(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年6月30日(30.06.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/138562 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 299/02 (2006.01) *C08J 9/32* (2006.01)
C08G 65/332 (2006.01) *F16L 59/02* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/047033

(22) 国際出願日： 2021年12月20日(20.12.2021)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2020-212689 2020年12月22日(22.12.2020) JP

(71) 出願人: 昭和電工マテリアルズ株式会社 (**SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 東内 智子 (**HIGASHIUCHI Tomoko**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 横田 弘(**YOKOTA Hiroshi**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 古川 直樹(**FURUKAWA Naoki**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 松原 望(**MATSUBARA Nozomi**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).

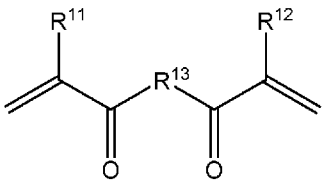
(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (**HASEGAWA Yoshiki et al.**); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目１番１号丸の内 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（明治安田生命ビル） ９階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

(54) **Title:** COMPOSITION AND SHEET CONTAINING CURED PRODUCT OF SAME

(54) 発明の名称： 組成物、及びその硬化物を含むシート



(1)

(57) **Abstract:** This composition comprises the compound represented by formula (1), and a hollow particle. [In formula (1), R^{11} and R^{12} each independently represent a hydrogen atom or a methyl group, and R^{13} represents a divalent group having a polyoxyalkylene chain.]

(57) 要約： 下記式（１）で表される化合物と、中空粒子と、を含有する、組成物。 [式（１）中、R^{11}及びR^{12}はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を表し、R^{13}はポリオキシアルキレン鎖を有する２価の基を表す。]

WO 2022/138562 A1

LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 組成物、及びその硬化物を含むシート

技術分野

[0001]　本発明は、組成物、及びその硬化物を含むシートに関する。

背景技術

[0002]　熱に弱い部材の保護、エネルギー効率の向上等を目的として、様々な場面で断熱材が利用されている。断熱材には、その断熱性能を高めるために、熱伝導率が低い中空粒子が用いられる場合がある。例えば、特許文献１には、基材表面に形成され、多数の中空粒子と、該中空粒子間を埋めると共に上記中空粒子を上記基材に保持するバインダとを備えた断熱層であって、上記バインダが、基本構成単位としてＴ単位とＤ単位とを含むシリコーン樹脂であることを特徴とする断熱層が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１６－０６５１５５号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　本発明者らの検討によれば、断熱材を様々な形状の部材に適用できるように、低弾性で伸びに優れる断熱材が求められることがある。

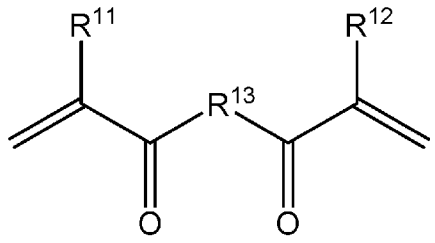
[0005]　そこで、本発明は、低弾性で伸びに優れる断熱材に適した組成物及びその硬化物を含むシートを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006]　本発明者らは、鋭意研究を行った結果、ポリオキシアルキレン鎖を有し、かつ（メタ）アクリロイル基を二つ有する特定の化合物と、中空粒子と、を含有する組成物を用いることにより、低弾性で伸びに優れる断熱材に適した組成物、及び、その硬化物を含むシートが得られることを見出した。本発明は、いくつかの側面において、下記の［１］～［７］を提供する。

[0007] ［１］下記式（１）で表される化合物と、中空粒子と、を含有する、組成物。

[化1]



(1)

［式（１）中、Ｒ^{11}及びＲ^{12}はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を表し、Ｒ^{13}はポリオキシアルキレン鎖を有する２価の基を表す。］

［２］ポリオキシアルキレン鎖がオキシエチレン基を含む、［１］に記載の組成物。

［３］ポリオキシアルキレン鎖がオキシプロピレン基を含む、［１］に記載の組成物。

［４］ポリオキシアルキレン鎖が、オキシエチレン基及びオキシプロピレン基を含む共重合鎖である、［１］に記載の組成物。

［５］共重合鎖がランダム共重合鎖である、［４］に記載の組成物。

［６］前記中空粒子が、熱膨張性の中空粒子である第一の中空粒子と、第一の中空粒子以外の中空粒子である第二の中空粒子と、を含む、［１］～［５］のいずれかに記載の組成物。

［７］［１］～［６］のいずれかに記載の組成物の硬化物を含む、シート。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、低弾性で伸びに優れる断熱材に適した組成物及びその硬化物を含むシートを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。なお、本発明は、以下の実施形態に限定されない。

[0010] 本明細書における、「（メタ）アクリロイル」とは、「アクリロイル」及びそれに対応する「メタクリロイル」を意味し、「（メタ）アクリレート」

、「（メタ）アクリル」等の類似表現においても同様である。

[0011] 本明細書における重量平均分子量（Ｍｗ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて以下の条件で測定され、ポリスチレンを標準物質として決定される値を意味する。

・測定機器：ＨＬＣ－８３２０ＧＰＣ（製品名、東ソー（株）製）

・分析カラム：ＴＳＫｇｅｌ　ＳｕｐｅｒＭｕｌｔｉｐｏｒｅ　ＨＺ－Ｈ（３本連結）（製品名、東ソー（株）製）

・ガードカラム：ＴＳＫｇｕａｒｄｃｏｌｕｍｎ　ＳｕｐｅｒＭＰ（ＨＺ）－Ｈ（製品名、東ソー（株）製）

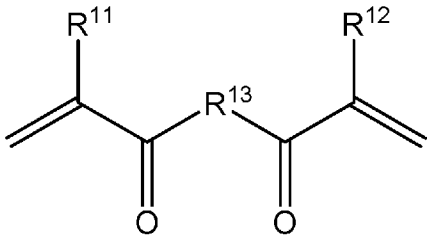
・溶離液：ＴＨＦ

・測定温度：２５℃

[0012] ［組成物］

一実施形態に係る組成物は、下記式（１）で表される化合物と、中空粒子と、を含有する。

[化2]



(1)

式（１）中、Ｒ^{11}及びＲ^{12}はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を表し、Ｒ^{13}はポリオキシアルキレン鎖を有する２価の基を表す。

[0013] （式（１）で表される化合物）

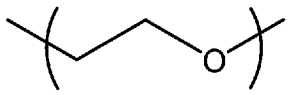
一実施形態において、組成物が上記式（１）で表される化合物を含むことにより、組成物の硬化物は低弾性で伸びに優れ、被着体への追従性を高めることができる。

[0014] 一実施形態において、Ｒ^{11}及びＲ^{12}の一方が水素原子であり、かつ他方がメチル基であってよく、他の一実施形態において、Ｒ^{11}及びＲ^{12}の両方が水素原子であってよく、他の実施形態において、Ｒ^{11}及びＲ^{12}の両方がメチル

基であってよい。

[0015] 一実施形態において、ポリオキシアルキレン鎖は、下記式（２）で表される構造単位を含む。これにより、組成物の粘度の過度な上昇を抑制しつつ、硬化物の強度を高めることができる。

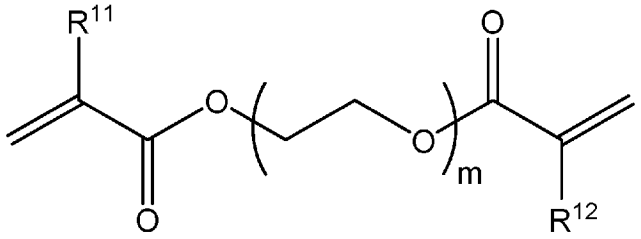
[化3]



(2)

[0016] この場合、Ｒ１３はポリオキシエチレン鎖を有する２価の基であってよく、式（１）で表される化合物は、好ましくは下記式（１－２）で表される化合物（ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート）である。

[化4]

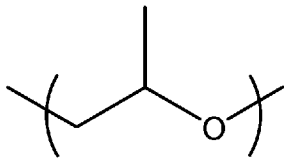


(1-2)

式（１－２）中、Ｒ１１及びＲ１２は式（１）におけるＲ１１及びＲ１２とそれぞれ同義であり、ｍは２以上の整数である。

[0017] 他の一実施形態において、ポリオキシアルキレン鎖は、下記式（３）で表される構造単位を含む。これにより、組成物の取扱いを容易にすることができる。

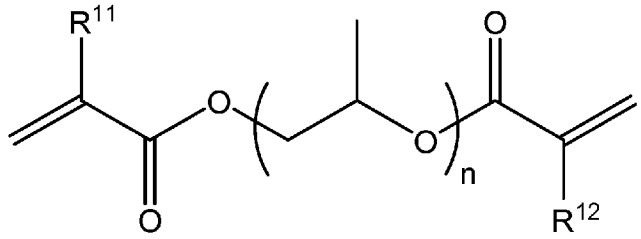
[化5]



(3)

[0018] この場合、Ｒ１３はポリオキシプロピレン鎖を有する２価の基であってよく、式（１）で表される化合物は、好ましくは下記式（１－３）で表される化合物（ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート）である。

[化6]



(1-3)

式（１－３）中、Ｒ^{11}及びＲ^{12}は式（１）におけるＲ^{11}及びＲ^{12}とそれぞれ同義であり、ｎは２以上の整数である。

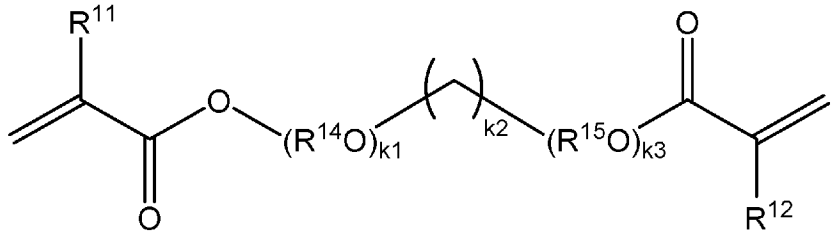
[0019] 他の一実施形態において、ポリオキシアルキレン鎖は、式（１）で表される化合物の硬化物の強度と、組成物の取扱い性を両立させやすくする観点から、好ましくは、上述した、式（２）で表される構造単位、及び式（３）で表される構造単位を含む共重合鎖である。共重合鎖は、交互共重合鎖、ブロック共重合鎖、又はランダム共重合鎖のいずれであってもよい。共重合鎖は、式（１）で表される化合物の結晶性を更に低くし、組成物の取扱いを更に容易にできる観点から、好ましくはランダム共重合鎖である。

[0020] 上述した各実施形態において、ポリオキシアルキレン鎖は、式（２）で表される構造単位及び式（３）で表される構造単位以外に、オキシテトラメチレン基、オキシブチレン基、オキシペンチレン基等の、炭素数４～５のオキシアルキレン基を構造単位として有していてもよい。

[0021] Ｒ^{13}は、上述したポリオキシアルキレン鎖に加えて、その他の有機基を更に有する２価の基であってもよい。その他の有機基は、ポリオキシアルキレン鎖以外の鎖状の基であってよく、例えば、メチレン鎖（－ＣＨ$_2$－を構造単位とする鎖）、ポリエステル鎖（－ＣＯＯ－を構造単位中に含む鎖）、ポリウレタン鎖（－ＯＣＯＮ－を構造単位中に含む鎖）等であってよい。

[0022] 例えば、式（１）で表される化合物は、下記式（１－４）で表される化合物であってもよい。

[化7]



(1-4)

式（１－４）中、Ｒ^{11}及びＲ^{12}は式（１）におけるＲ^{11}及びＲ^{12}とそれぞれ同義であり、Ｒ^{14}及びＲ^{15}は、それぞれ独立に炭素数２～５のアルキレン基であり、ｋ１、ｋ２及びｋ３はそれぞれ独立に２以上の整数である。ｋ２は、例えば１６以下の整数であってよい。

[0023] 複数存在するＲ^{14}及びＲ^{15}は、それぞれ、互いに同一であってよく、互いに異なっていてもよい。複数存在するＲ^{14}及びＲ^{15}は、それぞれ、好ましくは、エチレン基及びプロピレン基を含む。すなわち、（Ｒ^{14}Ｏ）$_{k1}$で表されるポリオキシアルキレン鎖、及び（Ｒ^{15}Ｏ）$_{k3}$で表されるポリオキシアルキレン鎖は、それぞれ、好ましくは、オキシエチレン基（上記式（２）で表される構造単位）、及びオキシプロピレン基（上記式（３）で表される構造単位）を含む共重合鎖である。

[0024] 上述した各実施形態において、ポリオキシアルキレン鎖におけるオキシアルキレン基の数は、好ましくは１００以上である。ポリオキシアルキレン鎖におけるオキシアルキレン基の数が１００以上であると、式（１）で表される化合物の主鎖が長くなることにより、硬化物の伸びが更に優れ、硬化物の強度も高めることができる。オキシアルキレン基の数は、式（１－２）におけるｍ、式（１－３）におけるｎ、式（１－４）におけるｋ１及びｋ３のそれぞれに相当する。

[0025] ポリオキシアルキレン鎖におけるオキシアルキレン基の数は、より好ましくは、１３０以上、１８０以上、２００以上、２２０以上、２５０以上、２７０以上、３００以上、又は３２０以上である。ポリオキシアルキレン鎖におけるオキシアルキレン基の数は、６００以下、５７０以下、又は５３０以下であってよい。

[0026] 式（１）で表される化合物の重量平均分子量は、硬化物がより低弾性で伸びに優れる観点から、好ましくは、５０００以上、６０００以上、７０００以上、８０００以上、９０００以上、１００００以上、１１０００以上、１２０００以上、１３０００以上、１４０００以上、又は１５０００以上である。式（１）で表される化合物の重量平均分子量は、組成物の粘度を調整しやすくする観点から、好ましくは、１００００以下、８００００以下、６００００以下、３４０００以下、３１０００以下、又は２８０００以下である。

[0027] 式（１）で表される化合物は、２５℃で液状であってよい。この場合、式（１）で表される化合物の２５℃における粘度は、塗布面に対して塗布しやすくする観点、硬化物の塗布面に対する密着性を高める観点から、好ましくは、１０００Ｐａ・ｓ以下、８００Ｐａ・ｓ以下、６００Ｐａ・ｓ以下、５００Ｐａ・ｓ以下、３５０Ｐａ・ｓ以下、３００Ｐａ・ｓ以下、又は２００Ｐａ・ｓ以下である。式（１）で表される化合物の２５℃における粘度は、０．１Ｐａ・ｓ以上、０．２Ｐａ・ｓ以上、０．３Ｐａ・ｓ以上、１Ｐａ・ｓ以上、２Ｐａ・ｓ以上、又は３Ｐａ・ｓ以上であってよい。

[0028] 式（１）で表される化合物は、２５℃で固体状であってもよい。この場合、組成物の取扱い性を更に向上させる観点から、式（１）で表される化合物は、好ましくは、５０℃で液状である。また、この場合、式（１）で表される化合物の５０℃における粘度は、組成物の取扱い性を更に向上させる観点から、好ましくは１００Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは５０Ｐａ・ｓ以下、更に好ましくは３０Ｐａ・ｓ以下、特に好ましくは２０Ｐａ・ｓ以下である。式（１）で表される化合物の５０℃における粘度は、０．１Ｐａ・ｓ以上、０．２Ｐａ・ｓ以上、又は０．３Ｐａ・ｓ以上であってよい。

[0029] 粘度は、ＪＩＳ　Ｚ　８８０３に基づいて測定された値を意味し、具体的には、Ｅ型粘度計（例えば、東機産業（株）製、ＰＥ－８０Ｌ）により測定された値を意味する。なお、粘度計の校正は、ＪＩＳ　Ｚ　８８０９－ＪＳ１４０００に基づいて行うことができる。式（１）で表される化合物の粘度

は、当該化合物の重量平均分子量を調整することにより調整することができる。

[0030] 式（１）で表される化合物の含有量は、硬化物がより低弾性で伸びに優れる観点から、組成物全量を基準として、好ましくは、１０質量％以上、２０質量％以上、３０質量％以上、又は４０質量％以上である。式（１）で表される化合物の含有量は、組成物全量を基準として、９０質量％以下、８０質量％以下、７０質量％以下、６０質量％以下、又は５０質量％以下であってよい。

[0031] 組成物は、式（１）で表される化合物以外の他の重合性化合物（詳細は後述する）を更に含有してもよい。この場合、式（１）で表される化合物の含有量は、硬化物がより低弾性で伸びに優れる観点から、式（１）で表される化合物及び他の重合性化合物の合計（以下、「重合性成分の含有量の合計」という）１００質量部に対して、好ましくは、２０質量部以上、３０質量部以上、又は４０質量部以上である。式（１）で表される化合物の含有量は、重合性成分の含有量の合計１００質量部に対して、８０質量部以下、７０質量部以下、又は６０質量部以下であってよい。

[0032]（中空粒子）

中空粒子は、外殻と中空部とを有している。組成物が中空粒子を含むことにより、組成物の断熱性が向上し、組成物を断熱材として好適に利用することができる。中空粒子としては、熱膨張性の中空粒子である第一の中空粒子、及び、当該第一の中空粒子以外の中空粒子である第二の中空粒子が挙げられる。中空粒子は、第一の中空粒子及び第二の中空粒子のいずれか一方又は両方を含んでいてよく、好ましくは第一の中空粒子及び第二の中空粒子の両方を含んでいる。

[0033]（第一の中空粒子）

第一の中空粒子は、熱により膨張する（熱膨張性の）中空粒子である。本明細書における熱膨張性の中空粒子とは、２５℃における体積に対する最大体積膨張倍率が１０倍以上である中空粒子である。第一の中空粒子を用いる

と、リフロー工程において、第一の中空粒子が熱によって膨張することにより、断熱材と装置との界面の接着面積が減少し、リフロー工程後に組成物を容易に除去することができる。

[0034] 第一の中空粒子の最大体積膨張倍率は、熱機械分析（ＴＭＡ）にて、昇温速度１０℃／分で昇温したときの、第一の中空粒子の最大体積と２５℃における体積との比（最大体積／２５℃における体積）として測定される。第一の中空粒子の最大体積膨張倍率は、例えば、１０倍以上、２０倍以上、３０倍以上、又は４０倍以上であってもよく、１２０倍以下であってもよい。

[0035] 第一の中空粒子の外殻は、好ましくは熱可塑性ポリマーで構成されている。この場合、外殻が加熱により軟らかくなるため、中空部に内包されている液体が気化して内圧が上がっても、中空粒子は割れにくく、容易に膨張する。熱可塑性ポリマーは、例えば、アクリロニトリル、塩化ビニリデン等をモノマー単位として含むポリマーであってよい。外殻の厚さは、２μｍ以上であってよく、１５μｍ以下であってよい。

[0036] 第一の中空粒子の中空部には、例えば液体が内包されている。第一の中空粒子は、常温常圧下（例えば、少なくとも大気圧下かつ３０℃）においてこのような状態をとっている。当該液体は、例えば、リフロー工程における加熱温度に応じて適宜選択される。当該液体は、例えば、リフロー工程における最高加熱温度以下の温度で気化する液体である。当該液体は、例えば、沸点（大気圧下）が、５０℃以上、１００℃以上、１５０℃以上、又は２００℃以上の炭化水素であってよい。第一の中空粒子の中空部には、上記の液体に加えて、気体が更に内包されていてもよい。

[0037] 第一の中空粒子の中空部に内包されている成分としては、例えば、プロパン、プロピレン、ブテン、ノルマルブタン、イソブタン、ノルマルペンタン、イソペンタン、ネオペンタン、ノルマルヘキサン、イソヘキサン、ヘプタン、イソオクタン、ノルマルオクタン、イソアルカン（炭素数：１０～１３）、石油エーテル等の炭化水素；メタンのハロゲン化物、テトラアルキルシラン等の低沸点化合物；アゾジカルボンアミド等の熱分解によりガス化する

化合物が挙げられる。

[0038] 第一の中空粒子の平均粒子径は、５μｍ以上、１０μｍ以上、又は２０μｍ以上であってよく、５０μｍ以下、４０μｍ以下、又は３０μｍ以下であってよい。第一の中空粒子の平均粒子径は、レーザー回折・散乱法により（例えば、（株）島津製作所製「ＳＡＬＤ－７５００ｎａｎｏ」を用いて）測定される。

[0039] 組成物がリフロー工程（一般的に２６０℃まで加熱される）における断熱材としてより好適に用いられる観点から、第一の中空粒子の膨張開始温度は、好ましくは、７０℃以上、１００℃以上、１３０℃以上、又は１６０℃以上であり、好ましくは、２６０℃以下である。第一の中空粒子の膨張開始温度は、熱機械分析（ＴＭＡ）にて、昇温速度１０℃／分で昇温したときの温度（横軸）－体積変化（縦軸）のプロファイルにおいて、３倍以上／５℃の体積変化が生じる点の接線と、体積変化がゼロ（初期体積）の直線（横軸）との交点の温度を意味する。

[0040] 組成物がリフロー工程における断熱材としてより好適に用いられる観点から、第一の中空粒子の最大膨張温度は、好ましくは、１００℃以上、１５０℃以上、２００℃以上、又は２２０℃以上であり、好ましくは、２９０℃以下、２８０℃以下、又は２７０℃以下である。第一の中空粒子の最大膨張温度は、熱機械分析（ＴＭＡ）にて昇温速度１０℃／分で測定したときに、体積膨張倍率が最大となるときの温度を意味する。

[0041] 第一の中空粒子の含有量は、組成物のリフロー工程後の除去が更に容易になる観点から、組成物全質量を基準として、好ましくは１質量％以上、より好ましくは５質量％以上、更に好ましくは８質量％以上であってよく、２０質量％以下、又は１５質量％以下であってよい。

[0042] 第一の中空粒子の含有量は、組成物のリフロー工程後の除去が更に容易になる観点から、組成物全体積を基準として、好ましくは１体積％以上、より好ましくは２体積％以上、更に好ましくは３体積％以上、特に好ましくは４体積％以上であり、例えば、１０体積％以下、７体積％以下、又は５体積％

以下であってよい。

[0043]（第二の中空粒子）

第二の中空粒子は、第一の中空粒子以外の中空粒子である。すなわち、第二の中空粒子は、２５℃における体積に対する最大体積膨張倍率が１０倍未満である中空粒子である。第二の中空粒子を用いることにより、組成物の断熱性が向上し、組成物を断熱材として好適に利用することができる。第二の中空粒子の最大体積膨張倍率は、第一の中空粒子の最大体積膨張倍率と同じ方法で測定される。

[0044] 第二の中空粒子の外殻は、ポリマーで構成されていてもよく、無機材料で構成されていてもよい。外殻は、好ましくはポリマーで構成されており、より好ましくは熱可塑性ポリマーで構成されている。この場合、中空粒子は加圧されても割れにくく、中空構造を保持し、断熱性を維持することができる。熱可塑性ポリマーは、例えば、アクリロニトリル、塩化ビニリデン等をモノマー単位として含むポリマーであってよい。無機材料は、例えば、ホウケイ酸ガラス（ホウケイ酸ナトリウムガラス等）、アルミノケイ酸ガラス、それらを複合化させたガラス等の無機ガラスであってよい。外殻の厚さは、０．００５μｍ以上であってよく、１５μｍ以下であってよい。

[0045] 第二の中空粒子の中空部には、例えば気体が内包されている。第二の中空粒子は、常温常圧下（例えば、少なくとも大気圧下かつ３０℃）においてこのような状態をとっている。第二の中空粒子の中空部には、気体に加えて、液体が更に内包されていてもよい。

[0046] 第二の中空粒子の中空部に内包されている成分としては、例えば、プロパン、プロピレン、ブテン、ノルマルブタン、イソブタン、ノルマルペンタン、イソペンタン、ネオペンタン、ノルマルヘキサン、イソヘキサン、ヘプタン、イソオクタン、ノルマルオクタン、イソアルカン（炭素数：１０～１３）、石油エーテル等の炭化水素；メタンのハロゲン化物、テトラアルキルシラン等の低沸点化合物；アゾジカルボンアミド等の熱分解によりガス化する化合物の分解生成物が挙げられる。また、第二の中空粒子の中空部に内包さ

れている成分は、空気であってもよい。

[0047] 第二の中空粒子の平均粒子径は、断熱性を高める観点から、好ましくは１５０μｍ以下であり、より好ましくは１２０μｍ以下であり、更に好ましくは１００μｍ以下であり、例えば、５μｍ以上、１０μｍ以上、２０μｍ以上、又は３０μｍ以上であってよい。第二の中空粒子の平均粒子径は、レーザー回折・散乱法により（例えば、（株）島津製作所製「ＳＡＬＤ－７５００ｎａｎｏ」を用いて）測定される。

[0048] 第二の中空粒子の密度は、５００ｋｇ／ｍ^{3}以下、３００ｋｇ／ｍ^{3}以下、１００ｋｇ／ｍ^{3}以下、５０ｋｇ／ｍ^{3}以下、又は４０ｋｇ／ｍ^{3}以下であってよく、１０ｋｇ／ｍ^{3}以上、又は２０ｋｇ／ｍ^{3}以上であってよい。本明細書における第二の中空粒子の密度は、タップ密度法にて測定される密度を意味する。すなわち、１０ｍＬのメスシリンダーに第二の中空粒子（約５ｇ）を投入し、５０回タッピングし、最上面が安定した時の体積を安定時体積として、以下の式により求められる密度である。

密度＝初期投入量（ｋｇ）／安定時体積（ｍ^3）

[0049] 第二の中空粒子の含有量は、組成物の断熱性を高める観点から、組成物全質量を基準として、好ましくは１質量％以上であり、より好ましくは３質量％以上であり、更に好ましくは５質量％以上であり、例えば２０質量％以下であってよい。

[0050] 第二の中空粒子の含有量は、組成物の断熱性を高める観点から、組成物全体積を基準として、好ましくは５０体積％以上であり、より好ましくは６０体積％以上であり、例えば９５体積％以下であってよい。

[0051] 中空粒子の合計含有量（第一の中空粒子及び第二の中空粒子を含む含有量）は、組成物全質量を基準として、例えば、５質量％以上、１０質量％以上、又は１５質量％以上であってよく、４０質量％以下、３０質量％以下、又は２０質量％以下であってよい。

[0052] 中空粒子の合計含有量（第一の中空粒子及び第二の中空粒子を含む含有量）は、組成物全体積を基準として、例えば、５０体積％以上、６０体積％以

上、又は７０体積％以上であってよく、９５体積％以下であってよい。

[0053] 組成物は、組成物の物性を調整すること等を目的として、上述した式（１）で表される化合物と共重合可能な、他の重合性化合物を更に含有してもよい。

[0054] 他の重合性化合物は、例えば、（メタ）アクリロイル基を一つ有する化合物であってよい。当該化合物は、例えば、アルキル（メタ）アクリレートであってよい。他の重合性化合物は、一つの（メタ）アクリロイル基に加えて、芳香族炭化水素基、ポリオキシアルキレン鎖を含む基、ヘテロ環を含む基、アルコキシ基、フェノキシ基、シラン基を含む基、シロキサン結合を含む基、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アミノ基、又はエポキシ基を有する化合物であってもよい。特に、組成物がアルキル（メタ）アクリレートを含有することにより、組成物の粘度を調整することができる。また、組成物が、（メタ）アクリロイル基に加えて、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アミノ基、又はエポキシ基を有する化合物を含有することにより、組成物及び断熱材の部材に対する密着性を更に向上できる。

[0055] アルキル（メタ）アクリレートにおけるアルキル基（（メタ）アクリロイル基以外のアルキル基部分）は、直鎖状であっても分岐状であっても脂環式であってもよい。アルキル基の炭素数は、例えば、１～３０であってよい。アルキル基の炭素数は、１～１１、１～８、１～６、又は１～４であってよく、１２～３０、１２～２８、１２～２４、１２～２２、１２～１８、又は１２～１４であってもよい。

[0056] 直鎖状のアルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートとしては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、ペンチル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘプチル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、又はウンデシル（メタ）アクリレート等の炭素数１～１１の直鎖状アルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレート、ドデ

シル（メタ）アクリレート（ラウリル（メタ）アクリレート）、テトラデシル（メタ）アクリレート、ヘキサデシル（メタ）アクリレート（セチル（メタ）アクリレート）、オクタデシル（メタ）アクリレート（ステアリル（メタ）アクリレート）、ドコシル（メタ）アクリレート（ベヘニル（メタ）アクリレート）、テトラコシル（メタ）アクリレート、ヘキサコシル（メタ）アクリレート、オクタコシル（メタ）アクリレート等の炭素数１２～３０の直鎖状アルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0057] 分岐状のアルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートとしては、ｓ－ブチル（メタ）アクリレート、ｔ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、イソペンチル（メタ）アクリレート、イソアミル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソノニル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート等の炭素数１～１１の分岐状アルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレート、イソミリスチル（メタ）アクリレート、２－プロピルヘプチル（メタ）アクリレート、イソウンデシル（メタ）アクリレート、イソドデシル（メタ）アクリレート、イソトリデシル（メタ）アクリレート、イソペンタデシル（メタ）アクリレート、イソヘキサデシル（メタ）アクリレート、イソヘプタデシル（メタ）アクリレート、イソステアリル（メタ）アクリレート、デシルテトラデカニル（メタ）アクリレート等の炭素数１２～３０の分岐状アルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0058] 脂環式であるアルキル基（シクロアルキル基）を有するアルキル（メタ）アクリレートとしては、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、３，３，５－トリメチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、テルペン（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0059] （メタ）アクリロイル基及び芳香族炭化水素基を有する化合物としては、ベンジル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0060] （メタ）アクリロイル基、及びポリオキシアルキレン鎖を含む基を有する化合物としては、ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリプロピレングリコール（メタ）アクリレート、ポリブチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリブチレングリコール（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0061] （メタ）アクリロイル基、及びヘテロ環を含む基を有する化合物としては、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0062] （メタ）アクリロイル基及びアルコキシ基を有する化合物としては、２－メトキシエチルアクリレート等が挙げられる。

[0063] （メタ）アクリロイル基及びフェノキシ基を有する化合物としては、フェノキシエチル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0064] （メタ）アクリロイル基、及びシラン基を含む基を有する化合物としては、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、１０－メタクリロイルオキシデシルトリメトキシシラン、１０－アクリロイルオキシデシルトリメトキシシラン、１０－メタクリロイルオキシデシルトリエトキシシラン、１０－アクリロイルオキシデシルトリエトキシシラン等が挙げられる。

[0065] （メタ）アクリロイル基、及びシロキサン結合を含む基を有する化合物としては、シリコーン（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0066] （メタ）アクリロイル基及びハロゲン原子を有する化合物としては、トリフルオロメチル（メタ）アクリレート、２，２，２－トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロ－２－プロピル（メタ）アクリレート、パーフルオロエチルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロプロピルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロブチルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロペンチルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロヘキシルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロヘプチルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロオクチルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロノニルメチル（メタ）アクリレート、パー

フルオロデシルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロウンデシルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロドデシルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロトリデシルメチル（メタ）アクリレート、パーフルオロテトラデシルメチル（メタ）アクリレート、２－（トリフルオロメチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロエチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロプロピル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロブチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロペンチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロヘキシル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロヘプチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロオクチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロノニル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロトリデシル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロテトラデシル）エチル（メタ）アクリレート等のフッ素原子を有する（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0067] （メタ）アクリロイル基及びヒドロキシル基を有する化合物としては、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、６－ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、８－ヒドロキシオクチル（メタ）アクリレート、１０－ヒドロキシデシル（メタ）アクリレート、１２－ヒドロキシラウリル（メタ）アクリレート等のヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート；（４－ヒドロキシメチルシクロヘキシル）メチル（メタ）アクリレート等のヒドロキシアルキルシクロアルカン（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0068] （メタ）アクリロイル基及びカルボキシル基を有する化合物としては、（メタ）アクリル酸、カルボキシエチル（メタ）アクリレート、カルボキシペンチル（メタ）アクリレート、フタル酸モノヒドロキシエチルアクリレート（例えば、東亞合成（株）製「アロニックスＭ５４００」）、及び２－アク

リロイルオキシエチルサクシネート（例えば、新中村化学株式会社製「ＮＫエステル　Ａ－ＳＡ」）等が挙げられる。

[0069] （メタ）アクリロイル基及びアミノ基を有する化合物としては、例えば、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジエチルアミノプロピル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0070] （メタ）アクリロイル基及びエポキシ基を有する化合物としては、例えば、（メタ）アクリル酸グリシジル、α－エチル（メタ）アクリル酸グリシジル、α－ｎ－プロピル（メタ）アクリル酸グリシジル、α－ｎ－ブチル（メタ）アクリル酸グリシジル、（メタ）アクリル酸－３，４－エポキシブチル、（メタ）アクリル酸－４，５－エポキシペンチル、（メタ）アクリル酸－６，７－エポキシヘプチル、α－エチル（メタ）アクリル酸－６，７－エポキシヘプチル、（メタ）アクリル酸－３－メチル－３，４－エポキシブチル、（メタ）アクリル酸－４－メチル－４，５－エポキシペンチル、（メタ）アクリル酸－５－メチル－５，６－エポキシヘキシル、（メタ）アクリル酸－β－メチルグリシジル、α－エチル（メタ）アクリル酸－β－メチルグリシジル等が挙げられる。

[0071] 組成物は、重合性化合物として、式（１）で表される化合物に加えて、上記他の重合性化合物のうちの１種を含有してもよく、２種以上を含有してもよい。

[0072] 式（１）で表される化合物以外の他の重合性化合物の含有量は、組成物全量を基準として、例えば、１質量％以上、５質量％以上、１０質量％以上、２０質量％以上、又は３０質量％以上であってよく、６０質量％以下、５０質量％以下、又は４０質量％以下であってよい。

[0073] 重合性化合物の含有量（式（１）で表される化合物及び他の重合性化合物の合計含有量）は、組成物全量を基準として、例えば、４０質量％以上、５０質量％以上、６０質量％以上、又は７０質量％以上であってよく、９５質

量％以下、又は９０質量％以下であってよい。

[0074] 組成物は、重合開始剤を更に含有してもよい。重合開始剤は、例えば、熱によりラジカルを発生させる熱重合開始剤、光によりラジカルを発生させる光重合開始剤等であってよい。重合開始剤は、好ましくは熱重合開始剤である。

[0075] 組成物が熱重合開始剤を含有する場合、組成物に熱を加えることにより、組成物の硬化物を得ることができる。この場合、組成物は、好ましくは１０５℃以上、より好ましくは１１０℃以上、更に好ましくは１１５℃以上での加熱によって硬化させる組成物であってよく、例えば、２００℃以下、１９０℃以下、又は１８０℃以下での加熱によって硬化させる組成物であってもよい。組成物を加熱する際の加熱時間は、組成物が好適に硬化するように、組成物の組成に応じて適宜選択されてよい。

[0076] 熱重合開始剤としては、アゾビスイソブチロニトリル、アゾビス－４－メトキシ－２，４－ジメチルバレロニトリル、アゾビスシクロヘキサノン－１－カルボニトリル、アゾジベンゾイル等のアゾ化合物、過酸化ベンゾイル、過酸化ラウロイル、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、ジ－ｔ－ヘキシルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート、ｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、１，１－ｔ－ブチルパーオキシ－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、ｔ－ブチルペルオキシイソプロピルカーボネート等の有機過酸化物などが挙げられる。熱重合開始剤は、これらを１種単独で又は２種以上を組み合わせて用いられてよい。

[0077] 組成物が光重合開始剤を含有する場合、例えば、光（例えば２００～４００ｎｍの少なくとも一部の波長を含む光（紫外光））を組成物に照射することにより、組成物の硬化物を得ることができる。光照射の条件は、光重合開始剤の種類により適宜設定されてよい。

[0078] 光重合開始剤は、例えば、ベンゾインエーテル系光重合開始剤、アセトフェノン系光重合開始剤、α－ケトール系光重合開始剤、芳香族スルホニルクロリド系光重合開始剤、光活性オキシム系光重合開始剤、ベンゾイン系光重

合開始剤、ベンジル系光重合開始剤、ベンゾフェノン系光重合開始剤、ケタール系光重合開始剤、チオキサントン系光重合開始剤、アシルフォスフィンオキサイド系光重合開始剤等であってよい。

[0079] ベンゾインエーテル系光重合開始剤としては、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、２，２－ジメトキシ－１，２－ジフェニルエタン－１－オン（例えば、ＢＡＳＦ社製「イルガキュア６５１」）、アニソールメチルエーテル等が挙げられる。アセトフェノン系光重合開始剤としては、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（例えば、ＢＡＳＦ社製「イルガキュア１８４」）、４－フェノキシジクロロアセトフェノン、４－ｔ－ブチル－ジクロロアセトフェノン、１－［４－（２－ヒドロキシエトキシ）－フェニル］－２－ヒドロキシ－２－メチル－１－プロパン－１－オン（例えば、ＢＡＳＦ社製「イルガキュア２９５９」）、２－ヒドロキシ－２－メチル－１－フェニル－プロパン－１－オン（例えば、ＢＡＳＦ社製「イルガキュア１１７３」）、メトキシアセトフェノン等が挙げられる。

[0080] α－ケトール系光重合開始剤としては、２－メチル－２－ヒドロキシプロピオフェノン、１－［４－（２－ヒドロキシエチル）－フェニル］－２－ヒドロキシ－２－メチルプロパン－１－オン等が挙げられる。芳香族スルホニルクロリド系光重合開始剤としては、２－ナフタレンスルホニルクロライド等が挙げられる。光活性オキシム系光重合開始剤としては、１－フェニル－１，１－プロパンジオン－２－（ｏ－エトキシカルボニル）－オキシム等が挙げられる。

[0081] ベンゾイン系光重合開始剤としては、ベンゾイン等が挙げられる。ベンジル系光重合開始剤としては、ベンジル等が挙げられる。ベンゾフェノン系光重合開始剤としては、ベンゾフェノン、ベンゾイル安息香酸、３，３’－ジメチル－４－メトキシベンゾフェノン、ポリビニルベンゾフェノン、α－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン等が挙げられる。ケタール系光重合

開始剤としては、ベンジルジメチルケタール等が挙げられる。チオキサントン系光重合開始剤としては、チオキサントン、２－クロロチオキサントン、２－メチルチオキサントン、２，４－ジメチルチオキサントン、イソプロピルチオキサントン、２，４－ジクロロチオキサントン、２，４－ジエチルチオキサントン、イソプロピルチオキサントン、２，４－ジイソプロピルチオキサントン、ドデシルチオキサントン等が挙げられる。

[0082] アシルフォスフィン系光重合開始剤としては、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）フェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）（２，４，４－トリメチルペンチル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－ｎ－ブチルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－（２－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－（１－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－ｔ－ブチルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）シクロヘキシルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）オクチルホスフィンオキサイド、ビス（２－メトキシベンゾイル）（２－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２－メトキシベンゾイル）（１－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジエトキシベンゾイル）（２－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジエトキシベンゾイル）（１－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジブトキシベンゾイル）（２－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，４－ジメトキシベンゾイル）（２－メチルプロパン－１－イル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）（２，４－ジペントキシフェニル）ホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）ベンジルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２－フェニルプロピルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２－フェニルエチルホスフィ

ンオキサイド、２，６－ジメトキシベンゾイルベンジルブチルホスフィンオキサイド、２，６－ジメトキシベンゾイルベンジルオクチルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２，５－ジイソプロピルフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２－メチルフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－４－メチルフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２，５－ジエチルフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２，３，５，６－テトラメチルフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２，４－ジ－ｎ－ブトキシフェニルホスフィンオキサイド、２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，４，４－トリメチルペンチルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）イソブチルホスフィンオキサイド、２，６－ジメチトキシベンゾイル－２，４，６－トリメチルベンゾイル－ｎ－ブチルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）フェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－２，４－ジブトキシフェニルホスフィンオキサイド、１，１０－ビス［ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）ホスフィンオキサイド］デカン、トリ（２－メチルベンゾイル）ホスフィンオキサイド等が挙げられる。

[0083] 上述した光重合開始剤は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられてよい。

[0084] 重合開始剤の含有量は、重合を好適に進行させる観点から、重合性成分の含有量の合計１００質量部に対して、好ましくは０．０１質量部以上、より好ましくは０．０２質量部以上、更に好ましくは０．０５質量部以上である。重合開始剤の含有量は、組成物の硬化物における重合体の分子量が好適な範囲になると共に、分解生成物を抑制する観点から、重合性成分の含有量の合計１００質量部に対して、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５

質量部以下、更に好ましくは３質量部以下、特に好ましくは１質量部以下である。

[0085] 組成物は、添加剤として可塑剤を含有することができる。組成物が可塑剤を含有することにより、組成物の密着性、及び硬化物の伸びを更に高めることができる。可塑剤としては、ブタジエンゴム、イソプレンゴム、シリコーンゴム、スチレンブタジエンゴム、クロロプレンゴム、ニトリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、ウレタンゴム、アクリル樹脂、ロジン系樹脂、テルペン系樹脂等のタッキファイヤー、又はポリアルキレングリコールなどが挙げられる。可塑剤の含有量は、重合性成分の含有量の合計１００質量部に対して、０．１質量部以上、１質量部以上、又は３質量部以上であってよく、２０質量部以下、１５質量部以下、１２質量部以下、又は１０質量部以下であってよい。

[0086] 組成物は、必要に応じて、その他の添加剤を更に含有することができる。その他の添加剤としては、例えば、酸化防止剤、表面処理剤（例えばシランカップリング剤）、分散剤、硬化促進剤、着色剤、結晶核剤、熱安定剤、発泡剤、難燃剤、制振剤、脱水剤、難燃助剤（例えば金属酸化物）等が挙げられる。その他の添加剤の含有量は、組成物全量基準で、０．１質量％以上であってよく、３０質量％以下であってよい。

[0087] 組成物は、好ましくは２５℃で液状である。これにより、不揮発性半導体記憶装置等の対象物の表面に好適に塗布することができ、塗布面への密着性も高めることができる。組成物は２５℃で固体状であってもよく、その場合、加熱によって（例えば５０℃以上で）液状になることが好ましい。組成物は、液状の状態で塗布しその後硬化すればよく、これにより組成物が液だれ及びポンプアウト現象を引き起こすことを抑制し得る。

[0088] ［組成物セット］

上述した組成物は、複数液型の組成物（組成物セット）の状態であってもよい。一実施形態に係る組成物セットは、酸化剤を含有する第一液と、還元剤を含有する第二液とを備える組成物セットである。第一液及び第二液の少

なくとも一方は、上述した式（１）で表される化合物を含有する。また、第一液及び第二液の少なくとも一方は、上述した中空粒子を含有する。第一液と第二液を混合することにより、酸化剤及び還元剤が反応して遊離ラジカルが発生し、重合性成分の重合が進行する。本実施形態に係る組成物セットによれば、第一液と第二液を混合することにより、直ちに第一液と第二液との混合物の硬化物が得られる。すなわち、組成物セットによれば、速い速度で組成物の硬化物が得られる。

[0089] 組成物セットにおいては、好ましくは、第一液が酸化剤、式（１）で表される重合性化合物及び中空粒子を含有し、第二液が還元剤、式（１）で表される重合性化合物及び中空粒子を含有する。

[0090] 組成物セットを構成する液全量（例えば、二液型の組成物セットであれば、第一液及び第二液の合計量）を基準とした、式（１）で表される化合物の含有量は、上述した組成物の全量を基準とした式（１）で表される化合物の含有量の範囲と同様であってよい。組成物セットに含まれる中空粒子の含有量においても同様である。

[0091] 第一液に含まれる酸化剤は、重合開始剤（ラジカル重合開始剤）としての役割を有する。酸化剤は、例えば、有機過酸化物又はアゾ化合物であってよい。有機過酸化物は、例えば、ハイドロパーオキサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアルキルパーオキサイド、ジアシルパーオキサイド等であってよい。アゾ化合物は、ＡＩＢＮ（２、２’－アゾビスイソブチロニトリル）、Ｖ－６５（アゾビスジメチルバレロニトリル）等であってよい。酸化剤は、１種類を単独で又は２種類以上を組み合わせて用いることができる。

[0092] ハイドロパーオキサイドとしては、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド等が挙げられる。

[0093] パーオキシジカーボネートとしては、ジ－ｎ－プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス（４－ｔ－ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート、ジ－２－エトキシメトキシ

パーオキシジカーボネート、ジ（２－エチルヘキシルパーオキシ）ジカーボネート、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ（３－メチル－３メトキシブチルパーオキシ）ジカーボネート等が挙げられる。

[0094] パーオキシエステルとしては、クミルパーオキシネオデカノエート、１，１，３，３－テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシネオデカノエート、ｔ－ヘキシルパーオキシネオデカノエート、ｔ－ブチルパーオキシピバレート、１，１，３，３－テトラメチルブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、２，５－ジメチル－２，５－ジ（２－エチルヘキサノイルパーオキシ）ヘキサン、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、ｔ－ヘキシルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、ｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、ｔ－ブチルパーオキシイソブチレート、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）シクロヘキサン、ｔ－ブチルパーオキシ－３，５，５－トリメチルヘキサノネート、ｔ－ブチルパーオキシラウレート、２，５－ジメチル－２，５－ジ（ｍ－トルオイルパーオキシ）ヘキサン、ｔ－ヘキシルパーオキシベンゾエート、ｔ－ブチルパーオキシアセテート等が挙げられる。

[0095] パーオキシケタールとしては、１，１－ビス（ｔ－ヘキシルパーオキシ）－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ヘキシルパーオキシ）シクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）シクロドデカン、２，２－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）デカン等が挙げられる。

[0096] ジアルキルパーオキサイドとしては、α，α’－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ジ（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ｔ－ブチルクミルパーオキサイド等が挙げられる。

[0097] ジアシルパーオキサイドとしては、イソブチルパーオキサイド、２，４－

ジクロロベンゾイルパーオキサイド、３，５，５－トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、ステアロイルパーオキサイド、スクシニツクパーオキサイド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキサイド等が挙げられる。

[0098] 酸化剤は、貯蔵安定性の観点から、好ましくは過酸化物であり、より好ましくはハイドロパーオキサイドであり、更に好ましくはクメンハイドロパーオキサイドである。

[0099] 酸化剤の含有量は、組成物セットを構成する液全量を基準として、０．１質量％以上、０．５質量％以上、又は１質量％以上であってよく、１０質量％以下、５質量％以下、又は３質量％以下であってよい。

[0100] 第二液に含まれる還元剤は、例えば、第３級アミン、チオ尿素誘導体、遷移金属塩等であってよい。第３級アミンとしては、トリエチルアミン、トリプロピルアミン、トリブチルアミン、Ｎ，Ｎ－ジメチルパラトルイジン等が挙げられる。チオ尿素誘導体としては、２－メルカプトベンズイミダゾール、メチルチオ尿素、ジブチルチオ尿素、テトラメチルチオ尿素、エチレンチオ尿素等が挙げられる。遷移金属塩としては、ナフテン酸コバルト、ナフテン酸銅、バナジルアセチルアセトネート等が挙げられる。還元剤は、１種類を単独で又は２種類以上を組み合わせて用いることができる。

[0101] 還元剤は、硬化速度に優れる観点から、好ましくは、チオ尿素誘導体又は遷移金属塩である。チオ尿素誘導体は、例えば、エチレンチオ尿素であってよい。同様の観点から、遷移金属塩は、好ましくはバナジルアセチルアセトネートである。

[0102] 還元剤の含有量は、組成物セットを構成する液全量を基準として、０．０５質量％以上、０．１質量％以上、又は０．３質量％以上であってよく、５質量％以下、３質量％以下、又は１質量％以下であってよい。

[0103] 組成物セットは、上述した組成物に用いられ得る他の重合性化合物、及び添加剤を更に含有してもよい。これらの成分は、第一液及び第二液の一方又は両方に含まれていてもよく、第一液及び第二液とは異なる第三液に含まれ

ていてもよい。組成物セットを構成する液全量を基準としたこれらの成分の含有量は、上述した組成物の全量を基準としたこれらの成分の含有量の範囲と同様であってよい。

[0104] ［シート］

一実施形態に係るシートは、上述した組成物の硬化物、又は、組成物セットの混合物の硬化物を含む。

[0105] 本実施形態のシートは、例えば、上述の組成物又は組成物セットにおいて、重合性成分の重合を進行させ、硬化させることで得られる。

[0106] シートの厚みは、特に制限されず、例えば、２００μｍ以上であってよく、２０００μｍ以下であってよい。

実施例

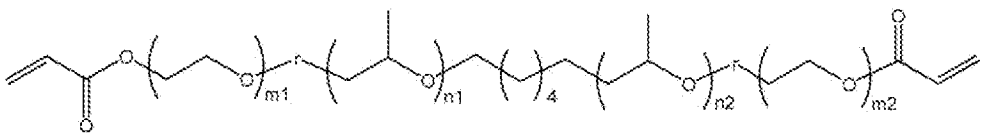
[0107] 以下、実施例に基づいて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に何ら限定されるものではない。

[0108] 実施例及び比較例では、以下の各成分を用いた。

（式（１）で表される化合物）

Ａ：下記に示す手順で合成された下記式（１－５）で表される化合物（重量平均分子量：１５０００、式（１－５）中のｍ１＋ｍ２が概ね２５２±５、ｎ１＋ｎ２が概ね６３±５の整数（ただし、ｍ１、ｍ２、ｎ１及びｎ２はそれぞれ２以上の整数であり、ｍ１＋ｎ１≧１００、ｍ２＋ｎ２≧１００）である混合物、２５℃における粘度：５０Ｐａ・ｓ）

[化8]



(1-5)

［式（１－５）中、－ｒ－はランダム共重合を表す符号である。］

[0109] （アクリロイル基を二つ有するが、ポリオキシアルキレン鎖を有さない化合物）

ａ：変性エポキシアクリレート（ダイセル・オルネクス（株）製「ＥＢＥＣ

ＲＹＬ　３７０８」）

[0110]（第一の中空粒子）

Ｂ－１：松本油脂製薬（株）製「マツモトマイクロスフェアー（登録商標）　Ｆ－１９０ＳＳＤ」（平均粒子径：１０～１５μｍ、最大体積膨張倍率：５０倍以上、膨張開始温度：１５５～１６５℃、最大膨張温度：２１０～２２０℃）

Ｂ－２：松本油脂製薬（株）製「マツモトマイクロスフェアー（登録商標）　Ｆ－１９０Ｄ」（平均粒子径：３０～４０μｍ、最大体積膨張倍率：５０倍以上、膨張開始温度：１６０～１７０℃、最大膨張温度：２１０～２２０℃）

Ｂ－３：松本油脂製薬（株）製「Ｄ－２１０Ｄ」（平均粒子径：３５～４０μｍ、最大体積膨張倍率：５０倍以上、膨張開始温度：２００～２１０℃、最大膨張温度：２２０～２３０℃）

Ｂ－４：松本油脂製薬（株）製「マツモトマイクロスフェアー（登録商標）　Ｆ－２３０Ｄ」（平均粒子径：２０～３５μｍ、最大体積膨張倍率：５０倍以上、膨張開始温度：１８０～１９０℃、最大膨張温度：２２０～２４０℃）

Ｂ－５：松本油脂製薬（株）製「マツモトマイクロスフェアー（登録商標）　Ｆ－２６０Ｄ」（平均粒子径：２０～３５μｍ、最大体積膨張倍率：５０倍以上、膨張開始温度：１９０～２００℃、最大膨張温度：２５０～２６０℃）

[0111]（第二の中空粒子）

Ｃ－１：日本フィライト（株）製「Ｅｘｐａｎｃｅｌ（登録商標）　９２０ＤＥ８０ｄ３０」（平均粒子径６０～９０μｍ、密度３０±３ｋｇ／ｍ^3、最大体積膨張倍率：５倍未満）

Ｃ－２：ポッターズ・バロティーニ（株）製中空ガラスビーズ「Ｑ－ＣＥＬ（登録商標）５０２０」（粒子径５～１１０μｍ、密度２００ｋｇ／ｍ^3、最大体積膨張倍率：５倍未満）

[0112]（他の重合性化合物）

Ｄ－１：ジシクロペンタニルアクリレート（昭和電工マテリアルズ（株）製「ファンクリル（登録商標）　ＦＡ－５１３Ａ」）

Ｄ－２：４－ヒドロキシブチルアクリレート（大阪有機化学工業（株）製）

[0113]（その他の成分）

Ｅ：重合開始剤（日油（株）製「パーブチル（登録商標）Ｏ」）

Ｆ：フェノール系酸化防止剤（（株）ＡＤＥＫＡ製「アデカスタブ（登録商標）ＡＯ－８０」）

Ｇ：表面調整剤（ＢＹＫ（株）製「ＢＹＫ（登録商標）３５０」）

[0114]［式（１－５）で表される化合物の合成］

撹拌機、温度計、窒素ガス導入管、排出管及び加熱ジャケットから構成された５００ｍＬフラスコを反応器とし、ポリオキシアルキレン鎖を有するグリコール（三洋化成（株）製「ニューポール７５Ｈ－９００００」）２２５ｇ、トルエン３００ｇを反応器に加え、４５℃、撹拌回転数２５０回／分で撹拌し、窒素を１００ｍＬ／分で流し、３０分撹拌した。その後、２５℃に降温し、降温完了後、塩化アクリロイル２．９ｇを反応器に滴下し、３０分撹拌した。その後、トリエチルアミン３．８ｇを滴下し、２時間撹拌した。その後、４５℃に昇温し、２時間反応させた。反応液を濾過し、濾液を脱溶し、式（１－５）で表される化合物を得た。

[0115]［組成物及びシートの作製］

表１に示す配合比で各成分を混合し、組成物を得た。次に、離型処理されたＰＥＴシート（東洋紡（株）製「Ａ３１」）の離型処理面をガラス板上に対して上向きに載せた基板を２枚準備した。一方の基板のＰＥＴシート上に、１０ｃｍ×１５ｃｍ×１．０ｍｍのシリコーンゴム製型枠を設置し、当該型枠の内側に組成物を充填した。さらに、他方の基板のＰＥＴシートの離型処理面を組成物側にして、他方の基板で上蓋をした後に、１３５℃の条件で１５分間加熱して、組成物を硬化させた。これにより、実施例１～１２及び比較例１に係る組成物の硬化物のシート（厚さ１．０ｍｍ）を得た。

[0116] ［熱伝導率の測定］

作製したシートをＰＥＴシートに挟まれた状態で、８ｃｍ×１３ｃｍ×１．０ｍｍに切断し、レファレンスプレートと測定プローブで挟み込み、迅速熱伝導率計（京都電子工業（株）製「ＱＴＭ－７１０」、測定プローブＰＤ－１１Ｎ、薄膜測定モード）にて２５℃の条件で熱伝導率を測定した。レファレンスは、離型処理付ＰＥＴ（東洋紡（株）製「Ａ３１」）を２枚重ねてレファレンスプレートと測定プローブで挟みこみ測定した。

[0117] ［破断伸び率及び引張弾性率の測定］

引っ張り試験機（（株）島津製作所製「Ａｕｔｏｇｒａｐｈ　ＥＺ－ＴＥＳＴ　ＥＺＳ」）を用いて、各硬化物を含むシートの２５℃における破断伸び率及び引張弾性率を測定した。測定においては、０．２ｍｍ（膜厚）×５ｍｍ（幅）×３０ｍｍ（長さ）の形状の硬化物について、チャック間距離２０ｍｍ、引張速度５ｍｍ／分の条件で、ＪＩＳ　Ｋ７１６１に基づき測定した。

[0118] ［粘着力の測定］

作製したシートをスライドガラス板に貼り付け１５分以上静置した後、

［１］室温（２０～２５℃）で非加熱の状態、

［２］２２０℃で１２０秒加熱後室温に冷却した状態、及び

［３］２６０℃で３０秒加熱後、室温に冷却した状態

の３種のサンプルを用意した。これらの各サンプルについて、（株）島津製作所製「ＥＺ　Ｔｅｓｔ　ＥＺ－Ｓ」を用いて、粘着力を測定した（９０°ピール、引張速度：５０ｍｍ／分）。

[0119] 実施例１～１２及び比較例１のシートについて、各物性の測定結果を表１に示す。なお、表１中、粘着力が「≧２００」（Ｎ／ｍ）との表記は、引き剥がそうとするとシートが凝集破壊し、剥離できなかったことを示す。

[0120]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	比較例1
配合比（質量部）	A	44.0	40.3	39.2	38.1	42.7	40.3	39.2	38.1	38.1	38.1	38.1	34.9	-
	a	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	38.1
	B-1	-	8.5	11.0	13.4	-	-	-	-	-	-	-	-	13.4
	B-2	-	-	-	-	3.0	8.5	11.0	13.4	-	-	-	-	-
	B-3	-	-	-	-	-	-	-	-	13.4	-	-	-	-
	B-4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	13.4	-	-	-
	B-5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	13.4	-	-
	C-1	6.5	5.9	5.8	5.6	6.3	5.9	5.8	5.6	5.6	5.6	5.6	-	5.6
	C-2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	25.8	-
	D-1	26.4	24.2	23.5	22.9	25.6	24.2	23.5	22.9	22.9	22.9	22.9	21.0	22.9
	D-2	17.6	16.1	15.7	15.2	17.1	16.1	15.7	15.2	15.2	15.2	15.2	14.0	15.2
	E	1.1	1.0	0.9	0.9	1.0	1.0	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8	0.9
	F	3.5	3.2	3.1	3.0	3.4	3.2	3.1	3.0	3.0	3.0	3.0	2.8	3.0
	G	0.9	0.8	0.8	0.8	0.9	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.7	0.8
第一の中空粒子の配合量（体積%）		-	2.9	3.8	4.8	1.0	2.9	3.8	4.8	4.8	4.8	4.8	-	4.8
第二の中空粒子の配合量（体積%）		70.0	67.9	67.3	66.6	69.3	67.9	67.3	66.6	66.6	66.6	66.6	63.4	66.6
粒子の総配合量（体積%）		70.0	70.8	71.1	71.4	70.3	70.8	71.1	71.4	71.4	71.4	71.4	63.4	71.4
熱伝導率（mW/（m・K））		66	66	66	66	62	64	65	63	66	63	66	147	-
破断伸び率（%）		36.2	20.8	17.5	25.5	19.4	20.0	14.5	28.6	23.3	24.5	21.5	77.0	4.3
引張弾性率（MPa）		1.6	1.4	1.8	1.9	2.4	2.3	1.8	1.7	1.9	2.4	1.0	0.8	5.2
粘着力（N/m）	室温	30	30	29	33	30	29	26	26	31	30	30	22	-
	220℃ 120秒	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	≧200	76	-
	260℃ 30秒	≧200	64	12	7	31	22	0	3	70	96	96	66	-

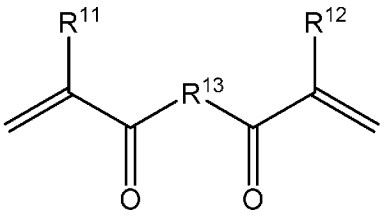
[0121] 以上のとおり、実施例１～１２のシートは、低弾性で伸びに優れていた。また、実施例２～１１のシートは、［２］２２０℃で１２０秒加熱後、室温に冷却した状態での粘着力が大きいことから、リフロー工程中は好適に装置に付着できると共に、［３］２６０℃で３０秒加熱後、室温に冷却した状態での粘着力が小さいことから、リフロー工程後は容易に除去できることが分かった。

請求の範囲

[請求項1] 下記式（１）で表される化合物と、

中空粒子と、を含有する、組成物。

[化1]



(1)

［式（１）中、Ｒ１１及びＲ１２はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を表し、Ｒ１３はポリオキシアルキレン鎖を有する２価の基を表す。］

[請求項2] 前記ポリオキシアルキレン鎖がオキシエチレン基を含む、請求項１に記載の組成物。

[請求項3] 前記ポリオキシアルキレン鎖がオキシプロピレン基を含む、請求項１に記載の組成物。

[請求項4] 前記ポリオキシアルキレン鎖が、オキシエチレン基及びオキシプロピレン基を含む共重合鎖である、請求項１に記載の組成物。

[請求項5] 前記共重合鎖がランダム共重合鎖である、請求項４に記載の組成物。

[請求項6] 前記中空粒子が、

熱膨張性の中空粒子である第一の中空粒子と、

前記第一の中空粒子以外の中空粒子である第二の中空粒子と、

を含む、請求項１～５のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項7] 請求項１～６のいずれか一項に記載の組成物の硬化物を含む、シート。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/047033

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F 299/02(2006.01)i; ***C08G 65/332***(2006.01)i; ***C08J 9/32***(2006.01)i; ***F16L 59/02***(2006.01)i
FI: C08F299/02; F16L59/02; C08G65/332; C08J9/32 CEZ

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08F299/02; C08G65/332; C08J9/32; F16L59/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2017-125178 A (DENKA CO LTD) 20 July 2017 (2017-07-20) claims, paragraphs [0013], [0023]-[0026], [0040]-[0041], [0057]-[0058], examples	1-5, 7
X	JP 2008-202187 A (TORAY IND INC) 04 September 2008 (2008-09-04) claims, paragraphs [0015]-[0019], examples	1-6
X	WO 2016/076209 A1 (THREE BOND CO LTD) 19 May 2016 (2016-05-19) paragraphs [0087]-[0090], [0098]-[0099], table 2	1-2, 7
A	WO 2013/039226 A1 (DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) 21 March 2013 (2013-03-21) entire text	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
09 February 2022	**08 March 2022**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/047033

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2017-125178 A	20 July 2017	(Family: none)	
JP 2008-202187 A	04 September 2008	(Family: none)	
WO 2016/076209 A1	19 May 2016	(Family: none)	
WO 2013/039226 A1	21 March 2013	US 2015/0044490 A1 entire text CN 103797082 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/047033

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F 299/02(2006.01)i; C08G 65/332(2006.01)i; C08J 9/32(2006.01)i; F16L 59/02(2006.01)i
FI: C08F299/02; F16L59/02; C08G65/332; C08J9/32 CEZ

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F299/02; C08G65/332; C08J9/32; F16L59/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2017-125178 A (デンカ株式会社) 20.07.2017 (2017-07-20) 特許請求の範囲，段落[0013]，[0023]-[0026]，[0040]-[0041]，[0057]-[0058]，[実施例]	1-5,7
X	JP 2008-202187 A (東レ株式会社) 04.09.2008 (2008-09-04) 特許請求の範囲，段落[0015]-[0019]，[実施例]	1-6
X	WO 2016/076209 A1 (株式会社スリーボンド) 19.05.2016 (2016-05-19) 段落[0087]-[0090]，[0098]-[0099]，[表2]	1-2,7
A	WO 2013/039226 A1 (電気化学工業株式会社) 21.03.2013 (2013-03-21) 全文	1-7

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
"E" 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L" 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P" 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
"T" 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
"X" 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
"Y" 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
"&" 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
09.02.2022	08.03.2022

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
飛彈　浩一　4J 5815
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2021/047033

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2017-125178 A	20.07.2017	（ファミリーなし）	
JP 2008-202187 A	04.09.2008	（ファミリーなし）	
WO 2016/076209 A1	19.05.2016	（ファミリーなし）	
WO 2013/039226 A1	21.03.2013	US 2015/0044490 A1 全文 CN 103797082 A	