(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9月29日(29.09.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/201513 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 18/08 (2006.01) *C08K 7/18* (2006.01)
C08G 18/44 (2006.01) *C08L 75/04* (2006.01)
C08J 5/18 (2006.01) *C09K 5/14* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/012940

(22) 国際出願日： 2021年3月26日(26.03.2021)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(71) 出願人:三菱電機株式会社(**MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008310 東京都千代田区丸の内二丁目７番３号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 中谷 浩司 (**NAKATANI, Koji**); 〒1008310 東京都千代田区丸の内二丁目７番３号 三菱電機株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人:特許業務法人深見特許事務所(**FUKAMI PATENT OFFICE, P.C.**); 〒5300005 大阪府大阪市北区中之島三丁目２番４号 中之島フェスティバルタワー・ウエスト Osaka (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, 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)）

(54) Title: THERMALLY CONDUCTIVE RESIN COMPOSITION, CURED OBJECT OBTAINED THEREFROM, AND THERMALLY CONDUCTIVE SHEET AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(54) 発明の名称： 熱伝導性樹脂組成物及びその硬化物、並びに、熱伝導性シート及びその製造方法

(57) Abstract: A thermally conductive resin composition which comprises a polycarbonate polyol compound (A), a polyisocyanate compound (B), and a spherical alumina filler (C) and which may further contain a plasticizer (D). The polycarbonate polyol compound (A) has a hydroxyl equivalent of 200-800 g/eq. The equivalent ratio of isocyanate groups contained in the polyisocyanate compound (B) to hydroxyl groups contained in the polycarbonate polyol compound (A), (isocyanate groups)/(hydroxyl groups), is 0.26-0.40. The content of the spherical alumina filler (C) and the content of the plasticizer (D) are 400-900 parts by mass and 30 parts by mass or less, respectively, per 100 parts by mass of the sum of the polycarbonate polyol compound (A), the polyisocyanate compound (B), and the plasticizer (D).

(57) 要約：熱伝導性樹脂組成物は、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び、球状アルミナフィラー（Ｃ）を含み、可塑剤（Ｄ）を含んでいてもよい。ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、２００ｇ／ｅｑ以上８００ｇ／ｅｑ以下である。ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）中の水酸基に対するポリイソシアネート化合物（Ｂ）中のイソシアネート基の当量比（イソシアネート基／水酸基）は、０．２６以上０．４０以下である。ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、球状アルミナフィラー（Ｃ）の含有量は、４００質量部以上９００質量部以下であり、可塑剤（Ｄ）の含有量は、３０質量部以下である。

WO 2022/201513 A1

明　細　書

発明の名称 ：

熱伝導性樹脂組成物及びその硬化物、並びに、熱伝導性シート及びその製造方法

技術分野

[0001]　本開示は、熱伝導性樹脂組成物及びその硬化物、並びに、熱伝導性シート及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002]　電子製品、電気製品、及びこれらに含まれる部品は、使用時に発生する熱によって特性が劣化したり、破損が生じたりするおそれがある。そのため、これらの製品の発熱部材から冷却部材への熱移動を促進するために、発熱部材と冷却部材との間に熱伝導性シートを介在させることが知られている。熱伝導性シートには、発熱部材及び冷却部材への密着性を高めて熱抵抗（接触抵抗）を低減する等のために、柔軟性が要求されることがある（例えば、特許文献１（特許第６７３２１４５号公報））。

[0003]　特許文献２（特許第５９８９２１９号公報）には、放熱性及び柔軟性等に優れる封止材を、発熱を伴う電気電子部品に用いることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第６７３２１４５号公報

特許文献2：特許第５９８９２１９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005]　特許文献１に記載の熱伝導性シート及び特許文献２に記載の封止材にはフィラーが含まれている。フィラーは、電気絶縁性及び熱伝導性の向上を目的として用いられることがある。熱伝導性を向上するために、熱伝導性シート

及び封止材においてフィラーの含有量を増やすと、熱伝導性シート及び封止材の硬度が大きくなり、柔軟性が低下することがあった。また、熱伝導性シート及び封止材には、高温条件下での使用にも耐え得る優れた耐熱性も求められている。

[0006] 本開示の目的は、柔軟性に優れながらも熱伝導性に優れ、耐熱性にも優れる硬化物及びそれを含む熱伝導性シートを得ることができる熱伝導性樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本開示の熱伝導性樹脂組成物は、水酸基当量が２００ｇ／ｅｑ以上８００ｇ／ｅｑ以下のポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び、球状アルミナフィラー（Ｃ）を含み、可塑剤（Ｄ）を含んでいてもよいものである。

[0008] 本開示の熱伝導性樹脂組成物において、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）中の水酸基に対するポリイソシアネート化合物（Ｂ）中のイソシアネート基の当量比（イソシアネート基／水酸基）は、０．２６以上０．４０以下である。本開示の熱伝導性樹脂組成物において、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、球状アルミナフィラー（Ｃ）の含有量は、４００質量部以上９００質量部以下であり、可塑剤（Ｄ）の含有量は、３０質量部以下である。

発明の効果

[0009] 本開示の熱伝導性樹脂組成物によれば、柔軟性に優れながらも優れた熱伝導性を有し、耐熱性にも優れる硬化物及びそれを含む熱伝導性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

[0010] 実施の形態１．

（熱伝導性樹脂組成物）

本実施の形態の熱伝導性樹脂組成物（以下、「本組成物」ということがあ

る。）は、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び、球状アルミナフィラー（Ｃ）を含み、可塑剤（Ｄ）を含んでいてもよい。本組成物は、さらに、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、球状アルミナフィラー（Ｃ）、及び可塑剤（Ｄ）以外のその他の成分を１種以上含んでいてもよい。

[0011] （ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ））

本組成物は、ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）（以下、「ポリオール化合物（Ａ）」ということがある。）を含む。ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、２００ｇ／ｅｑ以上８００ｇ／ｅｑ以下である。本組成物に含まれるポリオール化合物（Ａ）は、１種であってもよく、２種以上であってもよい。

[0012] ポリオール化合物（Ａ）は、１分子中に水酸基を２以上有し、分子中にポリカーボネート構造を有する化合物である。

[0013] ポリオール化合物（Ａ）に含まれる水酸基は、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）に含まれるイソシアネート基と反応することにより、ウレタン結合を形成する。これにより、本組成物の硬化物に架橋構造を導入することができるため、本組成物を用いて得られる硬化物は、優れた電気絶縁性、及び優れた耐熱性を有することができる。

[0014] ポリオール化合物（Ａ）に含まれる水酸基の数は、１分子あたり２以上であれば特に限定されないが、２であることが好ましい。ポリオール化合物（Ａ）に含まれる１分子あたりの水酸基の数が多くなると、本組成物の硬化物の架橋密度が大きくなりやすく、硬化物の硬度が大きくなって硬化物の柔軟性が低下する傾向にある。ポリオール化合物（Ａ）に含まれる１分子あたりの水酸基の数が少なくなると、水酸基とイソシアネート基との架橋反応が進行しにくくなり、本組成物を十分に硬化させにくくなる傾向にある。本明細書における硬度は、Ａｓｋｅｒ　Ｃ硬度をいう。

[0015] ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、２００ｇ／ｅｑ以上であり、３００ｇ／ｅｑ以上であることが好ましく、３５０ｇ／ｅｑ以上であってもよ

く、また、８００ｇ／ｅｑ以下であり、７００ｇ／ｅｑ以下であることが好ましく、６５０ｇ／ｅｑ以下であってもよい。ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量が小さくなると、本組成物の硬化物の架橋密度が大きくなりやすく、硬化物の硬度が大きくなって硬化物の柔軟性が低下する傾向にある。ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量が大きくなると、水酸基とイソシアネート基との架橋反応が進行しにくくなり、本組成物を十分に硬化させにくくなる傾向にある。ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、後述する実施例に記載の方法によって測定することができる。

[0016] ポリオール化合物（Ａ）に含まれるポリカーボネート構造は、カーボネート結合を介して結合したポリマー鎖を有する構造である。ポリカーボネート構造は、ポリオール化合物（Ａ）に含まれるポリカーボネート構造は、ポリオール化合物（Ａ）の主鎖構造に含まれることが好ましく、主鎖構造がポリカーボネート構造であることがより好ましい。ポリオール化合物（Ａ）が分子中にポリカーボネート構造を有することにより、本組成物を用いて得られる硬化物に優れた耐熱性を付与することができる。

[0017] ポリオール化合物（Ａ）は公知の化合物を用いることができ、例えば、１分子中に水酸基を２以上有する化合物と、炭酸エステル及びホスゲンのうちの少なくとも１つとの反応物を用いることができる。１分子中に水酸基を２以上有する化合物としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，３－プロパンジオール、２－メチル－１，３－プロパンジオール、２－エチル－２－ブチル－１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，３－ブタンジオール、１，２－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，７－ヘプタンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，８－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，１２－ドデカンジオール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、１，３－シクロヘキサンジメタノール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリメチロールエタン、グリセリン

等が挙げられる。炭酸エステルとしては、例えば、炭酸ジメチル、炭酸ジエチル、炭酸ジプロピル、炭酸ジイソプロピル、炭酸ジブチル、炭酸エチルブチル、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、炭酸ジフェニル、炭酸ジベンジル等が挙げられる。

[0018] 本組成物中のポリオール化合物（Ａ）の含有量は、本組成物に含まれるポリオール化合物（Ａ）及びポリイソシアネート化合物（Ｂ）の種類等によって調整することができる。本組成物中のポリオール化合物（Ａ）の含有量は、例えば、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、４０質量部以上とすることができ、５０質量部以上であってもよく、６０質量部以上であってもよく、また、９０質量部以下であってもよく、８０質量部以下であってもよく、７０質量部以下であってもよい。

[0019] （ポリイソシアネート化合物（Ｂ））

本組成物は、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）を含む。ポリイソシアネート化合物（Ｂ）は、１分子中にイソシアネート基を２以上有する化合物である。本組成物に含まれるポリイソシアネート化合物（Ｂ）は、１種であってもよく、２種以上であってもよい。

[0020] 上記したように、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）に含まれるイソシアネート基は、ポリオール化合物（Ａ）に含まれる水酸基と反応することにより、ウレタン結合を形成する。これにより、本組成物の硬化物に架橋構造を導入することができるため、硬化物は、優れた電気絶縁性、及び優れた耐熱性を有することができる。

[0021] ポリイソシアネート化合物（Ｂ）に含まれるイソシアネート基の数は、１分子あたり２以上であれば特に限定されないが、３であることが好ましい。ポリイソシアネート化合物（Ｂ）に含まれる１分子あたりのイソシアネート基の数が多くなると、本組成物の硬化物の架橋密度が大きくなりやすいため、硬化物の硬度が大きくなって硬化物の柔軟性が低下する傾向にある。ポリイソシアネート化合物（Ｂ）に含まれる１分子あたりのイソシアネート基の

数が少なくなると、水酸基とイソシアネート基との架橋反応が進行しにくくなり、本組成物を十分に硬化させにくくなる傾向にある。

[0022] ポリイソシアネート化合物（Ｂ）は公知の化合物を用いることができ、例えば、脂肪族ポリイソシアネート化合物、脂環式ポリイソシアネート化合物、芳香族ポリイソシアネート化合物、イソシアヌレート型ポリイソシアネート化合物等が挙げられる。ポリイソシアネート化合物（Ｂ）は、イソシアヌレート型ポリイソシアネート化合物であることが好ましい。

[0023] ポリイソシアネート化合物（Ｂ）のイソシアネート基当量は、例えば、５２ｇ／ｅｑ以上であってもよく、８０ｇ／ｅｑ以上であってもよく、１００ｇ／ｅｑ以上であってもよく、１２０ｇ／ｅｑ以上であってもよく、また、３２０ｇ／ｅｑ以下であってもよく、２５０ｇ／ｅｑ以下であってもよく、２００ｇ／ｅｑ以下であってもよい。ポリイソシアネート化合物（Ｂ）のイソシアネート基当量は、後述する実施例に記載の方法によって測定することができる。

[0024] 本組成物中のポリイソシアネート化合物（Ｂ）の含有量は、本組成物に含まれるポリオール化合物（Ａ）及びポリイソシアネート化合物（Ｂ）の種類等によって調整することができる。本組成物中のポリオール化合物（Ａ）の含有量は、例えば、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、１質量部以上とすることができ、３質量部以上であってもよく、５質量部以上であってもよく、また、２５質量部以下であってもよく、２０質量部以下であってもよく、１５質量部以下であってもよい。

[0025] （ポリオール化合物（Ａ）及びポリイソシアネート化合物（Ｂ）の含有量）

本組成物におけるポリオール化合物（Ａ）及びポリイソシアネート化合物（Ｂ）の含有量は、ポリオール化合物（Ａ）中の水酸基に対するポリイソシアネート化合物（Ｂ）中のイソシアネート基の当量比（イソシアネート基／水酸基）が、０．２６以上０．４０以下となるように調整される。

[0026] 上記当量比は、０．３０以上であってもよく、また、０．３５以下であってもよい。上記当量比を上記の範囲に調整することにより、本組成物を用いて得られる硬化物の柔軟性を向上することができる。また、熱伝導性を向上させるために、本組成物における球状アルミナフィラー（Ｃ）の含有量を増やした場合にも、硬化物の硬度が大きくなることを抑制し、柔軟性に優れる硬化物を得ることができる。一方、上記当量比が大きくなると、硬化物の硬度が大きくなって硬化物の柔軟性が低下する傾向にあり、上記当量比が小さくなると、本組成物を十分に硬化させにくくなる傾向にある。

[0027] （球状アルミナフィラー（Ｃ））

本組成物は、球状アルミナフィラー（Ｃ）（以下、「フィラー（Ｃ）」ということがある。）を含む。本組成物中のフィラー（Ｃ）の含有量は、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、４００質量部以上９００質量部以下である。

[0028] フィラー（Ｃ）はアルミナ（酸化アルミニウム）で構成されているため、電気絶縁性を有し、優れた熱伝導性を有する。そのため、フィラー（Ｃ）を含有する本組成物を用いて得られる硬化物は、優れた熱伝導性、及び優れた電気絶縁性を有することができる。

[0029] フィラー（Ｃ）は球状である。本明細書における球状は、平均球形度が０．８０以上であることをいう。平均球形度は、好ましくは０．８２以上、より好ましくは０．８５以上である。平均球形度は、次の顕微鏡法により測定することができる。すなわち、電子顕微鏡等にて撮影した粒子像を画像解析装置に取り込み、取り込んだ粒子像の中の１つの粒子について投影面積（ａ）及び周囲長を測定する。測定した周囲長と同一の周囲長をもつ真円の面積を（ｂ）とし、当該粒子の球形度をａ／ｂとして決定する。取り込んだ粒子像に含まれる粒子のうち、投影面積の周囲長と同一の周囲長をもつ真円の径が１μｍ以上３００μｍ以下の範囲にある任意の粒子２００個について、上記の手順で粒径度を求め、その相加平均値を平均球形度とする。

[0030] フィラー（Ｃ）が球形であることにより、不定形（非球状）のアルミナフ

ィラーに比較して表面積を低減することができる。そのため、本組成物においてフィラー（Ｃ）と、ポリオール化合物（Ａ）及びポリイソシアネート化合物（Ｂ）等の樹脂との接触面積を低減することができるため、本組成物の粘度が上昇することを抑制することができる。これにより、本組成物をシート状等に成形した場合等に、外観が良好な成形物を得ることができる。一方、不定形（非球状）のアルミナフィラーを用いた場合には、組成物の粘度が上昇しやすいため、成形物にクラックが発生する等により外観不良を引き起こすことがある。

[0031] フィラー（Ｃ）の平均粒子径は特に限定されない。本組成物は、平均粒子径の異なる２種以上のフィラー（Ｃ）を含んでいてもよい。フィラー（Ｃ）の平均粒子径は、例えば３μｍ以上であり、５μｍ以上であってもよく、４０μｍ以上であってもよく、５０μｍ以上であってもよく、６０μｍ以上であってもよく、また、１００μｍ以下であってもよく、８０μｍ以下であってもよく、２０μｍ以下であってもよく、１０μｍ以下であってもよい。

[0032] 本組成物が平均粒子径の異なる２種のフィラー（Ｃ）を含む場合、相対的に平均粒子径の大きいフィラー（Ｃ）の平均粒子径は、例えば４０μｍ以上であってもよく、５０μｍ以上であってもよく、６０μｍ以上であってもよく、また、１００μｍ以下であってもよく、８０μｍ以下であってもよい。相対的に平均粒子径の小さいフィラー（Ｃ）の平均粒子径は、例えば３μｍ以上であり、５μｍ以上であってもよく、また、２０μｍ以下であってもよく、１０μｍ以下であってもよい。フィラー（Ｃ）の平均粒子径は、後述する実施例に記載の方法によって測定することができる。

[0033] 本組成物中のフィラー（Ｃ）の含有量は、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、４００質量部以上であり、４３０質量部以上であってもよく、また、９００質量部以下であり、７５０質量部以下であってもよく、６５０質量部以下であることが好ましい。フィラー（Ｃ）の含有量が上記の範囲であることにより、本組成物を用いて得られる硬化物は、優れた熱伝導性、及び優れた

電気絶縁性を有することができる。フィラー（Ｃ）の含有量が小さくなると、硬化物の熱伝導性が低下する傾向にある。フィラー（Ｃ）の含有量が大きくなると、本組成物中にフィラー（Ｃ）が均一に分散しにくくなったり、均一に分散した場合であっても硬化物の硬度が大きくなって硬化物の柔軟性が低下したりする傾向にある。あるいは、シート状に成形した硬化物に全てのフィラー（Ｃ）を充填することが困難となる傾向にある。

[0034] フィラー（Ｃ）は、表面処理が施されたものであってもよい。表面処理としては、チタネートカップリング剤；シランカップリング剤；界面活性剤；オレイン酸、ステアリン酸等の有機酸等を用いて、球状のアルミナ粒子の表面を修飾する処理が挙げられる。フィラー（Ｃ）に表面処理を行うことにより、本組成物の硬化物中でのフィラー（Ｃ）の分散性を向上することができる。これにより、硬化物の引張強度及び引裂き強度等の機械的特性を向上し、熱伝導性を向上することができる。表面処理が施されたフィラー（Ｃ）は、本組成物を用いて得られる硬化物への充填性が良好であるため、硬化物の熱伝導性をさらに向上することができる。

[0035] フィラー（Ｃ）は、例えば、水酸化アルミニウム粉末の火炎溶射法、バイヤー法、アンモニウムミョウバン熱分解法、有機アルミニウム加水分解法、アルミニウム水中放電法、凍結乾燥法等によって得られたものを用いることができる。

[0036] （可塑剤（Ｄ））

本組成物は、可塑剤（Ｄ）を含んでいてもよく、含んでいなくてもよいが、可塑剤（Ｄ）を含むことが好ましい。本組成物に含まれる可塑剤（Ｄ）は、１種であってもよく、２種以上であってもよい。本組成物が可塑剤（Ｄ）を含むことにより、硬度が小さい、柔軟性に優れた硬化物が得られやすくなる。

[0037] 本組成物が可塑剤（Ｄ）を含む場合、本組成物中の可塑剤（Ｄ）の含有量は、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、３０質量部以下であり、２５質量部

以下であってもよく、また、０質量部超であってもよく、１０質量部以上であってもよく、２０質量部以上であってもよい。本組成物に含まれる可塑剤（Ｄ）の含有量が大きくなると、ポリオール化合物（Ａ）とポリイソシアネート化合物（Ｂ）との反応性が低下し、本組成物を硬化させにくくなる傾向にある。

[0038] 可塑剤（Ｄ）は公知の材料を用いることができるが、芳香族カルボン酸エステルであることが好ましい。芳香族カルボン酸エステルとしては、例えば、安息香酸エステル系可塑剤、フタル酸系可塑剤、トリメリット酸系可塑剤等が挙げられ、安息香酸エステル系可塑剤であることが好ましい。

[0039] （その他の成分）

本組成物は、ポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、フィラー（Ｃ）、及び可塑剤（Ｄ）以外のその他の成分を含んでいてもよい。その他の成分としては、硬化促進剤、難燃剤、難燃助剤、着色剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、熱安定剤、結晶促進剤、分散剤、表面調整剤、消泡剤、密着性付与剤、有機溶剤等の溶剤等が挙げられる。本組成物は、その他の成分を１種又は２種以上を含むことができる。

[0040] （熱伝導性樹脂組成物の製造方法）

本組成物は、例えば、ポリオール化合物（Ａ）、フィラー（Ｃ）、及び、必要に応じてその他の成分を混合し水分を除去した後、これにポリイソシアネート化合物（Ｂ）を混合することによって製造することができる。これらの成分を混合する混合装置は特に限定されず、ミキシングロール、ニーダー、バンバリーミキサ、プラネタリーミキサ等の混練機；真空脱泡撹拌機等を用いることができる。上記成分の混合時に気泡が混入すると、本組成物の硬化物の引張強度及び引裂き強度等の機械的特性が低下し、熱伝導性が低下するおそれがある。そのため、混合装置としては、気泡の混入を抑制できるプラネタリーミキサ又は真空撹拌機を用いることが好ましく、自公転式真空撹拌機を用いる、又は、真空条件下においてプラネタリーミキサを使用することがより好ましい。

[0041] 実施の形態２．

（硬化物）

本実施の形態の硬化物は、実施の形態１において説明した本組成物を硬化してなるものである。本組成物の硬化は種々の方法で行うことができ、例えば、本組成物を加熱することにより熱重合させる方法、本組成物を室温で重合させる方法等が挙げられる。本組成物は、低温で硬化することができるため、本組成物を用いて得られる硬化物を得る際の環境負荷を低減することができる。

[0042] 本組成物の熱重合により硬化物を得る場合、加熱温度は、例えば７０℃以上であり１００℃以下であり、７０℃以上９０℃以下であってもよい。この場合、加熱時間は、例えば０．０５時間以上７２時間以下であり、０．１時間以上１０時間以下であってもよい。本組成物を室温で重合させる場合、室温の温度は１５℃以上４０℃以下とすることができ、室温で硬化させる時間は１２時間以上７２時間以下であることが好ましい。本組成物の硬化処理は、大気雰囲気中で行ってもよく、窒素雰囲気中、アルゴン雰囲気中、又は真空条件下で行ってもよい。

[0043] 硬化物の形状は特に限定されない。硬化物は、例えばフィルム状、シート状、板状、円柱状、角柱状等のように成形されたものであってもよく、本組成物を所望の位置に塗布する等のように成形していない不定形状を有するものであってもよい。

[0044] 硬化物は、本組成物を含むため、柔軟性を向上しながらも優れた熱伝導性を有し、耐熱性にも優れる。そのため、硬化物は、電子製品及び電気製品に用いることができ、例えば、これらの製品に含まれる、発熱部材とヒートシンカー等の冷却部材との間の熱移動を促進するための熱伝導性シート及び放熱スペーサ；電子製品及び電気製品の封止部等に用いることができる。

[0045] 実施の形態３．

（熱伝導性シート）

本実施の形態の熱伝導性シートは、実施の形態２において説明した硬化物

を含むものであり、当該硬化物のみから構成されるものであってもよい。熱伝導性シートは、例えば、実施の形態１において説明した本組成物をシート状に成形して硬化させることによって得ることができる。

[0046] 熱伝導性シートは、本組成物の硬化物を含むため、優れた柔軟性及び熱伝導性を有し、耐熱性にも優れる。特に、本組成物は、熱伝導性を向上するために比較的多くのフィラー（Ｃ）を含有するが、上記したように、フィラー（Ｃ）が球状アルミナフィラーであり、当量比（イソシアネート基／水酸基）が所定の範囲に調整されているため、熱伝導性シートの硬度が大きくなることを抑制することができる。熱伝導性シートの硬度が小さいほど、熱伝導性シートは良好な柔軟性を有し、また、圧縮応力を低減することができる。そのため、熱伝導性シートは、熱伝導性シートが取付けられる発熱部材及び冷却部材等の被取付部材の表面の凹凸に追従して変形することができるため、被取付部材に密着することができる。これにより、熱伝導性シートと被取付部材との間に空気が噛み込まれて熱伝導性が低下し、熱抵抗が増加することを抑制することができるため、熱伝導性シートと被取付部材との間での熱移動を促進することができる。また、被取付部材の間に熱伝導性シートを挟み込む場合、熱伝導性シートを圧縮しやすくなるため、熱伝導性シートを取付けた被取付部材の周辺にある基板等の周辺部材が反ったり歪んだりする等の不具合の発生を抑制することができる。

[0047] 熱伝導性シートのＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度は、４０以下であることが好ましく、４０未満であってもよく、３５以下であってもよく、３０以下であってもよく、また、１以上であってもよく、５以上であってもよく、１０以上であってもよい。Ａｓｋｅｒ　Ｃ硬度が上記の範囲である熱伝導性シートは良好な柔軟性を有し、また、熱伝導性シートを圧縮したときの圧縮応力が小さい。これにより、熱伝導性シートを被取付部材に密着させやすくなるため、熱抵抗を低減することができる。一方、熱伝導性シートのＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度が大きくなると、熱伝導性シートを圧縮させるために大きな圧縮応力を要するため、被取付部材に熱伝導性シートを取付ける際に圧縮しにくくなる。こ

れにより、上記周辺部材への反力が大きくなり、周辺部材に上記した不具合が生じやすくなるため、熱伝導性シートの取扱い性が低下する。Ａｓｋｅｒ　Ｃ硬度は、後述する実施例に記載の方法によって測定することができる。

[0048] 熱伝導性シートの熱伝導率は、２．０Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であることが好ましく、２．１Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であってもよく、２．２Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であってもよく、通常６．０Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である。熱伝導率が上記の範囲である熱伝導性シートは、優れた熱伝導性能を有するため、被取付部材に取付けたときに良好な熱伝導性を発揮することができる。特に、熱伝導性シートが上記した範囲のＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度を有する場合には、被取付部材への密着性を向上することもできるため、熱伝導性シートを被取付部材に取付けた場合の熱伝導性をより一層向上することができる。熱伝導率は、後述する実施例に記載の方法によって測定することができる。

[0049] 熱伝導性シートの厚みは特に限定されない。熱伝導性シートの厚みは、好ましくは０．１ｍｍ以上であり、より好ましくは０．３ｍｍ以上であり、また、好ましくは１０ｍｍ以下であり、より好ましくは５ｍｍ以下である。熱伝導性シートの厚みが小さくなると、熱伝導性シートの取扱性が低下することがあり、熱伝導性シートの厚みが大きくなると、熱抵抗が大きくなって熱伝導性が低下する傾向にある。

[0050] 実施の形態４．

（熱伝導性シートの製造方法）

本実施の形態の熱伝導性シートの製造方法は、実施の形態１において説明した本組成物をシート状に成形したシート状成形物を得る工程と、シート状成形物を加熱により硬化させる工程と、を含む。熱伝導性シートの製造方法は、上記硬化させる工程よりも後に必要に応じて、硬化させたシート状成形物を養生させる工程、及び、熱伝導性シートの形状及びサイズのうちの少なくとも一方を調整するために、硬化させたシート状成形物から熱伝導性シートを切出す工程等を含んでいてもよい。本実施の形態の熱伝導性シートの製造方法によれば、実施の形態３において説明した熱伝導性シートを好適に製

造することができる。

[0051] 上記シート状成形物を得る工程は、本組成物をシート状に成形することができる方法によって行うことができ、その方法は特に限定されない。本組成物をシート状に成形する方法としては、例えば、プレス成形法；ロール成形法；バーコーター成形法；押出成形法等が挙げられるが、バーコーター成形法又はロール成形法が好ましく、生産効率性の観点からはロール成形法がより好ましい。

[0052] シート状成形物を得る工程では、離型紙又は離型フィルムによってその表面が保護された状態で、本組成物をシート状に成形することが好ましい。シート状成形物を得る工程では、片面又は両面に離型紙又は離型フィルムが積層された状態のシート状成形物を得ることが好ましい。

[0053] 上記硬化させる工程は、シート状成形物を加熱することにより熱重合させる方法、本組成物を室温で重合させる方法等が挙げられる。硬化させる工程を熱重合法によって行う場合、加熱温度は、例えば７０℃以上１００℃以下とすることができ、７０℃以上９０℃以下とすることが好ましく、加熱時間は、例えば０．０５時間以上７２時間以上とすることができ、０．１時間以上１０時間以下とすることが好ましい。硬化させる工程を室温で行う場合、室温の温度は１５℃以上４０℃以下とすることができ、室温で硬化させる時間は１２時間以上７２時間以下であることが好ましい。上記硬化させる工程は、大気雰囲気中で行ってもよく、窒素雰囲気中、アルゴン雰囲気中、又は真空条件下で行ってもよい。本組成物は低温で硬化することができるため、本組成物を用いて熱伝導性シートを製造する際の環境負荷を低減することができる。

[0054] 上記養生させる工程において、養生温度は例えば６０℃以上９０℃以下であり、養生時間は例えば０．５時間以上７２時間以下である。養生させる工程は、大気雰囲気中で行ってもよく、窒素雰囲気中、アルゴン雰囲気中、又は真空条件下で行ってもよい。

[0055] 上記熱伝導性シートを切出す工程は、例えば、硬化させた又は養生させた

シート状成形物を、打抜き型を用いたプレス等によって打抜く方法；カッター、超音波カッター、又はレーザー加工等によって裁断する方法等が挙げられる。熱伝導性シートを切出す工程は、養生させる工程の前に行ってもよく、後に行ってもよい。

実施例

[0056] 以下、実施例及び比較例等により、本開示をさらに詳しく説明するが、本開示はこれらの例に限定されるものではない。

〔実施例１～７、比較例１～１４〕

（樹脂組成物の調製）

表１～表３の配合のとおり、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）を除く各材料を秤量、混合し、自公転式真空撹拌機（Ｖ－ｍｉｎｉ３００、株式会社ＥＭＥ製）を用いて混練し、温度１１０℃の真空乾燥機中で１時間以上乾燥した。真空乾燥機から混練物を取り出し、混練物とポリイソシアネート化合物（Ｂ）とを、自公転式真空撹拌機を用いて混練し、樹脂組成物を得た。表１～表３に示す各材料は、次のとおりである。

[0057] ＜ポリオール化合物＞

・ポリオール化合物（Ａ１）：

パンデックスＧＣＢ－７１（ＤＩＣ株式会社製）。水酸基を有するポリカーボネートポリオール化合物であり、水酸基当量は３８８である。

・ポリオール化合物（Ａ２）：

パンデックスＧＣＢ－５１（ＤＩＣ株式会社製）。水酸基を有するポリカーボネートポリオール化合物であり、水酸基当量は６４４である。

・ポリオール化合物（ｃＡ１）：

パンデックスＧＣＢ－４１（ＤＩＣ株式会社製）。水酸基を有するテトラハイドロフラン（ＴＨＦ）とネオペンチルグリコール（ＮＰＧ）とを共重合させたポリエーテルポリオール化合物である。

・ポリオール化合物（ｃＡ２）：

Ｐｏｌｙ－ｂｄ（出光興産株式会社製）。水酸基を有するポリブタジエン

ポリオール化合物である。

[0058] ＜イソシアネート化合物＞

・イソシアネート化合物（Ｂ）：

パンデックスＧＣＡ－１２（ＤＩＣ株式会社製）。イソシアヌレート型ポリイソシアネートである。

[0059] ＜フィラー＞

・フィラー（Ｃ１）：

ＤＡＷ－７０（デンカ株式会社製）。平均粒子径が７１μｍの球状アルミナフィラーである。

・フィラー（Ｃ２）：

ＤＡＷ－０５（デンカ株式会社製）。平均粒子径が８．２μｍの球状アルミナフィラーである。

・フィラー（ｃＣ１）：

ＬＳ－２１０Ｂ（日本軽金属株式会社製）。不定形（非球状）のアルミナフィラーである。

・フィラー（ｃＣ２）

ＢＸ１５３Ｔ（日本軽金属株式会社製）。チタネートカップリング剤によって表面処理が施された水酸化アルミニウムフィラーである。

[0060] ＜可塑剤＞

・可塑剤（Ｄ１）：

Ｗ－８３（ＤＩＣ株式会社製）。安息香酸エステル系可塑剤である。

・可塑剤（Ｄ２）：

ＰＢ－３Ａ（ＤＩＣ株式会社製）。安息香酸エステル系可塑剤である。

[0061] （硬化物の作製）

上記で得た樹脂組成物を、容量１００ｍＬのフッ素樹脂製ビーカーに、硬化後の厚みが１０ｍｍとなるように注ぎ込み、温度９０℃で加熱硬化させて硬化物を作製した。

[0062] （熱伝導性シートの作製）

フッ素樹脂シート上に、バーコーターを用いて、硬化後の厚みが２．０ｍｍとなるように上記で得た樹脂組成物を塗布した後、温度９０℃で加熱硬化させて、熱伝導性シートを作製した。

[0063] 実施例及び比較例で用いた材料、並びに、実施例及び比較例で得た樹脂組成物の硬化物及び熱伝導性シートについて、次の手順で評価を行った。

［ポリオール化合物の水酸基当量］

ポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、ＪＩＳ　Ｋ－１５５７－１に準拠して測定した。結果を表１～表３に示す。

[0064] ［当量比］

ポリイソシアネート化合物のイソシアネート当量は、ＪＩＳ　Ｋ１６０３－１に準拠して測定した。上記で測定したポリオール化合物中の水酸基、及び、ポリイソシアネート化合物中のイソシアネート基に基づいて、当量比（イソシアネート基／水酸基）を算出した。結果を表１～表３に示す。

[0065] ［フィラーの平均粒子径］

レーザー回折散乱法による粒度分布測定によってフィラーの粒度分布を測定し、体積累積５０％での粒径をフィラーの平均粒子径とした。

[0066] ［Ａｓｋｅｒ　Ｃ硬度］

Ａｓｋｅｒ　Ｃ硬度計（高分子計器株式会社製）を用い、ＪＩＳ　Ｋ　７３１２に準拠して、上記で作製した硬化物のＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度を測定した。結果を表１～表３に示す。

[0067] ［熱伝導率の測定］

上記で作製した熱伝導性シートから、一辺の長さが２０ｍｍの正方形状に測定サンプルを切出した。ＴＣＭ１００１（レスカ社製）を用いた定常法により、ＪＩＳ　Ｈ　７９０３、ＡＳＴＭ　Ｄ５４７０－１に準拠して、測定サンプルの熱伝導率［Ｗ／（ｍ・Ｋ）］を測定した。

[0068] ［圧縮率の評価］

上記で作製した熱伝導性シートの厚みを測定し、これを圧縮前の厚みとした。この熱伝導性シートに２５０Ｎの荷重を負荷し、このときの熱伝導性シ

ートの厚みを圧縮後の厚みとした。下記式に基づいて、圧縮率を算出した。結果を表１～表３に示す。

圧縮率［％］＝｛（圧縮前の厚み－圧縮後の厚み）／圧縮前の厚み｝×１００

[0069] ［熱伝導性シートの観察］

上記で作製した熱伝導性シートを目視で観察し、クラックの有無を確認した。結果を表１～表３に示す。

[0070] ［耐熱性の評価］

上記で作製した硬化物を温度１５０℃の乾燥機で１２０時間曝露した後、上記した方法にしたがって、曝露後の硬化物のＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度を測定した。下記式に基づいて硬度変化を測定した。結果を表１～表３に示す。

硬度変化＝曝露後のＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度－曝露前のＡｓｋｅｒ　Ｃ硬度

[0071]

[表1]

	実施例						
	1	2	3	4	5	6	7
ポリオール化合物							
(A1) [質量部]	61.6	59.7	57.9	61.6	77.0	−	61.6
(A2) [質量部]	−	−	−	−	−	63.4	−
(cA1) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
(cA2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
水酸基当量 [g/eq]	388	388	388	388	388	644	388
イソシアネート化合物							
(B) [質量部]	8.4	10.3	12.1	8.4	10.4	6.6	8.4
フィラー							
(C1) [質量部]	318.9	329.4	318.9	429.8	318.9	318.9	318.9
(C2) [質量部]	136.7	141.2	136.7	184.2	136.7	136.7	136.7
(cC1) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
(cC2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
可塑剤							
(D1) [質量部]	30.0	30.0	30.0	30.0	−	30.0	−
(D2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	30.0
比（ｲｿｼｱﾈｰﾄ基/水酸基）	0.26	0.33	0.40	0.26	0.26	0.33	0.26
Asker C 硬度	15	20	26	30	30	30	17
熱伝導率 [W/m･K]	2.1	2.1	2.0	2.6	2.1	2.2	2.1
圧縮率 [%]	65	60	54	51	50	50	66
クラックの有無	無	無	無	無	無	無	無
耐熱性（硬度変化）	+12	+14	+15	+14	+2	+15	+15

[0072]

[表2]

	比較例						
	1	2	3	4	5	6	7
ポリオール化合物							
(A1) [質量部]	62.0	55.5	−	−	−	−	57.9
(A2) [質量部]	−	−	−	−	64.9	60.5	−
(cA1) [質量部]	−	−	65.4	61.4	−	−	−
(cA2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
水酸基当量 [g/eq]	388	388			644	644	388
イソシアネート化合物							
(B) [質量部]	8.1	14.5	4.6	8.6	5.1	9.5	12.1
フィラー							
(C1) [質量部]	318.9	318.9	−	−	318.9	318.9	
(C2) [質量部]	136.7	136.7	−	−	136.7	136.7	
(cC1) [質量部]	−	−	−	−	−	−	455.6
(cC2) [質量部]	−	−	400.0	400.0	−	−	−
可塑剤							
(D1) [質量部]	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0
(D2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
比（ｲｿｼｱﾈｰﾄ基/水酸基）	0.25	0.50	0.40	0.80	0.25	0.50	0.40
Asker C 硬度	※1	65	※1	40	※1	78	55
熱伝導率 [W/m･K]	※1	2.1	※1	1.5	※1		2.0
圧縮率 [%]	※1	9	※1	15	※1	5	11
クラックの有無	※1	無	※1	無	※1	無	有
耐熱性（硬度変化）	※1	+15	※1	※2	※1	+15	

※１：樹脂組成物が硬化せず硬化物又は熱伝導性シートが得られなかった。

※２：耐熱性評価のための曝露により硬化物が軟化溶解した。

[0073]

[表3]

	比較例						
	8	9	10	11	12	13	14
ポリオール化合物							
(A1) [質量部]	57.9	−	−	61.6	61.6	57.2	53.7
(A2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
(cA1) [質量部]	−	61.6	−	−	−	−	−
(cA2) [質量部]	−	−	61.6	−	−	−	−
水酸基当量 [g/eq]	388			388	388	388	388
イソシアネート化合物							
(B) [質量部]	12.1	8.4	8.4	8.4	8.4	7.8	11.3
フィラー							
(C1) [質量部]	−	318.9	318.9	210.0	1330.0	318.9	318.9
(C2) [質量部]	−	136.7	136.7	90.0	570.0	136.7	136.7
(cC1) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
(cC2) [質量部]	455.6	−	−	−	−	−	−
可塑剤							
(D1) [質量部]	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	35.0	35.0
(D2) [質量部]	−	−	−	−	−	−	−
比（ｲｿｼｱﾈｰﾄ基/水酸基）	0.40	0.80	0.80	0.26	0.26	0.26	0.40
Asker C 硬度	56	29	25	10		※1	※1
熱伝導率 [W/m･K]	2.0	2.0	2.1	1.3		※1	※1
圧縮率 [%]	10	51	50	66		※1	※1
クラックの有無	有	無	無	無	※3	※1	※1
耐熱性（硬度変化）		※2	+65	+16		※1	※1

※１：樹脂組成物が硬化せず硬化物又は熱伝導性シートが得られなかった。

※２：耐熱性評価のための曝露により硬化物が軟化溶解した。

※３：全てのフィラーが充填されたシートに成形できなかった。

[0074] 実施例１～７の樹脂組成物を用いて得られた硬化物は、硬度が小さく、柔軟性に優れており、また、熱伝導性及び耐熱性にも優れていた。

[0075] 比較例１、２、５、及び６の結果から、当量比（イソシアネート基／水酸基）が０．２６を下回ると、樹脂組成物を硬化させることができず、上記当量比が０．４０を超えると、樹脂組成物の硬化物の硬度が大きくなり、圧縮率及び柔軟性に劣ると考えられる。

[0076] 比較例３では、樹脂組成物がポリカーボネートポリオール化合物を含んでいないため、当量比（イソシアネート基／水酸基）が０．４０であっても樹

脂組成物を硬化させることができなかったと考えられる。比較例４の樹脂組成物の硬化物は、硬度が大きく、圧縮率及び柔軟性に劣り、熱伝導率及び耐熱性にも劣るものであった。

[0077] 比較例７では、フィラーとして用いた不定形アルミナフィラーと樹脂との接触面積が大きいために樹脂組成物が増粘したと考えられる。比較例８では、水酸化アルミニウムの水酸基がイソシアネート化合物（Ｂ）と反応したために樹脂組成物が増粘したと考えられる。そのため、比較例７及び８の樹脂組成物を用いて得た熱伝導性シートには、いずれもクラックが発生したと考えられる。

[0078] 比較例９及び１０の樹脂組成物の硬化物は、樹脂組成物がポリカーボネートポリオール化合物を含んでいないため、いずれも耐熱性に劣ると考えられる。

[0079] 比較例１１及び１２の結果から、球状アルミナフィラーの含有量が４００質量部を下回ると、硬化物の熱伝導率が低下し、上記含有量が９００質量部を超えると、フィラー量が多すぎるために、全てのフィラーが充填されたシート状の硬化物を得ることができなかったと考えられる。

[0080] 比較例１３及び１４では、可塑剤の含有量が３０質量部を超えているため、樹脂組成物を硬化させることができなかったと考えられる。

[0081] 今回開示された実施の形態及び実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本開示の範囲は上記した説明ではなくて請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味及び範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

請求の範囲

[請求項1] ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び、球状アルミナフィラー（Ｃ）を含み、可塑剤（Ｄ）を含んでいてもよい熱伝導性樹脂組成物であって、

前記ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）の水酸基当量は、２００ｇ／ｅｑ以上８００ｇ／ｅｑ以下であり、

前記ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）中の水酸基に対する前記ポリイソシアネート化合物（Ｂ）中のイソシアネート基の当量比（イソシアネート基／水酸基）は、０．２６以上０．４０以下であり、

前記ポリカーボネートポリオール化合物（Ａ）、前記ポリイソシアネート化合物（Ｂ）、及び前記可塑剤（Ｄ）の総量１００質量部に対して、前記球状アルミナフィラー（Ｃ）の含有量は、４００質量部以上９００質量部以下であり、前記可塑剤（Ｄ）の含有量は、３０質量部以下である、熱伝導性樹脂組成物。

[請求項2] 前記熱伝導性樹脂組成物は、前記可塑剤（Ｄ）を含む、請求項１に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項3] 前記可塑剤（Ｄ）は、芳香族カルボン酸エステルである、請求項１又は２に記載の熱伝導性樹脂組成物。

[請求項4] 請求項１～３のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物の硬化物。

[請求項5] 請求項４に記載の硬化物を含む熱伝導性シート。

[請求項6] 熱伝導性シートの製造方法であって、

請求項１～３のいずれか１項に記載の熱伝導性樹脂組成物をシート状に成形したシート状成形物を得る工程と、

前記シート状成形物を加熱により硬化させる工程と、を含む、熱伝導性シートの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/012940

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G 18/08(2006.01)i; C08G 18/44(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 7/18(2006.01)i; C08L 75/04(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i
FI: C08G18/08 038; C08G18/44; C08J5/18 CFF; C08K3/22; C08K7/18; C08L75/04; C09K5/14 E
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)
C08G18/00-18/87; C08L1/00-101/16; C08K3/00-13/08; C09D1/00-201/10; C09J1/00-201/10; C08J3/00-7/18; C09K5/00-5/20

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	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2019-172935 A (JNC CORP) 10 October 2019 (2019-10-10)	1-6
A	JP 11-1675 A (NITTO DENKO CORP) 06 January 1999 (1999-01-06)	1-6
A	CN 107880243 A (WINS IN MATERIALS, INC.) 06 April 2018 (2018-04-06)	1-6
A	WO 2020/240703 A1 (MITSUBISHI ELECTRIC CORP) 03 December 2020 (2020-12-03)	1-6
A	JP 2017-35802 A (SHOWA DENKO KK) 16 February 2017 (2017-02-16)	1-6

☐ 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
02 June 2021 (02.06.2021)	15 June 2021 (15.06.2021)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/012940

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2019-172935 A	10 Oct. 2019	(Family: none)	
JP 11-1675 A	06 Jan. 1999	(Family: none)	
CN 107880243 A	06 Apr. 2018	(Family: none)	
WO 2020/240703 A1	03 Dec. 2020	(Family: none)	
JP 2017-35802 A	16 Feb. 2017	KR 10-2017-0017719 A TW 201715193 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/012940

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08G 18/08(2006.01)i; C08G 18/44(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 7/18(2006.01)i; C08L 75/04(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i
FI: C08G18/08 038; C08G18/44; C08J5/18 CFF; C08K3/22; C08K7/18; C08L75/04; C09K5/14 E

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））

C08G18/00-18/87; C08L1/00-101/16; C08K3/00-13/08; C09D1/00-201/10; C09J1/00-201/10; C08J3/00-7/18; C09K5/00-5/20

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	１９７１－２０２１年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２１年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２１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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
A	JP 2019-172935 A (ＪＮＣ株式会社) 10.10.2019 (2019-10-10)	1-6
A	JP 11-1675 A (日東電工株式会社) 06.01.1999 (1999-01-06)	1-6
A	CN 107880243 A (WINSIN MATERIALS,INC.) 06.04.2018 (2018-04-06)	1-6
A	WO 2020/240703 A1 (三菱電機株式会社) 03.12.2020 (2020-12-03)	1-6
A	JP 2017-35802 A (昭和電工株式会社) 16.02.2017 (2017-02-16)	1-6

☐ 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
02.06.2021	15.06.2021

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）
前田　孝泰 4J 9456
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/JP2021/012940

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2019-172935 A	10.10.2019	（ファミリーなし）	
JP 11-1675 A	06.01.1999	（ファミリーなし）	
CN 107880243 A	06.04.2018	（ファミリーなし）	
WO 2020/240703 A1	03.12.2020	（ファミリーなし）	
JP 2017-35802 A	16.02.2017	KR 10-2017-0017719 A	
		TW 201715193 A	