



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 201811977 A

(43) 公開日：中華民國 107 (2018) 年 04 月 01 日

(21) 申請案號：105130666

(22) 申請日：中華民國 105 (2016) 年 09 月 22 日

(51) Int. Cl. :

*C09K5/14 (2006.01)**C08L101/00 (2006.01)**C08K9/00 (2006.01)**C08K5/00 (2006.01)**C08J3/20 (2006.01)*

(71) 申請人：國立交通大學 (中華民國) NATIONAL CHIAO TUNG UNIVERSITY (TW)

新竹市大學路 1001 號

(72) 發明人：林宏洲 LIN, HONG-CHEU (TW)；楊博仁 YANG, PO-JEN (TW)；魏崇倫 WEI, CHONG-LUN (TW)；林千閔 LIN, CHIEN-MIN (TW)

(74) 代理人：蔡朝安

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：11 項 圖式數：2 共 12 頁

(54) 名稱

具有導熱性之高分子複合物及其製備方法

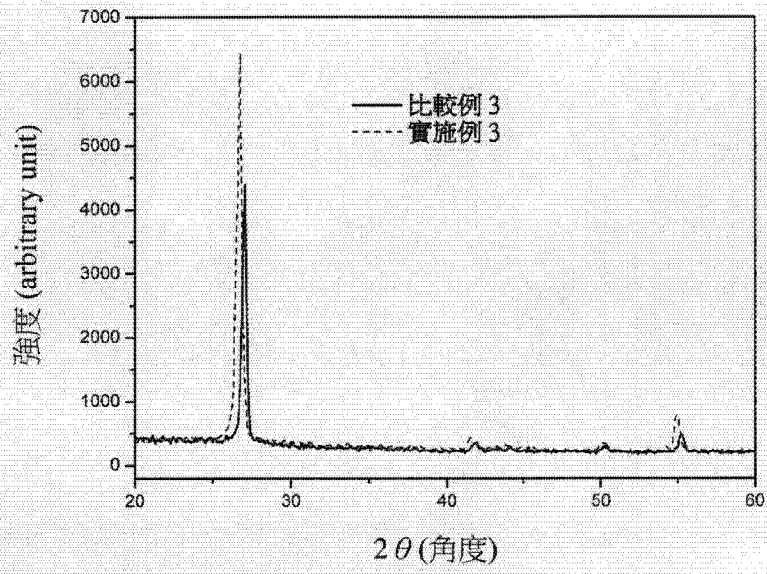
POLYMERIC COMPOSITES HAVING THERMAL CONDUCTIVITY AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

(57) 摘要

本發明提供一種具有導熱性之高分子複合物，其包含：高分子樹脂材料，重量百分比為 15~95 wt%；經表面改質之導熱填充體，重量百分比為 4.5~80 wt%；重整促進劑，重量百分比為 0.5~10 wt%；以及表面修飾劑，重量百分比為 0~5 wt%；其中，高分子複合物之導熱係數為 0.8~1.5 W/mK。本發明亦提供一種具有導熱性之高分子複合物的製備方法。

The present invention provides a polymeric composite having thermal conductivity, comprising: 15-95 wt% of polymer resin; 4.5-80 wt% of fillers with surface modification; 0.5-10 wt% of reorganization-induced additives; and 0-5 wt% of surface modifier. Wherein thermal conductivity of polymeric composite is 0.8-1.5 W/mK. The present invention also provides a manufacturing method of the polymeric composite.

指定代表圖：



【圖1】



申請日: 2018.09.28

201811977

【發明摘要】

IPC分類: C09K5/14(2006.01)
C08L101/00(2006.01)
C08K9/00(2006.01)
C08K5/00(2006.01)
C08J3/20(2006.01)

【中文發明名稱】具有導熱性之高分子複合物及其製備方法

【英文發明名稱】POLYMERIC COMPOSITES HAVING THERMAL

CONDUCTIVITY AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

【中文】

本發明提供一種具有導熱性之高分子複合物，其包含：高分子樹脂材料，重量百分比為15~95 wt%；經表面改質之導熱填充體，重量百分比為4.5~80 wt%；重整促進劑，重量百分比為0.5~10 wt%；以及表面修飾劑，重量百分比為0~5 wt%；其中，高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5 W/mK。本發明亦提供一種具有導熱性之高分子複合物的製備方法。

【英文】

The present invention provides a polymeric composite having thermal conductivity, comprising: 15-95 wt% of polymer resin; 4.5-80 wt% of fillers with surface modification; 0.5-10 wt% of reorganization-induced additives; and 0-5 wt% of surface modifier. Wherein thermal conductivity of polymeric composite is 0.8-1.5 W/mK. The present invention also provides a manufacturing method of the polymeric composite.

【指定代表圖】 圖1

【發明說明書】

【中文發明名稱】具有導熱性之高分子複合物及其製備方法

【英文發明名稱】POLYMERIC COMPOSITES HAVING THERMAL

CONDUCTIVITY AND MANUFACTURING METHOD THEREOF

【技術領域】

【0001】本發明是有關一種具有導熱性之高分子複合物及其製備方法，特別是有關於一種包含重整促進劑之高分子複合物及其製備方法。

【先前技術】

【0002】高分子複合材料常廣泛地應用於各種不同領域的工業中，而隨著科技的演進，需要使用具有良好導熱特性的高分子複合材料以有利於應用在發熱密度高的產品中。傳統的作法是高分子複合材料中添加導熱填充體，透過將不同粒徑大小及粉體形狀的填充體相互混合，並利用表面改質來達到均勻分散之目的。

【0003】然而，上述方法需要添加高含量的導熱填充體才会有較好的導熱效果，而高含量的導熱填充體卻會產生產物黏度變高、流動性降低、後續加工不易、填充體分散不均、高分子固化成形困難、固化後機械性質不佳等問題。

【發明內容】

【0004】本發明之一目的在於提供一種具有導熱性之高分子複合物，其包含：高分子樹脂材料，重量百分比為15~95 wt%；經表面改質之導熱填充體，重量百分比為4.5~80 wt%；重整促進劑，重量百分比為0.5~10 wt%；以及表面修飾劑，重量百分比為0~5 wt%；其中，高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5 W/mK。

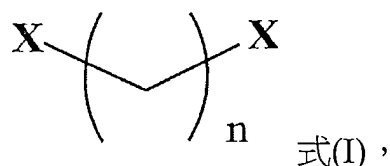
【0005】較佳地，高分子樹脂材料可包含：矽膠樹脂、環氧樹脂、丙烯酸樹脂、尼龍樹脂、聚乙烯醇樹脂、聚酯樹脂、聚氨樹脂、多元醇樹脂、聚乙烯樹脂、聚丙烯樹脂、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚醯亞胺樹脂或其組合。

【0006】較佳地，導熱填充體包含氮化物、金屬氧化物、碳化物、金屬、非金屬或其組合。

【0007】較佳地，導熱填充體的粒徑為0.01 μm ~1000 μm 。

【0008】較佳地，導熱填充體是以羥基(-OH)、羧酸基(-COOH)、磷酸基(-PO₃H)或胺基(-NH₂)進行表面官能基改質。

【0009】較佳地，重整促進劑之化學式如以下式(I)所示：



其中，X=I、Br、Cl、F、SH、CN、CO₂CH₃、CO₂C₂H₅、COOH、PO₃H、OH或NH₂，且n=2~20。

【0010】較佳地，表面修飾劑包含矽烷偶合劑。

【0011】本發明之另一目的在於提供一種具有導熱性之高分子複合物的製備方法，包含下列步驟：將高分子樹脂材料(重量百分比為15~95 wt%)、經表面改質之導熱填充體(重量百分比為4.5~80 wt%)、重整促進劑(重量百分比為

0.5~10 wt%)、及表面修飾劑(重量百分比為0~5 wt%)進行混合和脫泡以形成該具有導熱性之高分子複合物，其中高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5W/mK。

【0012】 以下藉由具體實施例配合所附的圖式詳加說明，當更容易瞭解本發明之目的、技術內容、特點及其所達成之功效。

【圖式簡單說明】

【0013】

圖1為比較例3及本發明實施例3的X光繞射示意圖。

圖2為比較例及本發明實施例之電子顯微鏡示意圖。

【實施方式】

【0014】 本發明將藉由下述之較佳實施例及其配合之圖式，作進一步之詳細說明。需注意的是，以下各實施例所揭示者，係為便於解釋本案技術特徵，並非用以限制其可實施之態樣。

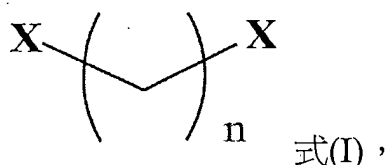
【0015】 本發明所提供之高分子複合物具有良好的導熱性，其中包含重整促進劑以提升材料界面之間的相容性、堆疊緊密和形成連續的導熱網鏈，藉此達到改善導熱性的目的，因此無需添加過多的導熱填充體，且可保持高分子材料原有的加工性和機械性質。

【0016】 根據一實施例，本發明所提供之高分子複合物包含：高分子樹脂材料，重量百分比為15~95 wt%；經表面改質之導熱填充體，重量百分比為4.5~80 wt%；重整促進劑，重量百分比為0.5~10 wt%；以及表面修飾劑，重量百分比為0~5 wt%，其中，高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5 W/mK。

【0017】其中，高分子樹脂材料可包含：矽膠樹脂、環氧樹脂、丙烯酸樹脂、尼龍樹脂、聚乙烯醇樹脂、聚酯樹脂、聚氨樹脂、多元醇樹脂、聚乙烯樹脂、聚丙烯樹脂、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯(ABS)樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚醯亞胺樹脂或其組合。

【0018】導熱填充體可包含氮化物(例如氮化硼、氮化鋁或氮化矽)、金屬氧化物(例如氧化鋁、氧化鎂、氧化鋁、氧化鐵、氧化鋯或氧化鈦)、碳化物(例如碳化矽、碳化鎢、碳化硼或碳鋼)、金屬(例如金、銀、銅、鈦、鋁、鎂、鎳、鋳或不鏽鋼)、非金屬(例如石墨、石墨烯、賽龍(sialon)、玻璃或石灰)或其組合。其中，導熱填充體的粒徑可為0.01 μm ~1000 μm ，較佳為1 μm ~200 μm 。

【0019】在本發明之一實施例中，導熱填充體的表面改質是先使表面官能化填充粉體，使其表面聚有特定的官能基，藉由將導熱填充體的表面改質，可改善導熱填充體與高分子材料之間的相容性和分散性，抑制導熱填充體聚集。而重整促進劑之化學式如以下式(I)所示：



其中，X=I、Br、Cl、F、SH、CN、CO₂CH₃、CO₂C₂H₅、COOH、PO₃H、OH或NH₂，且n=2~20。在本發明之一較佳實施例中，X可為I，而n=4。此外，表面修飾劑可包含矽烷偶合劑。

【0020】根據本發明另一實施例，提供一種具有導熱性之高分子複合物的製備方法，包含下列步驟：將高分子樹脂材料(重量百分比為15~95 wt%)、經表面改質之導熱填充體(重量百分比為4.5~80 wt%)、重整促進劑(重量百分比為0.5~10 wt%)、及表面修飾劑(重量百分比為0~5 wt%)進行混合和脫泡以形成該具有導熱性之高分子複合物。其中，經表面改質之導熱填充體是先使表面官能化填

充粉體，使其表面聚有特定的官能基。在一實施例中，導熱填充體可以羥基(-OH)、羧酸基(-COOH)、磷酸基(-PO₃H)或胺基(-NH₂)進行表面官能基改質，接著，再將上述粉體分散在50%的乙醇中，隨後在超音波震盪下持續12小時，過濾並真空乾燥後備用。將上述表面官能化後的具有不同粒徑之填充粉體、高分子樹脂、重整促進劑、表面修飾劑依照上述重量百分比均勻混合，並利用行星式公自轉攪拌機進行混合和脫泡，可獲得一穩定的分散膠體，將此高分子複合材料倒入模具中固化成型後，可獲得本發明之具有導熱性之高分子複合物。

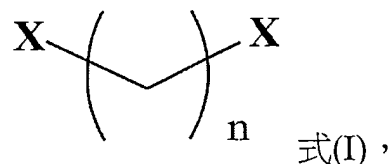
【0021】接著，將比較本發明所揭露之高分子複合物與藉由傳統作法所製得之高分子複合物的導熱性。各高分子複合物之組成如以下表一所示：

表一

	比較例1	比較例2	實施例1	實施例2	比較例3	實施例3
	組成(重量百分比, wt%)					
高分子樹脂材料 (有機矽樹脂)	50	25	25	25	25	25
高分子樹脂材料 (有機矽樹脂)	50	25	25	25	25	25
經表面改質之導熱 填充體 (粒徑3 μm)		25	25	25	25 ^a	25 ^a
經表面改質之導熱 填充體 (粒徑10 μm)		25	25	25	25 ^a	25 ^a
重整促進劑			0.4	0.7		0.5

導熱係數	0.18	0.81	0.84	0.86	0.96	1.14
------	------	------	------	------	------	------

【0022】 a:表面改質之導熱填充體的表面修飾有乙烯矽烷偶合劑於此，是使用不同粒徑的導熱填充體(3 μm 及10 μm)進行混摻，以使用有機樹脂材料與導熱填充體達到最佳填充效果，且導熱填充體是以OH官能基進行表面改質，以改善導熱填充體與高分子樹脂之間的相容性及分散性。另外一方面，在本實施例中是使用1,8-二碘辛烷(1,8-diiodooctane)作為重整促進劑，乙烯矽烷偶合劑作為表面修飾劑。然本發明並不以此為限制，導熱填充體可以羧酸基(-COOH)、磷酸基(-PO₃H)或胺基(-NH₂)進行表面官能基改質，而重整促進劑可如以下式(I)所示：



其中，X=I、Br、Cl、F、SH、CN、CO₂CH₃、CO₂C₂H₅、COOH、PO₃H、OH或NH₂，且n=2~20。

【0023】 由上表可了解，有機樹脂材料的導熱性質差，其導熱係數為0.18(比較例1)，而在添加經表面改質之導熱填充體後(比較例2)，其導熱係數提升為0.81，顯見添加導熱填充體確實可提升高分子材料的導熱性。而在實施例1及實施例2中，分別添加了少量(0.4及0.7 phr)的重整促進劑，隨著重整促進劑的增加，導熱係數有明顯的提升。而在比較例3中可了解，表面修飾劑的添加可透過化學鍵來改善導熱填充物與高分子樹脂之間的界面親和力，因而提升導熱性(導熱係數=0.96 W/mK)；而在實施例3中可發現，相較於比較例3，重整促進劑的添加可更佳提升導熱性(導熱係數=1.14 W/mK)。

【0024】 重整促進劑改善高分子複合物的導熱性是在於重整促進劑與導熱填充體的接觸增加，可促使導熱填充體彼此靠得更加緊密因而形成連續的導熱網鏈。請參閱圖1及圖2，在圖1中，有添加重整促進劑的實施例3可使無機材料

重新排列而增加分子排列的規律性(使XRD的強度增加)、並且增加分子結晶尺度的趨勢(XRD peak 2θ 角度變小),因而可改善導熱高分子複合材料的導熱方向性。而圖2為上述比較例及本發明實施例之電子顯微鏡示意圖,其中(a)為比較例2、(b)為實施例1、(c)為實施例2、(d)為比較例3、而(e)實施例3。由圖2可了解,有添加重整促進劑的組別(實施例1、實施例2、及實施例3)可促進無機材料結晶聚集,藉此可提升高分子複合材料的導熱率,因此可避免導熱不均一性的現象,而未添加重整促進劑的組別(比較例2及比較例3)則無結晶聚集的現象。

【0025】綜上所述,本發明之一種具有導熱性之高分子複合物及其製備方法,所提供的高分子複合物具有良好的導熱性,其中所包含的重整促進劑與導熱填充體的接觸點多,可促使導熱填充體彼此靠的更加緊密,因此可不需添加過量的導熱填充體即可有效地提升高分子複合物的導熱方向性,不僅改善黏度增加造成加工不易的問題,更不會影響高分子固化成型及機械性質等問題,大幅改善傳統方法的缺失。

【0026】以上所述之實施例僅是為說明本發明之技術思想及特點,其目的在使熟習此項技藝之人士能夠瞭解本發明之內容並據以實施,當不能以之限定本發明之專利範圍,即大凡依本發明所揭示之精神所作之均等變化或修飾,仍應涵蓋在本發明之專利範圍內。

【發明申請專利範圍】

【第1項】 一種具有導熱性之高分子複合物，其包含：

- 一高分子樹脂材料，重量百分比為15~95 wt%；
- 一經表面改質之導熱填充體，重量百分比為4.5~80 wt%；
- 一重整促進劑，重量百分比為0.5~10 wt%；以及
- 一表面修飾劑，重量百分比為0~5 wt%，

其中，該高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5 W/mK。

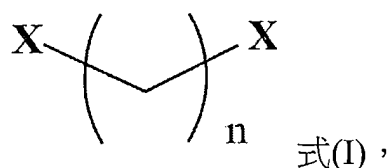
【第2項】 如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該高分子樹脂材料包含：矽膠樹脂、環氧樹脂、丙烯酸樹脂、尼龍樹脂、聚乙烯醇樹脂、聚酯樹脂、聚氨樹脂、多元醇樹脂、聚乙烯樹脂、聚丙烯樹脂、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚醯亞胺樹脂或其組合。

【第3項】 如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該導熱填充體包含氮化物、金屬氧化物、碳化物、金屬、非金屬或其組合。

【第4項】 如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該導熱填充體的粒徑為0.01 μm ~1000 μm 。

【第5項】 如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該導熱填充體是以羥基(-OH)、羧酸基(-COOH)、磷酸基(-PO₃H)或胺基(-NH₂)進行表面官能基改質。

【第6項】 如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該重整促進劑之化學式如以下式(I)所示：



其中，X=I、Br、Cl、F、SH、CN、CO₂CH₃、CO₂C₂H₅、COOH、PO₃H、OH或NH₂，且n=2~20。

【第7項】如申請專利範圍第1項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該表面修飾劑包含矽烷偶合劑。

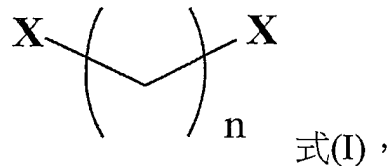
【第8項】一種具有導熱性之高分子複合物的製備方法，包含下列步驟：

將一高分子樹脂材料(重量百分比為15~95 wt%)、一經表面改質之導熱填充體(重量百分比為4.5~80 wt%)、一重整促進劑(重量百分比為0.5~10 wt%)、及一表面修飾劑(重量百分比為0~5 wt%)進行混合和脫泡以形成該具有導熱性之高分子複合物，其中該高分子複合物之導熱係數為0.8~1.5W/mK。

【第9項】如申請專利範圍第8項所述之具有導熱性之高分子複合物，其中該導熱填充體的粒徑為0.01 μm~1000 μm。

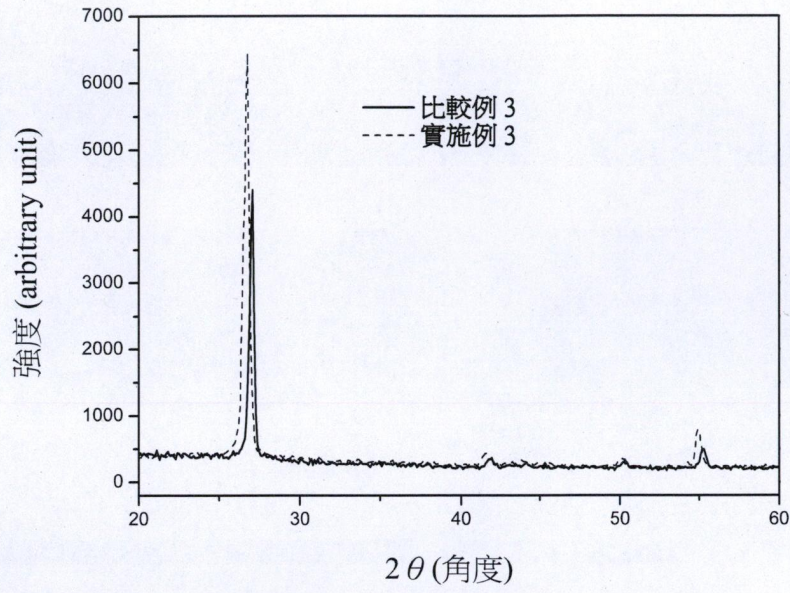
【第10項】如申請專利範圍第8項所述之具有導熱性之高分子複合物的製備方法，其中該導熱填充體是以羥基(-OH)、羧酸基(-COOH)、磷酸基(-PO₃H)或胺基(-NH₂)進行表面官能基改質。

【第11項】如申請專利範圍第8項所述之具有導熱性之高分子複合物的製備方法，其中該重整促進劑之化學式如以下式(I)所示：

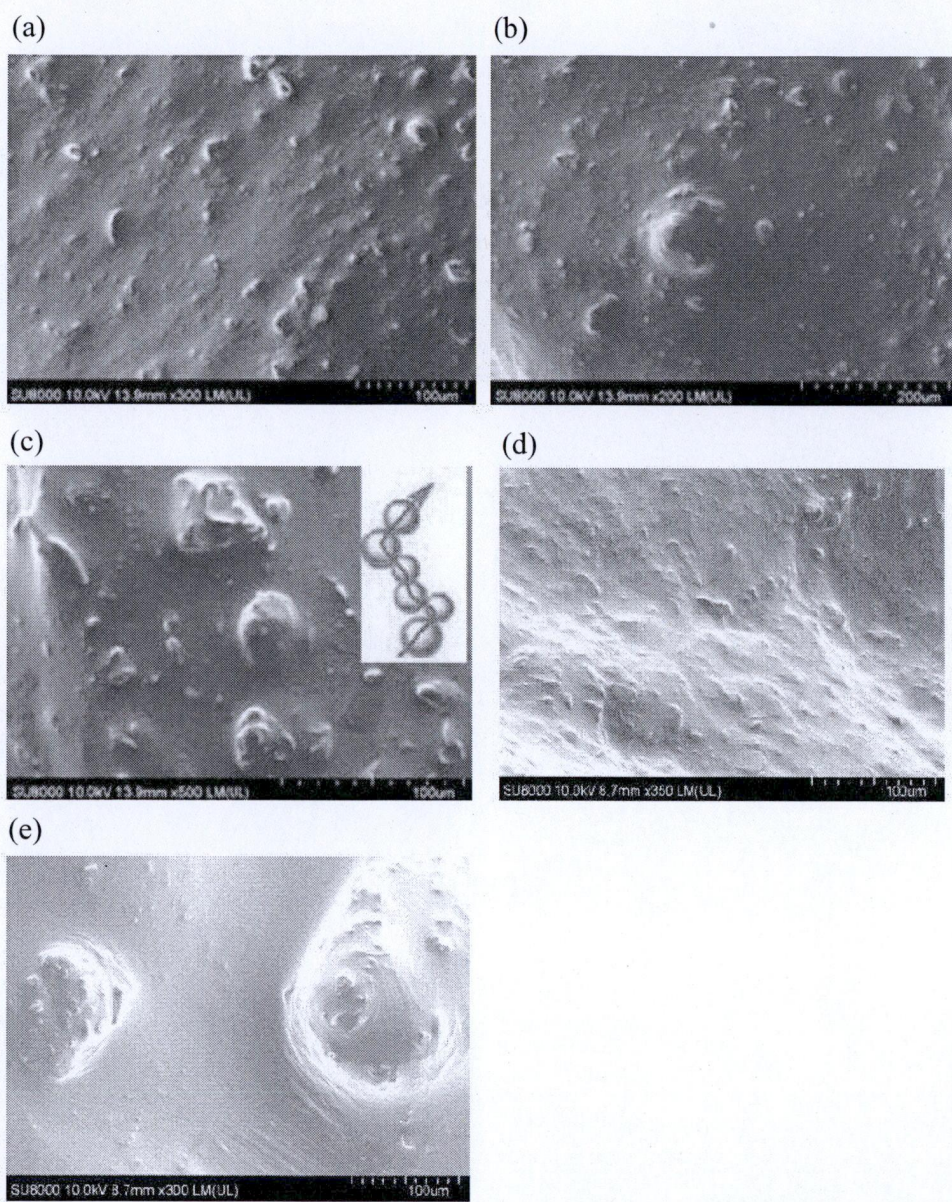


其中，X=I、Br、Cl、F、SH、CN、CO₂CH₃、CO₂C₂H₅、COOH、PO₃H、OH或NH₂，且n=2~20。

【發明圖式】



【圖1】



【圖2】