하는 열전도성 충전제의 함량이 반드시 높아야 하고, 이로써 생성된 실리콘 고무 조성물의 취급성 및 성형성이 악화된다는 것이다.

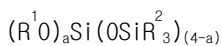
**발명이 이루고자하는 기술적 과제**

본 발명의 목적은 열전도성이 높은 실리콘 고무를 수득하기 위해 첨가되는 다량의 열전도성 충전제를 함유할지라도, 우수한 취급성 및 성형성을 갖는 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제공하는 것이다.

**발명의 구성 및 작용**

본 발명은 (A) 경화성 오가노폴리실록산, (B) 경화제 및 (C) 열경화성 충전제의 표면을 화학식 1 및 화학식 2로부터 선택된 화학식을 갖는 올리고실록산으로 처리하여 수득한 충전제를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물에 관한 것이다.

**화학식 1**



**화학식 2**



상기 식에서,

R<sup>1</sup>은 알킬이고,

R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이고,

a는 1 내지 3의 정수이고,

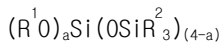
b는 1 내지 3의 정수이고,

n은 0 이상의 정수이다.

본 발명의 열전도성 실리콘 고무 조성물은 열전도성이 높은 실리콘 고무를 수득하기 위해 첨가되는 다량의 열전도성 충전제를 함유할지라도, 우수한 취급성 및 성형성을 가짐을 특징으로 한다.

본 발명에 따르는 열전도성 실리콘 고무 조성물은 (A) 경화성 오가노폴리실록산, (B) 경화제 및 (C) 열경화성 충전제의 표면을 화학식 1 및 화학식 2로부터 선택된 화학식을 갖는 올리고실록산으로 처리하여 수득한 충전제를 포함한다.

화학식 1



화학식 2



상기 식에서,

R<sup>1</sup>은 알킬이고,

R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이고,

a는 1 내지 3의 정수이고,

b는 1 내지 3의 정수이고,

n은 0 이상의 정수이다.

본 발명의 조성물의 경화 메카니즘은 제한되지 않으므로, 하이드로실화 반응, 축합 반응, 유리 라디칼 반응을 제안할 수 있고, 이 중에서 하이드로실화 반응 또는 축합 반응이 바람직하다.

성분(A)의 경화성 오가노폴리실록산은 본 발명의 조성물의 주성분이고, 본 발명의 조성물이 하이드로실화 반응-경화성인 경우, 성분(A)는 분자당 평균 0.1개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산, 바람직하게는 분자당 평균 0.5개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산, 특히 바람직하게는 분자당 평균 0.8개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산이다. 분자당 규소-결합된 알케닐 그룹의 평균 갯수가 위에서 언급한 범위의 하한치보다 더 작은 경우, 수득된 조성물은 완전 경화되지 않는다. 규소-결합된 알케닐 그룹의 예는 비닐, 알릴, 부테닐, 펜테닐, 헥세닐이고, 이들 중에서 비닐이 바람직하다. 알케닐 그룹 이외의 오가노폴리실록산 내의 규소-결합된 그룹의 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실 및 기타 알킬 그룹; 사이클로펜틸, 사이클로헥실 및 기타 사이클로알킬 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴 및 기타 아릴 그룹; 벤질, 펜에틸 및 기타 아르알킬 그룹; 및 3,3,3-트리플루오로프로필, 3-클로로프로필 및 기타 할로겐화 알킬 그룹을 포함한다. 이들 그룹 중에서, 알킬 및 아릴이 바람직하고, 메틸 및 페닐이 특히 바람직하다.

오가노폴리실록산의 점도는 제한되지 않지만, 25°C에서의 점도는 바람직하게는 50 내지 100,000mPa·s, 특히 바람직하게는 100 내지 50,000mPa·s의 범위이어야 한다. 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 하한치보다 낮은 경우, 수득된 실리콘 고무의 물리적 특성이 현저하게 악화되는 경향이 있으며, 한편 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 상한치보다 높은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물의 취급성이 현저하게 악화되는 경향이 있다.

이러한 유형의 오가노폴리실록산의 분자 구조는 제한되지 않으며, 예를 들면, 직쇄형, 측쇄형, 부분적으로 측쇄를 갖는 직쇄형 또는 수지형(dendritic configuration)일 수 있고, 바람직하게는 직쇄형 또는 부분적으로 측쇄를 갖는 직쇄형이다. 또한, 오가노폴리실록산은 이러한 분자 구조를 갖는 단독 중합체, 이러한 분자 구조로 구성된 공중합체 또는 이들 중합체의 혼합물일 수 있다.

본 발명의 하이드로실화 반응-경화성 실리콘 조성물에 사용하는 데 적합한 오가노폴리실록산의 예는 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 메틸페닐비닐실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹에 의해 차단된 메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸(3,3,3-트리플루오로프로필)폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체 및 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>의 실록산 단위, 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(CH<sub>2</sub>=CH)SiO<sub>1/2</sub>의 실록산 단위, CH<sub>3</sub>SiO<sub>3/2</sub>의 실록산 단위 및 (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>2/2</sub>의 실록산 단위로 구성된 오가노실록산 공중합체를 포함한다.

당해 조성물이 축합 반응-경화성인 경우, 성분(A)은 한 개의 분자에 두 개 이상의 실란올 그룹 또는 규소-결합된 가수분해성 그룹을 갖는 오가노폴리실록산이다. 규소-결합된 가수분해성 그룹의 예는 메톡시, 에톡시, 프로폭시 및 기타 알콕시 그룹; 비닐옥시 및 기타 알켄옥시 그룹; 메톡시에톡시, 에톡시에톡시, 메톡시프로폭시 및 기타 알콕시알콕시 그룹; 아세톡시, 옥타노일옥시 및 기타 아실옥시 그룹; 디메틸케톡심, 메틸에틸케톡심 및 기타 케톡심 그룹; 이소프로페닐옥시, 1-에틸-2-메틸비닐옥시 및 기타 알케닐옥시 그룹; 디메틸아미노, 디에틸아미노, 부틸아미노 및 기타 아미노 그룹; 디메틸아민옥시, 디에틸아민옥시 및 기타 아민옥시 그룹; N-메틸아세트아미드, N-에틸아세트아미드 및 기타 아미드 그룹을 포함한다. 오가노폴리실록산에서 실란올 또는 규소-결합된 가수분해성 그룹 이외의 그룹은 메틸, 에틸, 프로필 및 기타 알킬 그룹; 사이클로펜틸, 사이클로헥실 및 기타 사이클로알킬 그룹; 비닐, 알릴 및 기타 알케닐 그룹; 페닐, 나프틸 및 기타 아릴 그룹; 및 2-페닐에틸 및 기타 아르알킬 그룹을 포함한다.

오가노폴리실록산의 점도는 제한되지 않지만, 25°C에서의 점도는 바람직하게는 20 내지 100,000mPa·s, 특히 바람직하게는 100 내지 100,000mPa·s의 범위이어야 한다. 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 하한치보다 낮은 경우, 수득된 실리콘 고무의 물리적 특성이 현저하게 악화되는 경향이 있으며, 한편 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 상한치보다 높은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물의 취급성이

현저하게 악화되는 경향이 있다.

오가노폴리실록산의 분자 구조는 제한되지 않으며, 예를 들면, 직쇄형, 측쇄형, 환형 또는 수지형일 수 있고, 특히 바람직하게는 직쇄형이다.

본 발명의 촉합 반응-경화성 조성물에 사용하는 데 적합한 오가노폴리실록산의 예는 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리메톡시실릴 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 메틸디메톡시실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리에톡시실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산 및 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리에톡시실릴에틸 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산을 포함한다.

본 발명의 조성물이 유리 라디칼 반응-경화성인 경우, 성분(A)의 경화성 오가노폴리실록산은 제한되지 않지만, 분자당 한 개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산을 사용하는 것이 바람직하다. 오가노폴리실록산 내의 규소원자-결합된 그룹의 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실 및 기타 알킬 그룹; 사이클로펜틸, 사이클로헥실 및 기타 사이클로알킬 그룹; 비닐, 알릴, 부테닐, 펜에틸, 헥세닐 및 기타 알케닐 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴 및 기타 아릴 그룹; 벤질, 펜에틸 및 기타 아르알킬 그룹; 및 3,3,3-트리플루오로프로필, 3-클로로프로필 및 기타 할로겐화 알킬 그룹을 포함한다. 이들 그룹 중에서, 알킬, 알케닐 및 아릴이 바람직하고, 메틸, 비닐 및 페닐이 특히 바람직하다.

오가노폴리실록산의 점도는 제한되지 않지만, 25°C에서의 점도는 바람직하게는 50 내지 100,000mPa·s, 특히 바람직하게는 100 내지 50,000mPa·s의 범위이어야 한다. 이는 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 하한치보다 낮은 경우, 수득된 실리콘 고무의 물리적 특성이 현저하게 악화되는 경향이 있으며, 한편 25°C에서의 점도가 위에서 언급한 범위의 상한치보다 높은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물의 취급성이 현저하게 악화되는 경향이 있다는 사실 때문이다.

이러한 유형의 오가노폴리실록산의 분자 구조는 제한되지 않으며, 예를 들면, 직쇄형, 측쇄형, 부분적으로 측쇄를 갖는 직쇄형 또는 수지형일 수 있고, 바람직하게는 직쇄형 또는 부분적으로 측쇄를 갖는 직쇄형일 수 있다. 또한, 오가노폴리실록산은 이러한 분자 구조를 갖는 단독 중합체, 이러한 분자 구조로 구성된 공중합체 또는 이들 중합체의 혼합물일 수 있다.

본 발명의 유리 라디칼 반응-경화성 조성물에 사용하는 데 적합한 오가노폴리실록산의 예는 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 메틸페닐비닐실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸(3,3,3-트리플루오로프로필)폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 실란올 그룹에 의해 차단된 메틸페닐실록산-메틸비닐실록산-디메틸실록산 공중합체 및 화학식  $(CH_3)_3SiO_{1/2}$ 의 실록산 단위, 화학식  $(CH_3)_2(CH_2=CH)SiO_{1/2}$ 의 실록산 단위,  $CH_3SiO_{3/2}$ 의 실록산 단위 및  $(CH_3)_2SiO_{2/2}$ 의 실록산 단위로 구성된 오가노실록산 공중합체를 포함한다.

본 발명의 조성물이 하이드로실화 반응-경화성인 경우, 성분(B)의 경화제는 백금 촉매 및, 분자당 평균 두 개 이상의 규소-결합된 수소원자를 갖는 오가노폴리실록산으로 이루어진다. 오가노폴리실록산 내에 함유된 규소-결합된 그룹의 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실 및 기타 알킬 그룹; 사이클로펜틸, 사이클로헥실 및 기타 사이클로알킬 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴 및 기타 아릴 그룹; 벤질, 펜에틸 및 기타 아르알킬 그룹; 및 3,3,3-트리플루오로프로필, 3-클로로프로필 및 기타 할로겐화 알킬 그룹을 포함한다. 이들 그룹 중에서, 알킬 및 아릴이 바람직하고, 메틸 및 페닐이 특히 바람직하다.

오가노폴리실록산의 점도는 제한되지 않지만, 25°C에서의 점도는 바람직하게는 1 내지 100,000mPa·s, 특히 바람직하게는 1 내지 50,000mPa·s의 범위이어야 한다.

이러한 유형의 오가노폴리실록산의 분자 구조는 제한되지 않으며, 예를 들면, 직쇄형, 측쇄형, 부분적으로 측쇄를 갖는 직쇄형 또는 수지형일 수 있다. 또한, 오가노폴리실록산은 이러한 분자 구조를 갖는 단독 중합체, 이러한 분자 구조로 구성된 공중합체 또는 이들 중합체의 혼합물일 수 있다.

이러한 오가노폴리실록산의 예는 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸하이드로겐실록시 그룹에 의해 차단된 디메틸폴리실록산, 분자 쇄의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹에 의해 차단된 메틸하이드로겐실록산-디메틸실록산 공중합체, 분자 쇄의 양쪽 말단이 디메틸하이드로겐실록시 그룹에 의해 차단된 메틸하이드로겐실록산-디메틸실록산 공중합체 및 화학식  $(CH_3)_3SiO_{1/2}$ 의 실록산 단위, 화학식  $(CH_3)_2HSiO_{1/2}$ 의 실록산 단위 및  $SiO_{4/2}$ 의 실록산 단위로 구성된 오가노실록산 공중합체를 포함한다.

당해 조성물에서, 오가노폴리실록산의 함량은 당해 성분 중의 규소-결합된 수소원자의 양이 성분(A) 중의 규소-결합된 알케닐 그룹 1mol당 0.1 내지 1.5mol의 범위이도록 해야 한다. 이는 당해 성분의 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물이 완전 경화되지 않고, 한편 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 경우, 수득된 실리콘 고무가 매우 경질이고 이의 표면에 용이하게 균열이 발생한다는 사실 때문이다.

백금 촉매는 당해 조성물의 경화를 촉진시키는 데 사용되는 촉매이다. 이의 예로서 염화백금산, 염화백금산의 알콜 용액, 백금과 올레핀의 착물, 백금과 알케닐실록산의 착물 및 백금과 카보닐의 착물이 제안된다.

당해 조성물에서, 백금 촉매의 함량은, 당해 성분에 함유된 백금 금속의 양이, 성분(A)을 기준으로 하여, 0.01 내지 1,000ppm, 바람직하게는 0.1 내지 500ppm의 범위이도록 해야 한다. 당해 성분의 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물이 완전 경화되지 않고, 한편 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 양을 가하는 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물의 경화 속도가 증가되지 않는다.

또한, 당해 조성물이 축합 반응-경화성인 경우, 성분(B)은 한 개의 분자 중에 세 개 이상의 규소-결합된 가수분해성 그룹을 갖는 실란, 이의 부분 가수분해 생성물 및, 경우에 따라, 축합 반응 촉매이다. 규소-결합된 가수분해성 그룹의 예는 메톡시, 에톡시, 프로폭시 및 기타 알콕시 그룹; 메톡시에톡시, 에톡시에톡시, 메톡시프로폭시 및 기타 알콕시알콕시 그룹; 아세톡시, 옥타노일옥시 및 기타 아실옥시 그룹; 디메틸케톡심, 메틸에틸케톡심 및 기타 케톡심 그룹; 이소프로페닐옥시, 1-에틸-2-메틸비닐옥시 및 기타 알케닐옥시 그룹; 디메틸아미노, 디에틸아미노, 부틸아미노 및 기타 아미노 그룹; 디메틸아민옥시, 디에틸아민옥시 및 기타 아민옥시 그룹; N-메틸아세트아미드 및 N-에틸아세트아미드를 포함한다. 또한, 실란에 탄화수소 그룹이 결합될 수 있다. 이러한 탄화수소 그룹의 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 펜틸, 헥실, 헵틸, 옥틸, 노닐, 데실, 옥타데실 및 기타 알킬 그룹; 사이클로펜틸, 사이클로헥실 및 기타 사이클로알킬 그룹; 비닐, 알릴 및 기타 알케닐 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴, 나프틸 및 기타 아릴 그룹; 벤질, 펜에틸, 페닐프로필 및 기타 아르알킬 그룹; 및 3-클로로프로필, 3,3,3-트리플루오로프로필 및 기타 할로겐화 알킬 그룹을 포함한다. 메틸트리에톡시실란, 비닐트리에톡시실란, 비닐트리아세트옥시실란 및 에틸 오르토실리케이트가 실란 또는 이의 부분 가수분해 생성물의 예로서 제안된다.

당해 조성물에서, 실란 또는 이의 부분 가수분해 생성물의 함량은 성분(A) 100중량부당 바람직하게는 0.01 내지 20중량부, 특히 바람직하게는 0.1 내지 10중량부의 범위이다. 실란 또는 이의 부분 가수분해 생성물의 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 수득된 조성물의 저장 안정성이 악화되고 접착성이 감소되는 경향이 있고, 한편 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 경우, 수득된 조성물의 경화 속도가 상당히 감소되는 경향이 있다.

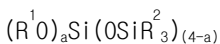
또한, 축합 반응 촉매는 임의의 성분이다. 따라서, 예를 들면, 아민옥시 그룹, 아미노 그룹, 케톡심 그룹 등을 갖는 실란이 경화제로서 사용되는 경우, 이것이 필수적이지는 않다. 이러한 축합 반응 촉매의 예는 테트라부틸 티타네이트, 테트라이소프로필 티타네이트 및 기타 티탄산 에스테르; 디이소프로폭시비스(아세틸아세테이트)티탄, 디이소프로폭시비스(에틸아세토아세테이트)티탄 및 기타 킬레이트화 유기 티탄 화합물; 알루미늄 트리(아세틸아세토네이트), 알루미늄 트리(에틸아세토아세테이트) 및 기타 유기 알루미늄 화합물; 지르코늄 테트라(아세틸아세토네이트), 지르코늄 테트라부틸레이트 및 기타 유기 지르코늄 화합물; 디부틸주석 디옥토에이트, 디부틸주석 디라우레이트, 디부틸주석-2-에틸헥소에이트 및 기타 유기 주석 화합물; 주석 나프테노에이트, 주석 올레에이트, 주석 부틸레이트, 코발크 나프테노에이트, 아연 스테아레이트 및 기타 유기 카복실산의 금속 염; 헥실아민, 도데실아민 포스페이트 및 기타 아민 화합물 및 이의 염; 벤질트리에틸암모늄 아세테이트 및 기타 4급 암모늄 염; 알칼리 금속의 저급 지방산 염, 예를 들면, 리튬 니트레이트 및 칼륨 아세테이트; 디메틸하이드록실아민, 디에틸하이드록실아민 및 기타 디알킬하이드록실아민; 및 구아니딜 그룹-함유 유기 규소 화합물 등을 포함한다.

축합 반응 촉매의 함량은 중요하지 않지만, 성분(A) 100중량부당 바람직하게는 0.01 내지 20중량부, 특히 바람직하게는 0.1 내지 10중량부의 범위이다. 이 촉매가 필요한 경우, 촉매 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 수득된 조성물은 종종 완전 경화되지 않고, 한편 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 경우, 수득된 조성물의 저장 안정성이 악화되는 경향이 있다.

또한, 당해 조성물이 유리 라디칼 반응-경화성인 경우, 성분(B)는 유기 과산화물이다. 이러한 유기 과산화물의 예는 벤조일 퍼옥사이드, 디쿠밀 퍼옥사이드, 2,5-디메틸비스(2,5-3급-부틸퍼옥시)헥산, 디-3급-부틸 퍼옥사이드 및 3급-부틸 퍼벤조에이트를 포함한다. 유기 과산화물이 첨가되는 양은 위에 기재된 성분(A)의 오가노폴리실록산 100중량부당 0.1 내지 5중량부의 범위이다.

성분(C)는 열경화성 충전제의 표면을 화학식 1 및 화학식 2로부터 선택된 화학식을 갖는 올리고실록산으로 처리하여 수득한 충전제이다.

화학식 1



화학식 2



상기 식에서,

R<sup>1</sup>은 알킬이고,

R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이고,

a는 1 내지 3의 정수이고,

b는 1 내지 3의 정수이고,

n은 0 이상의 정수이다.

성분(C)은 수득되는 실리콘 고무에 열전도성을 부여하기 위해 사용한다.

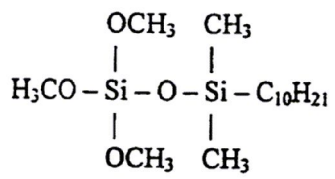
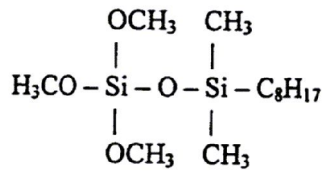
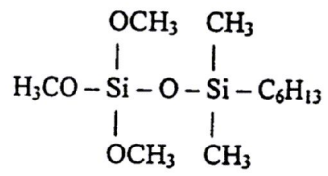
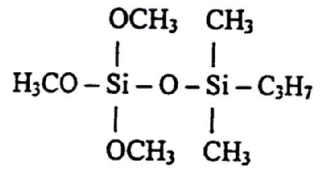
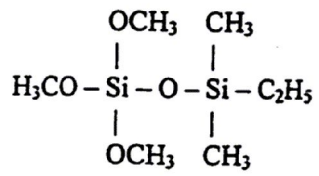
성분(C)의 열전도성 충전제는, 예를 들면, 알루미늄 분말, 구리 분말, 니켈 분말 및 기타 금속 분말; 알루미늄이나 분말, 산화마그네슘 분말, 산화베릴륨 분말, 산화크롬 분말, 산화티탄 분말 및 기타 금속 산화물 분말; 질화붕소 분말, 질화알루미늄 분말 및 기타 금속 질화물 분말; 탄화붕소 분말, 탄화티탄 분말, 탄화규소 분말 및 기타 금속 탄화물 분말이다. 특히, 수득된 실리콘 고무에 절연 특성이 요구되는 경우, 금속 산화물 분말, 금속 질화물 분말 또는 금속 탄화물 분말이 바람직하고, 알루미늄 분말이 특히 바람직하다. 위에 기재된 단일 유형의 분말 또는 둘 이상의 분말의 혼합물을 성분(C)의 열전도성 충전제로서 사용할 수 있다.

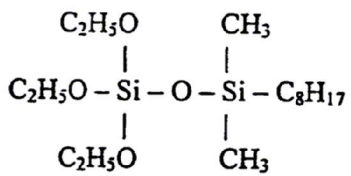
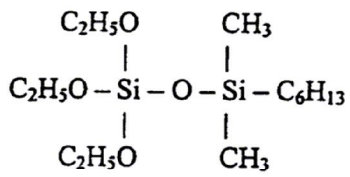
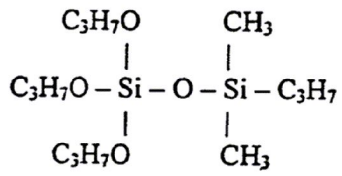
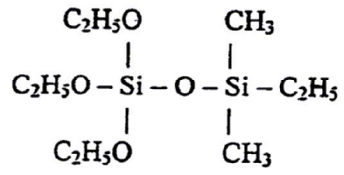
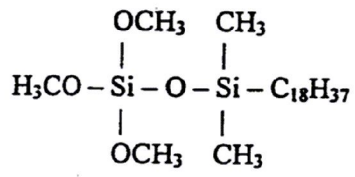
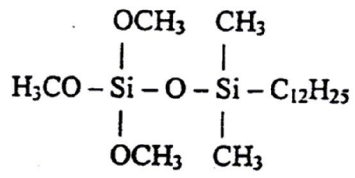
열전도성 충전제의 평균 입자 크기는 제한되지 않지만, 바람직하게는 0.1 내지 100 $\mu\text{m}$ 의 범위이다. 또한, 알루미늄 분말이 성분(C)의 열전도성 충전제로서 사용되는 경우, 알루미늄 분말은 바람직하게는 평균 입자 크기가 5 내지 50 $\mu\text{m}$ 인 제1 구형 알루미늄 분말과 평균 입자 크기가 0.1 내지 5 $\mu\text{m}$ 인 제2 구형 또는 비정형 알루미늄 분말과의 혼합물이고, 특히 제1 구형 알루미늄 분말 30 내지 90중량% 및 제2 구형 알루미늄 분말 10 내지 60중량%를 포함하는 혼합물이다.

열전도성 충전제의 함량은 제한되지 않지만, 우수한 열전도성을 갖는 실리콘 고무를 제조하기 위해서는, 열전도성 충전제의 함량은 성분(A) 100중량부당 바람직하게는 500 내지 2,500중량부, 더욱 바람직하게는 500 내지 2,000중량부, 특히 바람직하게는 800 내지 2,000중량부의 범위이다. 열전도성 충전제의 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 장기간 저장하는 동안 침강 및 분리가 일어나 수득된 실리콘 고무의 열전도성이 불충분해질 수 있고, 한편 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 경우, 수득된 실리콘 고무 중의 열전도성 충전제의 균일한 분산이 불가능해질 수 있다.

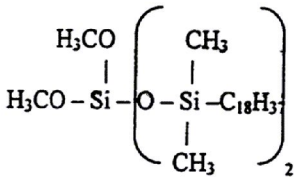
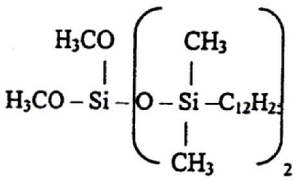
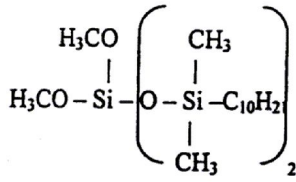
성분(C)의 올리고실록산에 대한 위의 화학식 1 및 2에서,  $R^1$ 은 알킬 그룹을 나타낸다. 알킬 그룹의 예는 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 헥실, 데실 또는 기타 직쇄 알킬; 이소프로필, 3급 부틸, 이소부틸 또는 기타 측쇄 알킬; 및 사이클로헥실 또는 기타 사이클릭 알킬을 포함한다.  $R^1$ 은 바람직하게는 탄소수 1 내지 4의 알킬이고, 더욱 바람직하게는 메틸 또는 에틸이다. 올리고실록산에 대한 화학식 1 및 2에서, 동일하거나 상이할 수 있는 각각의  $R^2$ 는 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이다.  $R^2$ 는, 예를 들면, 메틸, 에틸, 프로필, 부틸, 헥실, 데실, 운데실, 도데실, 트리데실, 테트라데실, 펜타데실, 헥사데실, 헵타데실, 옥타데실, 노나데실, 에이코실; 이소프로필, 3급 부틸, 이소부틸, 2-메틸운데실, 1-헥실헵틸 또는 기타 측쇄 알킬 그룹; 사이클로헥실, 사이클로도데실 또는 기타 사이클릭 알킬 그룹; 페닐, 톨릴, 크실릴 및 기타 아릴 그룹; 및 벤질, 펜에틸, 2-(2,4,6-트리메틸페닐)프로필 또는 기타 아르알킬 그룹이 이의 예로서 제안된다. 상기 그룹 중에서, 직쇄 알킬 그룹이 바람직하다. 또한, 올리고실록산에 대한 화학식 1 및 2에서, 아래첨자 a는 1 내지 3의 정수, 바람직하게는 3이다. 또한, 위의 화학식 1 및 2에서, 아래첨자 b는 1 내지 3의 정수, 바람직하게는 3이다. 또한, 위의 화학식 1 및 2에서, 아래첨자 n은 0 이상의 정수, 바람직하게는 0 내지 100의 정수, 더욱 바람직하게는 0 내지 50의 정수, 특히 바람직하게는 0 내지 10의 정수이다.

화학식 1의 올리고실록산의 예는 다음을 포함하지만, 이로 제한되는 것은 아니다:









화학식 2의 올리고실록산은 예를 들면 다음의 화합물이다:  $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{SiO}[(\text{CH}_3)_2\text{SiO}]_3\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ ,  $(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_3\text{SiO}[(\text{CH}_3)_2\text{SiO}]_3\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ ,  $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{CH}_3\text{SiO}[(\text{CH}_3)_2\text{SiO}]_3\text{Si}(\text{CH}_3)_3$  및  $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{SiO}[(\text{CH}_3)_2\text{SiO}]_{10}\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ .

화학식 1의 올리고실록산은, 예를 들면, 백금 촉매의 존재하에 화학식  $(\text{R}^1\text{O})_a\text{Si}(\text{OSiR}^2\text{H})_{(4-a)}$ 의 올리고실록산을 분자당 한 개의 지방족 이중결합을 갖는 탄화수소 화합물과 반응시켜 제조할 수 있다.

규소-결합된 수소원자를 갖는 올리고실록산의 예는 트리에톡시실록시디메틸실란, 트리에톡시실록시디메틸실란, 트리프로폭시실록시디메틸실란 및 기타 트리알콕시실록시디알킬실란 화합물; 비스(디메틸실록시)디에톡시실란, 비스(디메틸실록시)디에톡시실란, 비스(디메틸실록시)디프로폭시실란, 비스(디메틸실록시)디부톡시실란 및 기타 비스(디알킬실록시)디알콕시실란 화합물; 트리스(디메틸실록시)메톡시실란, 트리스(디메톡시실록시)메톡시실란, 트리스(디메틸실록시)프로폭시실란, 트리스(디메틸실록시)부톡시실란 및 기타 트리스(디알킬실록시)알콕시실란 화합물을 포함한다.

분자당 한 개의 지방족 이중결합을 갖는 탄화수소 화합물의 예는 에틸렌, 프로펜, 1-부텐, 2-부텐, 1-펜텐, 1-헥센, 2-헥센, 3-헥센, 1-헵텐, 1-옥텐, 1-노넨, 1-데센, 1-운데센, 1-도데센, 1-트리데센, 6-트리데센, 1-테트라데센, 1-펜타데센, 1-헥사데센, 1-헵타데센, 1-옥타데센, 1-노나데센, 1-에이코센 및 기타 직쇄 지방족 탄화수소 화합물; 2-메틸운데센 및 기타 측쇄 지방족 탄화수소 화합물; 사이클로데센 및 기타 환형 지방족 탄화수소 화합물; 2-(2,4,6-트리메틸페닐)프로펜 및 이중결합을 함유하는 기타 지방족 방향족 탄화수소 화합물을 포함한다.

백금 촉매의 예는 염화백금산, 염화백금산의 알콜 용액, 백금과 올레핀의 착물, 백금과 알케닐실록산의 착물 및 백금과 카보닐의 착물을 포함한다.

올리고실록산의 양은, 표면 처리 후에, 수득된 열전도성 실리콘 고무 조성물 중의 열전도성 충전제의 분산성을 향상시키는 한, 제한되지 않는다; 그러나, 열전도성 충전제 100중량부당 바람직하게는 0.1 내지 10중량부, 특히 바람직하게는 0.1 내지 5중량부의 범위이다. 이는 조성물이 다량의 열전도성 충전제를 함유하면, 올리고실록산의 함량이 위에서 언급한 범위의 하한치보다 적은 경우, 수득된 실리콘 고무 조성물의 성형성이 악화되고 열전도성 충전제가 저장하는 동안 수득된 실리콘 고무 조성물로부터 침강 및 분리되고, 한편 올리고실록산의 함량이 위에서 언급한 범위의 상한치보다 많은 경우, 수득된 실리콘 고무의 기계적 강도가 감소될 수 있다는 사실 때문이다.

열전도성 충전제의 표면을 올리고실록산으로 처리하는 방법은, 예를 들면, 열전도성 충전제와 올리고실록산을 혼합하여 열전도성 충전제의 표면을 미리 올리고실록산으로 처리하는 방법 및 성분(A)와 열전도성 충전제를 혼합한 후, 여기에 올리고실록산을 가하여 성분(A) 중의 열전도성 충전제의 표면을 처리하는 방법을 포함한다.

추가로, 본 발명의 목적을 손상시키지 않는 한, 조성물은 추가의 성분, 예를 들면, 열분해 실리카, 침강 실리카, 열분해 산화티탄 및 기타 충전제, 유기 규소 화합물로 처리함으로써 상기 충전제의 표면을 소수성화하여 수득한 충전제; 아세틸렌 화합물; 하이드라진 화합물, 포스핀 화합물, 머캅탄 화합물 및 기타 부가반응 억제제; 및 추가로 안료, 염료, 형광성 염색 재료, 내열성 첨가제, 트리야졸 화합물 이외의 난연제, 가소제 및 증점제를 함유할 수 있다.

당해 조성물을 경화시키는 데 사용하는 방법은 제한되지 않는다. 예를 들면, 당해 조성물을 성형한 후, 실온에서 정치시키는 방법, 또는 당해 조성물을 성형한 후, 50 내지 200°C로 가열하는 방법을 사용할 수 있다.

또한, 수득된 실리콘 고무의 특성은 제한되지 않지만, 고 경도 고무 내지 저 경도 고무, 즉 고풍 고무가 예로서 제안된다. 수득된 실리콘 고무는 방열 재료로서 부품에 단단하게 부착되게 할 수 있고 우수한

취급성을 갖기 때문에, JIS K 6253에 정의된 바와 같은 E형 듀로미터(durometer) 경도는 바람직하게는 5 내지 90의 범위이어야 한다.

본 발명의 열전도성 실리콘 고무 조성물은 열전도성이 높은 실리콘 고무를 수득하기 위해 첨가되는 다량의 열전도성 충전제를 함유할지라도, 우수한 취급성 및 성형성을 가짐을 특징으로 한다.

#### 실시에

이후에 본 발명의 열전도성 실리콘 고무 조성물을 적용 실시예를 언급하여 상세하게 설명할 것이다. 또한, 적용 실시예에 나타난 특성은 25℃에서 측정된 값으로 나타낸다. 또한, 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 아래의 방법으로 측정한다.

#### 열전도성 실리콘 고무 조성물의 조도(consistency)

50ml 용적의 유리 비이커에 열전도성 실리콘 고무 조성물을 채우고 조성물의 1/4-스케일 원추형 조도(cone consistency)를 JIS K 2220에 상세히 설명된 방법에 따라 측정한다. 높은 조도 값은 열전도성 실리콘 고무 조성물의 가소성이 크고 취급성이 우수하다는 것을 의미함을 주목해야 한다.

#### 열전도성 실리콘 고무 조성물의 성형성

하이드로실화 반응-경화형 열전도성 실리콘 고무 조성물로 이루어진 1mm 층을 PET(폴리에틸렌 테레프탈레이트)로 제조된 50 $\mu$ m 필름들 사이에 끼우고 100℃에서 30분 동안 가열하여 경화시킨다. 이어서, PET 필름을 박리시키고 형성된 실리콘 고무 시트를 조사한다. 시트가 문제 없이 형성될 수 있는 경우를 O(성형성이 우수함)로서 평가하고, 시트가 부분적 점착 실패에도 불구하고 형성될 수 있는 경우를  $\Delta$ (성형성이 다소 부족함)로서 평가하고, 시트가 형성될 수 없는 경우를 X(성형성이 불만족스러움)로서 평가한다.

추가로, 축합반응-경화형 열전도성 실리콘 고무 조성물을 50 $\mu$ m PET 필름 위에 스프레딩하여 두께 1mm의 층을 제조하고 실온에서 1주일 동안 정치시킨 후, PET 필름을 박리시키고 형성된 실리콘 고무 시트를 위에 기재된 바와 동일한 방식으로 검사 및 평가한다.

#### 실리콘 고무의 열전도성

실리콘 고무의 열전도성을 퀵 써멀 컨덕티비티 미터(Quick Thermal Conductivity Meter), 모델 QTM-500[교토 일렉트로닉스 매뉴팩처링 캄파니, 리미티드(Kyoto Electronics Manufacturing Co., Ltd.)에서 시판]을 사용하여 JIS R 2616에 상세하게 기재된 열선 방법(hot-wire method)에 따라 측정한다.

#### 실리콘 고무의 경도

실리콘 고무의 경도를 JIS K 6253에 상세히 설명된 바와 같이 E형 듀로미터를 사용하여 측정한다.

#### 실시에 1

평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 화학식  $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{SiOSi}(\text{CH}_3)_2\text{C}_{12}\text{H}_{25}$ 의 올리고실록산 5중량부를 V-블렌더에 넣고 질소 기체 대기하에 160℃에서 2시간 동안 교반하여 표면 처리된 알루미늄 분말을 제조한다. 이어서, 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조하기 위해, 모든 알루미늄 분말을, 분자쇄의 말단이 디메틸비닐실록시 그룹과 트리메틸실록시 그룹으로 차단되어 있는, 분자당 평균 한 개의 규소-결합된 비닐 그룹(비닐 그룹의 함량=0.11중량%)을 갖는 점도 930mPa·s의 디메틸폴리실록산 98중량부, 분자쇄의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹으로 차단되어 있는 점도 4mPa·s의 메틸하이드로겐실록산과 디메틸실록산과의 공중합체 0.54중량부 및 백금 함량이 0.5중량%인 백금과 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산과의 착물 0.2중량부와 균일하게 혼합한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

#### 비교 실시예 1

실시에 1에서 사용한 표면 처리 알루미늄 분말 대신에, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 메틸트리메톡시실란 10중량부를 V-블렌더에 넣고 질소 기체 대기하에 160℃에서 2시간 동안 교반하여 표면 처리된 알루미늄 분말을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

#### 비교 실시예 2

비교 실시예 1에서 사용한 표면 처리 알루미늄 분말 대신에, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 350중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 400중량부 및 메틸트리메톡시실란 5량부를 V-블렌더에 넣고 질소 기체 대기하에 160℃에서 2시간 동안 교반하여 표면 처리된 알루미늄 분말을 사용하는 것을 제외하고는 비교 실시예 1과 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

#### 비교 실시예 3

실시에 1에서 사용한 표면 처리 알루미늄 분말 대신에, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 화학식  $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{SiO}[(\text{CH}_3)_2\text{SiO}]_3\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 의 올리고실록산 5량부를 V-블렌더에 넣고 질소 기체 대기하에 160℃에서 2시간 동안 교반하여 표면 처리된 알루미늄 분말을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

비교 실시예 4

실시예 1에서 사용한 표면 처리 알루미늄 분말 대신에, 분자 쉐의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹으로 차단되어 있는 점도 4mPa·s의 메틸하이드로겐실록산-디메틸실록산의 공중합체 0.49중량부를 사용하고, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부와 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부와 혼합물을 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

실시예 2

분자 쉐의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹으로 차단(비닐 그룹 함량=0.48중량%)되어 있는 점도 360mPa·s의 디메틸폴리실록산 95중량부, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO[(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>SiO]<sub>3</sub>Si(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>의 올리고실록산 10중량부를 혼합하여 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한 후, 이를 분자 쉐의 양쪽 말단이 디메틸하이드로겐실록시 그룹으로 차단(규소-결합된 수소원자의 함량=0.13중량%)되어 있는 점도 16mPa·s의 디메틸폴리실록산 0.87중량부, 분자 쉐의 양쪽 말단이 트리메틸실록시 그룹으로 차단(규소-결합된 수소원자의 함량=0.78중량%)되어 있는 점도 4mPa·s의 메틸하이드로겐실록산-디메틸실록산 공중합체 0.87중량부 및 백금 함량이 0.5중량%인 백금과 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산과의 착물 0.2중량부와 균일하게 혼합한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

비교 실시예 5

실시예 2에서 사용한 올리고실록산 대신에, 분자 쉐의 양쪽 말단이 디메틸비닐실록시 그룹으로 차단되어 있는 점도 360mPa·s의 디메틸폴리실록산 90중량부를 사용하고, 3-글리시드옥시프로필트리메톡시실란 5중량부를 가하는 것을 제외하고는 실시예 2와 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

실시예 3

화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>2/2</sub>의 실록산 단위 93.50mol%, 화학식 CH<sub>3</sub>SiO<sub>3/2</sub>의 실록산 단위 3.30mol%, 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>의 실록산 단위 2.60mol% 및 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(CH<sub>2</sub>=C H)SiO<sub>1/2</sub>의 실록산 단위(비닐 그룹 함량=0.22중량%) 0.60mol%로 이루어진 점도 800mPa·s의 오가노폴리실록산 94중량부, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO[(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>SiO]<sub>3</sub>Si(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>의 올리고실록산 5중량부를 혼합하여 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한 후, 이를 분자 쉐의 양쪽 말단이 메틸하이드로겐실록시 그룹으로 차단(규소-결합된 수소원자의 함량=0.13중량%)되어 있는 점도 16mPa·s의 디메틸폴리실록산 6.03중량부 및 백금 함량이 0.5중량%인 백금과 1,3-디비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산과의 착물 0.2중량부와 균일하게 혼합한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

실시예 4

분자 쉐의 양쪽 말단이 트리메톡시실록시 그룹으로 차단되어 있는 점도 700mPa·s의 디메틸폴리실록산 94중량부, 평균 입자 크기 10 $\mu$ m의 완전 구형 알루미늄 분말 450중량부, 평균 입자 크기 2.2 $\mu$ m의 부정형 알루미늄 분말 450중량부 및 화학식 (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiOSi(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>C<sub>12</sub>H<sub>25</sub>의 올리고실록산 5중량부를 혼합한 후, 이를 메틸트리메톡시실란 3중량부 및 테트라(n-부틸)티타네이트 3중량부와 균일하게 혼합하여 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

비교 실시예 6

실시예 4에서 사용한 올리고실록산 대신에, 3-글리시드옥시프로필트리메톡시실란 3중량부를 가하는 것을 제외하고는 실시예 4와 동일한 방법으로 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제조한다. 열전도성 실리콘 고무 조성물의 특성은 표 1에 기재되어 있다.

[표 1]

	실시예									
파라미터	적용실시예1	적용실시예2	적용실시예3	적용실시예4	비교실시예1	비교실시예2	비교실시예3	비교실시예4	비교실시예5	비교실시예6
조도(mm/10)	80	90	85	77	40	85	25	20	18	28
성형성	○	○	○~△	○	x~△	○	x	x	x	x~△
열전도성 계수(W/m·k)	5.2	4.8	4.5	4.5	3.8	1.8	-	-	-	4.5
경도	37	55	45	52	58	50	-	-	-	30

발명의 효과

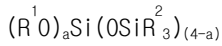
본 발명은 열전도성이 높은 실리콘 고무를 수득하기 위해 첨가되는 다량의 열전도성 충전제를 함유할지라도, 우수한 취급성 및 성형성을 갖는 열전도성 실리콘 고무 조성물을 제공한다.

**(57) 청구의 범위**

**청구항 1**

(A) 경화성 오가노폴리실록산, (B) 경화제 및 (C) 열경화성 충전제의 표면을 화학식 1 및 화학식 2로부터 선택된 화학식을 갖는 올리고실록산으로 처리하여 수득한 충전제를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물.

화학식 1



화학식 2



상기 식에서,

R<sup>1</sup>은 알킬이고,

R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 불포화 지방족을 포함하지 않는 1가 탄화수소 그룹이고,

a는 1 내지 3의 정수이고,

b는 1 내지 3의 정수이고,

n은 0 이상의 정수이다.

**청구항 2**

제1항에 있어서, 하이드로실화 반응, 축합 반응 및 유리 라디칼 반응으로부터 선택된 반응에 의해 경화되는 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 3**

제2항에 있어서, 성분(A)가 분자당 평균 0.1개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산이고, 성분(B)가 백금 촉매 및 분자당 평균 두 개 이상의 규소-결합된 수소원자를 갖는 오가노폴리실록산을 포함하는 하이드로실화 반응-경화성 조성물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 4**

제2항에 있어서, 성분(A)가 분자당 두 개 이상의 실란올 그룹 또는 규소-결합된 가수분해성 그룹을 갖는 오가노폴리실록산이고, 성분(B)가 분자당 세 개 이상의 규소-결합된 가수분해성 그룹을 갖는 실란 또는 이의 부분 가수분해 생성물 및, 임의로, 축합 반응 촉매인 축합 반응-경화성 조성물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 5**

제2항에 있어서, 성분(A)가 분자당 한 개 이상의 규소-결합된 알케닐 그룹을 갖는 오가노폴리실록산이고, 성분(B)가 유기 과산화물인 유리 라디칼 반응-경화성 조성물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 6**

제1항에 있어서, 열전도성 충전제가 알루미늄 분말인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 7**

제6항에 있어서, 알루미늄 분말이 평균 입자 크기가 5 내지 50 $\mu$ m인 제1 구형 알루미늄 분말 및 평균 입자 크기가 0.1 내지 5 $\mu$ m인 제2 구형 또는 비정형 알루미늄 분말을 포함하는 혼합물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 8**

제7항에 있어서, 혼합물이 제1 알루미늄 분말 30 내지 90중량% 및 제2 알루미늄 분말 10 내지 60중량%를 포함하는 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 9**

제1항에 있어서, 열전도성 충전제의 평균 입자 크기가 0.1 내지 100 $\mu$ m인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 10**

제1항에 있어서, 열전도성 충전제의 농도가 성분(A) 100중량부당 500 내지 2,500중량부인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 11**

제1항에 있어서, 올리고실록산이 화학식  $(R^1O)_aSi(OSiR^2_3)_{(4-a)}$ 의 화합물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 12**

제11항에 있어서,  $R^1$ 이  $C_1$  내지  $C_4$  알킬이고  $R^2$ 가 직쇄 알킬 그룹인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 13**

제11항에 있어서, a가 3인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 14**

제1항에 있어서, 올리고실록산이 화학식  $(R^1O)_aR^2_{(3-a)}SiO[R^2_2SiO]_nSi(OSiR^2_3)_bR^2_{(3-b)}$ 의 화합물인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 15**

제14항에 있어서,  $R^1$ 이  $C_1$  내지  $C_4$  알킬이고  $R^2$ 가 직쇄 알킬 그룹인 열전도성 실리콘 고무 조성물.

**청구항 16**

제13항에 있어서, a가 3이고 b가 3이고 n인 0 내지 100의 정수인 열전도성 실리콘 고무 조성물.