(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
2017 年 1 月 5 日(05.01.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/002489 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 77/52 (2006.01) *C09K 5/00* (2006.01)
C08L 83/14 (2006.01) *H01L 23/36* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) *H01L 23/373* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/065414

(22) 国際出願日: 2016 年 5 月 25 日(25.05.2016)

(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 2015-130903 2015 年 6 月 30 日(30.06.2015) JP

(71) 出願人: 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目６番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 打它 晃(UTA Akira); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 池野 正行 (IKENO Masayuki); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 松本 展明 (MATSUMOTO Nobuaki); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 増田 幸平(MASUDA Kohei); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 坂本 隆文 (SAKAMOTO Takafumi); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP).

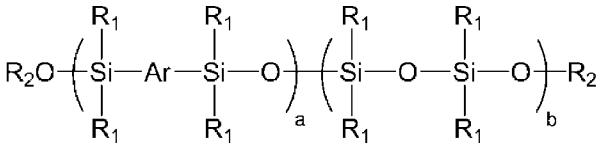
(74) 代理人: 特許業務法人英明国際特許事務所(PATENT PROFESSIONAL CORPORATION EI-MEI PATENT OFFICE); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目１６番１２号 銀座大塚ビル２階 Tokyo (JP).

(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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

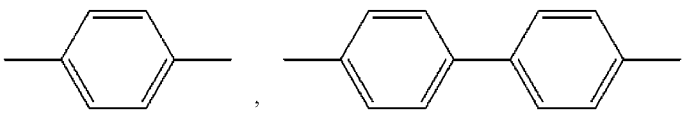
[続葉有]

(54) **Title**: HEAT DISSIPATION MATERIAL

(54) 発明の名称 : 放熱材料



(1)



(57) **Abstract**: Provided is a heat dissipation material comprising a mesogen/silicon compound (co)polymer having a number average molecular weight of 1,000-500,000, represented by general formula (1). (Ar is a mesogen group selected from the structure represented by the following formulas. a represents a positive number from 0.5 to 1, b represents a number from 0 to 0.5 (with the caveat that a and b each represent the ratio of each number of repeating units in molecules, and a+b=1). R_1 is independently a monovalent hydrocarbon group which does not independently include a C_{1-8} aliphatic unsaturated bond. R_2 is independently a hydrogen atom, $-Si(CH_3)_3$, $-Si(CH_3)_2(OH)$, $-Si(CH_3)_2(CH=CH)$ or $-Si(CH_3)_2(CH_2-CH=CH_2)$). This heat dissipation material has excellent thermal conductivity, and further shows good thermoplastic properties and has excellent moldability, and hence can be suitably used as a resin material for heat dissipation materials and semiconductor devices and electronic parts in particular.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2017/002489 A1

(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:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料。 （Ａｒは下記式 で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＣＨ＝CH_2）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（CH_2－ＣＨ＝CH_2）である。） 本発明の放熱材料は、熱伝導性に優れ、更に良好な熱可塑性を示し、成型性に優れることから、放熱材料、特に半導体装置及び電子部品のための樹脂材料として好適に用いることができる。

明　細　書

発明の名称 ： 放熱材料

技術分野

[0001] 本発明は、高熱伝導性のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料、及び該（共）重合体を含有する組成物からなる放熱材料に関する。

背景技術

[0002] ポリジメチルシロキサン（ＰＤＭＳ）を主成分とするジメチルシリコーンゴム等のいわゆるシリコーン樹脂は、耐熱性、電気絶縁性、耐候性、柔軟性、気体透過性、耐薬品性など優れた性質を持ち、様々な工業用途に使用されている。これらの特性から、シリコーン樹脂は、電気電子部材の放熱材として使用されている（特許文献１：特開２０１５－７１６６２号公報）。しかし、シリコーン樹脂は、熱伝導性に乏しく、強度も低いため、フィラーの高充填化や、化学架橋処理を実施する必要があった。

[0003] 一般に、ポリテトラメチル－ｐ－シルフェニレンシロキサン（ＰＴＭＰＳ）は、ＰＤＭＳよりも耐熱性や機械的強度に優れ、熱可塑性を持つ結晶性高分子であることが知られている（特許文献２：特開２０１０－２５３７７４号公報）。従って、ＰＴＭＰＳのようなメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体においていわゆるシリコーン樹脂以上の耐熱性とその結晶性由来の高熱伝導性により放熱材への応用が期待されるが、実際にそれらを放熱材として用いた例はなかった。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０１５－７１６６２号公報

特許文献2：特開２０１０－２５３７７４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、例えば放熱材料、又は半導体

装置及び電子部品のための樹脂材料として好適に使用することができる高熱伝導性のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料、及び該（共）重合体を含有する組成物からなる放熱材料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

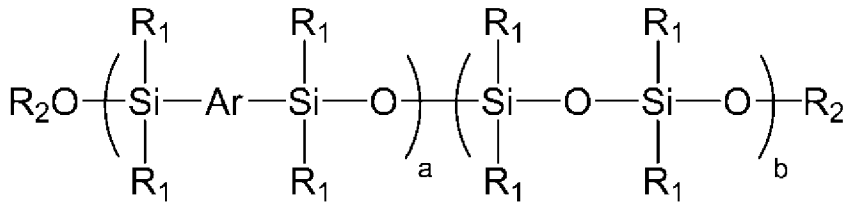
[0006] 本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、後述する組成式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体が、熱伝導性に優れ、更に熱可塑性を持ち、成型性に優れることを発見し、該メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体及びそれを含有する組成物が、放熱材料、特に半導体装置及び電子部品のための樹脂材料として好適に使用し得ることを見出し、本発明をなすに至った。

[0007] 従って、本発明は、下記の高熱伝導性のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料、及び該（共）重合体を含有する組成物からなる放熱材料を提供する。

〔１〕

下記一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料。

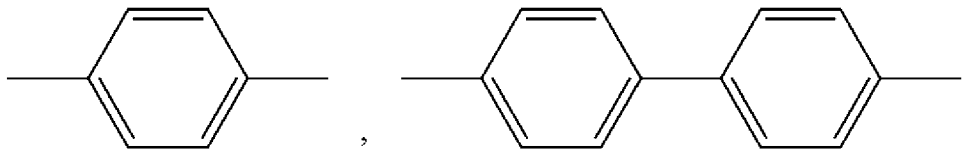
[化1]



(1)

（式中、Ａｒは下記式

[化2]

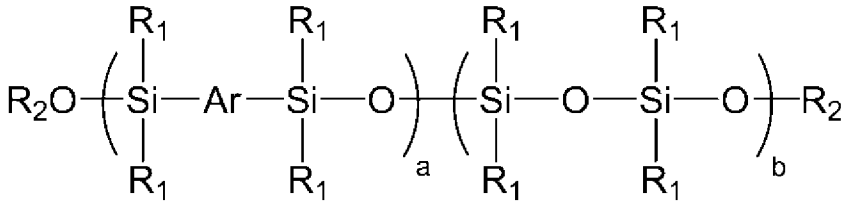


で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＣＨ＝CH_2）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（CH_2－ＣＨ＝CH_2）である。）

〔２〕

下記一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体１００質量部に対して熱伝導性充填剤が１００～１，５００質量部含有されたメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物からなる放熱材料。

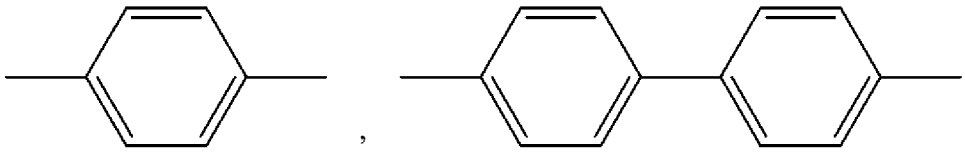
[化3]



(1)

（式中、Ａｒは下記式

[化4]



で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＣＨ＝CH_2）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（CH_2－ＣＨ＝

CH_2）である。）

〔３〕

メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物が、前記一般式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の融点±５０℃の温度範囲で溶融し、流動性を持つものであることを特徴とする〔２〕記載の放熱材料。

〔４〕

メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物の熱伝導率が、１Ｗ／ｍ・Ｋ以上であることを特徴とする〔２〕又は〔３〕記載の放熱材料。

〔５〕

メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体単体での熱伝導率が０．２Ｗ／ｍ・Ｋ以上である〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の放熱材料。

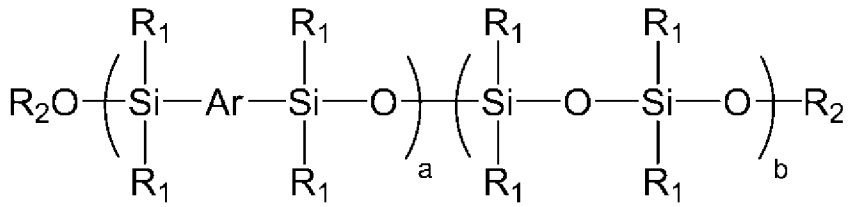
発明の効果

[0008] 本発明の放熱材料は、熱伝導性に優れ、更に良好な熱可塑性を示し、成型性に優れることから、放熱材料、特に半導体装置及び電子部品のための樹脂材料として好適に用いることができる。

発明を実施するための形態

[0009] 本発明の放熱材料は、下記一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体を含むものである。

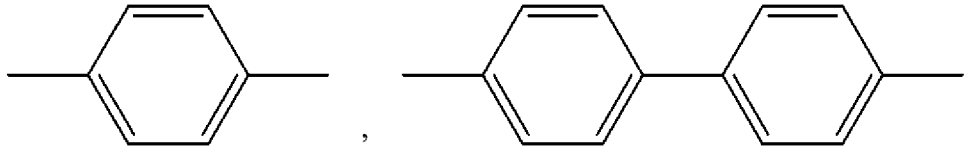
[化5]



(1)

（式中、Ａｒは下記式

[化6]



で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＣＨ＝CH_2）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（CH_2－ＣＨ＝CH_2）である。）

[0010] 上記式（１）中、R_1は独立に炭素原子数１～８、特に炭素原子数１～６の、脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、オクチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基等が挙げられ、好ましくはメチル基である。

また、ａは０．５～１、好ましくは０．７～１、より好ましくは０．８～１の正数を示し、ｂは０～０．５、好ましくは０～０．３、より好ましくは０～０．２の数（０又は正数）を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率（モル比）を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。

[0011] また、一般式（１）のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体において、主鎖中のシルアリーレンシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$－Ａｒ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し数又は重合度（これをａ’とする）は、５０～１，０００、好ましくは５０～８００、より好ましくは８０～６００程度の整数であり、主鎖中のジシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し数又は重合度（これをｂ’とする）は、０～１，０００、好ましくは１０～８００、より好ましくは２０～２００程度の整数であり、主鎖全体の繰り返し単位数の合計又は重合度（これをａ’＋ｂ’とする）は、５０～２，０００、好ましくは１００～１，６００、より好ましくは２００～１，２０

０程度の整数である。

[0012] ここで、一般式（１）のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体中において、シルアリーレンシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$－Ａｒ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］とジシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の配列はランダムである。

[0013] 本発明の放熱材料に用いられるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体は、テトラヒドロフランを展開溶媒としてゲルパーミエーションクロマトグラフィにて測定したポリスチレン換算の数平均分子量が１，０００～５００，０００、好ましくは２，０００～４００，０００、更に好ましくは３，０００～３００，０００である（共）重合体である。重量平均分子量が小さすぎると樹脂が脆く、取扱いに難が出ることがあり、大きすぎると溶融時の粘度が上昇し、フィラーの充填が困難になる。

なお、上記ポリスチレン換算の数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ分析において、東ソー株式会社製のカラム：ＴＳＫｇｅｌ Ｓｕｐｅｒ Ｈ２５００（１本）及びＴＳＫｇｅｌ Ｓｕｐｅｒ ＨＭ－Ｎ（１本）、溶媒：テトラヒドロフラン、流量：０．６ｍＬ／ｍｉｎ、検出器：ＲＩ（４０℃）、カラム温度４０℃、注入量５０μＬ、サンプル濃度０．３質量％の条件にて測定することができる（以下、同じ）。

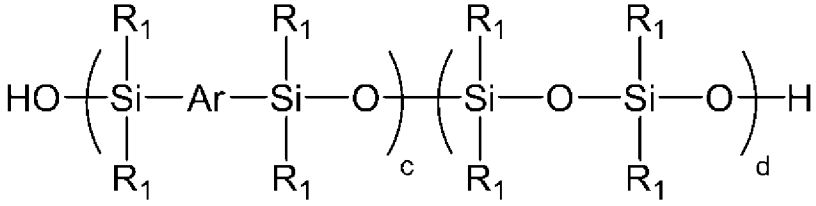
[0014] 本発明の放熱材料に用いられるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体は、熱伝導率が０．２Ｗ／ｍ・Ｋ以上であることが好ましく、０．２～１．０Ｗ／ｍ・Ｋであることがより好ましく、０．２５～１．０Ｗ／ｍ・Ｋであることが更に好ましい。なお、熱伝導率は、６ｍｍ厚のシートを２枚用いて（１２ｍｍ厚にて）ホットディスク法（ＴＰＡ－５０１　京都電子工業製）によって測定することができる（以下、同じ）。

[0015] また、本発明の放熱材料に用いられるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の融点は、５０～２５０℃、特に８０～２３０℃であることが好ましい。なお、融点は、示差走査熱量分析（ＤＳＣ）によって測定される融解吸熱ピークのピークトップから求めることができる（ＤＳＣ８３０　メトラートレ

ド製）（以下、同じ）。

[0016] 本発明の一般式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体において、R_2が水素原子であるもの（分子鎖両末端がシラノール基で封鎖されたもの）は、公知の方法により製造することができる。また、R_2が、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH=CH_2$）及び－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH_2-CH=CH_2$）であるもの（分子鎖両末端がシロキシ基で封鎖されたもの）の製造方法としては、公知の方法で製造される下記一般式（２）で表される分子鎖両末端がケイ素原子に結合した水酸基（シラノール基）で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物を出発原料として、これを分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基又は分子鎖両末端ヒドロキシジオルガノシロキシ基で封鎖されたジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサン（例えば、分子鎖両末端がビニルジメチルシロキシ基、アリルジメチルシロキシ基などのアルケニル基含有ジオルガノシロキシ基やトリメチルシロキシ基等のトリオルガノシロキシ基、ヒドロキシジメチルシロキシ基などのヒドロキシ基含有ジオルガノシロキシ基で封鎖されたジシロキサン化合物（例えば、ヘキサオルガノジシロキサン又は１，３－ジヒドロキシテトラオルガノジシロキサン）や重合度３以上の直鎖状ジメチルポリシロキサンなどの直鎖状ジオルガノポリシロキサン等の既存の末端シリル変性シリコーンオイルなど）と混合し、酸性触媒下で平衡化反応（シロキサン結合の開裂／再結合化反応）することにより得ることができる。

[0017] [化7]



(2)

［式中、Ａｒ、R_1は式（１）のＡｒ、R_1と同じである。ｃは０．５～１の正数を示し、ｄは０～０．５の数を示す（ただし、ｃ、ｄはそれぞれ、分子中

におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ｃ＋ｄ＝１である。）。］

[0018] 一般式（２）において、分子中のシルアリーレンシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$－Ａｒ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し単位数の比率を示すｃは、０．５～１、好ましくは０．７～１、より好ましくは０．８～１程度の正数であり、分子中のジシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し単位数の比率を示すｄは、０～０．５、好ましくは０～０．３、より好ましくは０～０．２程度の数である。ただし、ｃ＋ｄ＝１である。

[0019] また、一般式（２）のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体において、主鎖中のシルアリーレンシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$－Ａｒ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し数又は重合度（これをｃ’とする）は、５０～１，０００、好ましくは５０～８００、より好ましくは８０～６００程度の整数であり、主鎖中のジシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の繰り返し数又は重合度（これをｄ’とする）は、０～１，０００、好ましくは１０～８００、より好ましくは２０～２００程度の整数であり、主鎖全体の繰り返し単位数の合計又は重合度（これをｃ’＋ｄ’とする）は、５０～２，０００、好ましくは１００～１，６００、より好ましくは２００～１，２００程度の整数である。

[0020] なお、一般式（２）の化合物中において、シルアリーレンシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$－Ａｒ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］とジシロキサン単位［－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－Ｓｉ（R_1）$_2$Ｏ－］の配列はランダムである。

[0021] 式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物は、テトラヒドロフランを展開溶媒としてゲルパーミエーションクロマトグラフィにて測定したポリスチレン換算の数平均分子量が好ましくは１，０００～５００，０００、より好ましくは２，０００～４００，０００、更に好ましくは３，０００～３００，０００である。

[0022] なお、式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中

にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物が、本発明の式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の範囲内であれば、これをそのまま式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体として用いることができる。

[0023] 一般式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物は、例えば、１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンや４，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ビフェニル等のシルアリーレン構造を有する化合物と、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジヒドロキシジシロキサン等の末端水酸基含有オルガノシロキサンとを、１：０～１：１、好ましくは１：０～１：０．４（モル比）程度の割合で、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジン等の重縮合触媒及び必要により有機溶媒の存在下、６０～２５０℃、特に８０～１３０℃にて４～４８時間、特に８～３２時間反応させることにより得ることができる。

[0024] また、上記一般式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物と反応させる分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基又は分子鎖両末端ヒドロキシジオルガノシロキシ基で封鎖されたジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端がビニルジメチルシロキシ基（－ＯＳｉ（ＣＨ$_3$）$_2$（ＣＨ＝ＣＨ$_2$））アリルジメチルシロキシ基（－ＯＳｉ（ＣＨ$_3$）$_2$（ＣＨ$_2$－ＣＨ＝ＣＨ$_2$））等のアルケニル基含有シロキシ基や、トリメチルシロキシ基（－ＯＳｉ（ＣＨ$_3$）$_3$）等のトリオルガノシロキシ基、ヒドロキシジメチルシロキシ基（－ＯＳｉ（ＣＨ$_3$）$_2$（ＯＨ））等のヒドロキシ基含有ジオルガノシロキシ基などで封鎖されたジシロキサン化合物や直鎖状ジメチルポリシロキサンなどの既存の末端シリル変性シリコーンオイル（重合度３以上の直鎖状ジオルガノポリシロキサン）などを用いることができる。

[0025] 分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖のジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサンにお

いて、ジオルガノシロキサン単位中のケイ素原子に結合する有機基としては、炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であることが好ましく、上述した一般式（１）のR_1で例示したものと同様のものを挙げることができ、中でもメチル基であることが好ましい。

[0026] 分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖の直鎖状ジオルガノポリシロキサンの重合度は３以上であれば特に限定されないが、通常、１０～２，０００、特に５０～１，０００、とりわけ１００～５００程度であることが好ましい。

[0027] 上記の分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖のジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサン（末端シリル変性シリコーンオイル）は、１種単独で用いても、重合度の異なる２種以上を用いてもよい。

[0028] 平衡化反応において、上記一般式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物と分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖のジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサンとの混合割合は、質量比で１：０．５～１：１０、特には１：２～１：７．５程度であることが好ましい。分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖のジシロキサン化合物又は直鎖状ジオルガノポリシロキサンが少なすぎると比較的高価なアリーレン基を有するシラノール基封鎖オルガノポリシロキサンの使用量が増大し、製造コストが増加する場合があり、多すぎると主鎖中のアリーレン基導入量が低下し、目的とする上記一般式（１）で表される反応生成物の熱伝導性、機械的強度、熱可塑性などの特性が劣る場合がある。

[0029] 平衡化反応を促進するための酸性触媒としては、強酸であれば特に種類を問わないが、硫酸、メタンスルホン酸、トリフルオロメタンスルホン酸などが好適に使用でき、使用量の少なさや後処理の容易さから特にトリフルオロメタンスルホン酸が好ましい。

また、酸性触媒の添加量は、一般式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物と、ジシロキサン化合物又は分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖の直鎖状ジオルガノポリシロキサンとの合計質量に対して１００～１０，０００ｐｐｍの範囲が望ましく、特に５００～３，０００ｐｐｍが望ましい。

[0030] 平衡化反応は、特に制限されないが、通常、８０～１５０℃、特には１００～１３０℃程度の加熱下で、通常、０．５～６時間、特には１～４時間程度の条件で行うことができる。この際、必要に応じて溶媒を添加することは任意である。溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族系非極性溶媒などが挙げられる。

[0031] このような一般式（２）で表される分子鎖両末端がシラノール基で封鎖され主鎖中にアリーレン基を有するオルガノポリシロキサン化合物と、ジシロキサン化合物又は分子鎖両末端トリオルガノシロキシ基封鎖又はヒドロキシジオルガノシロキシ基封鎖の直鎖状ジオルガノポリシロキサンとの平衡化反応により、上記一般式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体において、R_2が－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH=CH_2$）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH_2-CH=CH_2$）であるものを、容易に、かつ定量的に高収率で製造することができる。

[0032] 本発明の放熱材料は、上記メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体に熱伝導性充填剤が含有されたメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物を用いることもできる。

上記組成物に用いられる熱伝導性充填剤については汎用の熱伝導性充填剤が用いられるが、例えば、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、窒化ホウ素、カーボン、及びこれらをシラン類、シラザン類、低重合度ポリシロキサン類等で表面処理した微粉末状の無機質充填剤やアルミニウム、銅、鉄、金、銀などの金属粉を使用することができる。更に経済性や熱伝導率の観点から酸化アルミニウムやアルミニウムが特に望ましい。

[0033] 熱伝導性充填剤の含有量は、上記メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体１００質量部に対して１００～１，５００質量部が好ましく、２５０～１，０００質量部がより好ましい。配合量が少なすぎると目的の熱伝導率が得られない場合があり、多すぎると樹脂の物性が低下する場合がある。

[0034] 熱伝導性充填剤の充填方法としてはメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体と熱伝導性充填剤をプラネタリーミキサーに仕込み、該メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の融点以上で３０分程度混合することで目的組成物が得られる。

[0035] メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物は、上述したメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の融点に対して、該融点±５０℃、特には該融点±３０℃の温度範囲で溶融し、流動性を持つものであることが好ましい。

更に、メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物の熱伝導率は、１Ｗ／ｍ・Ｋ以上、特に１～１０Ｗ／ｍ・Ｋであることが好ましく、１．５～１０Ｗ／ｍ・Ｋであることが更に好ましい。

[0036] 本発明の放熱材料は、特に半導体装置及び電子部品のための樹脂材料として好適に用いることができる。

実施例

[0037] 以下、合成例、実施例及び比較例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0038] 初めに本発明に用いるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の原料となるモノマーの合成例を示す。これらのモノマーは既知の手法によって合成される。

［合成例１］

１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンの合成

還流管と１Ｌの滴下ロートを備えた５Ｌセパラブルフラスコに、テトラヒドロフラン５００ｍＬ、メチルエチルケトン２，５００ｍＬ、５質量％パラジウム担持カーボン７．８ｇ、イオン交換水１７２．８ｇを仕込み、５０℃まで昇温した。次に、滴下ロートに、１，４－ビス（ジメチルシリル）ベン

ゼン７５７．６ｇ（商品名　シルフェニレンＣ、信越化学工業製）を仕込み、４時間かけて滴下を行った。滴下終了後、５時間熟成させ、触媒を濾過にて除去したのち、濾液を濃縮し、白色固体を得た。次に、ヘキサン３Ｌ、テトラヒドロフラン５００ｍＬの混合溶媒を用いて再結晶精製を行い、１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼン５９６．９ｇを得た（収率６８％）。^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ７．６１（ｓ，４Ｈ），１．９５（ｂｒｓ，２Ｈ），０．４１（ｓ，１２Ｈ）

[0039] ［合成例２］

４，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ビフェニルの合成

還流管を備えた３Ｌナスフラスコに、マグネシウム４８ｇ、乾燥テトラヒドロフラン１Ｌ、数滴の１，２－ジブロモエタンを加え、窒素雰囲気下で加熱還流させた。次に、４，４’－ジブロモビフェニル２５０ｇを加え、１時間加熱還流し、グリニヤール試薬を調製した。これをジメチルクロロシラン１７０ｇとテトラヒドロフラン２００ｍＬが仕込まれた３Ｌ四つ口フラスコに、氷浴下で１時間かけて移送滴下した。滴下終了後一晩室温で反応させ、桐山ロートで残渣を除いたのち１４０－１５０℃／１ｍｍＨｇで蒸留精製し、４，４－ビス（ジメチルシリル）ビフェニルを得た。

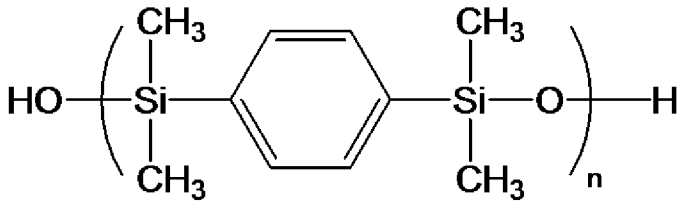
これを原料とし、上記１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンの合成法と同様にして４，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ビフェニル１３０ｇを得た（収率４７％）。^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，ＣＤＣｌ$_{3}$）δ７．６８（ｄ，４Ｈ），７．６０（ｄ，４Ｈ），１．７６（ｂｒｓ，２Ｈ），０．４５（ｓ，１２Ｈ）

[0040] ［実施例１］

ディーンスタークトラップを取り付けた１Ｌナスフラスコに、合成例１で得られた１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンを１００ｇ、ベンゼンを８００ｍＬ、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジンを４ｇ加え、２４時間加熱還流した。その後、３Ｌのメタノールに溶液を滴下し、再沈殿精製することで、下記化学式（２）で表され

る、白色粉末のＰＴＭＰＳ（メソゲン・ケイ素化合物重合体）を８８ｇ得た。収率９０％、数平均分子量（Ｍｎ）＝８０，０００、多分散度（ＰＤＩ）＝１．７、熱伝導率＝０．２５Ｗ／ｍ・Ｋ、融点（ｍｐ）＝１２５℃であった。このポリマーをポリマー１とする。

[化8]



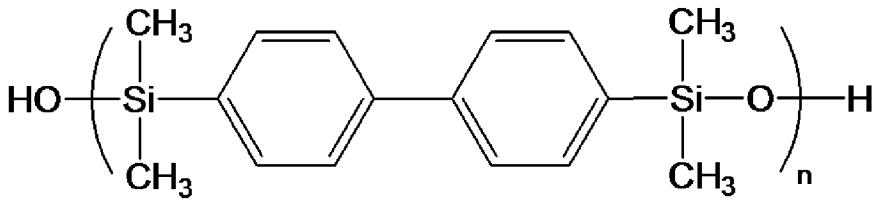
(2)

（式中、ｎは数平均分子量が上記範囲となる数である。）

[0041] ［実施例２］

ディーンスタークトラップを取り付けた１Ｌナスフラスコに、合成例２で得られた４，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ビフェニルを１００ｇ、ベンゼンを８００ｍＬ、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジンを４ｇ加え、２４時間加熱還流した。その後、３Ｌのメタノールに溶液を滴下し、再沈殿精製することで、下記化学式（３）で表される、白色粉末の樹脂（メソゲン・ケイ素化合物重合体）を７６ｇ得た。収率７９％、Ｍｎ＝５，０００、ＰＤＩ＝１．８、熱伝導率＝０．３５Ｗ／ｍ・Ｋ、ｍｐ＝２１０℃であった。このポリマーをポリマー２とする。

[化9]



(3)

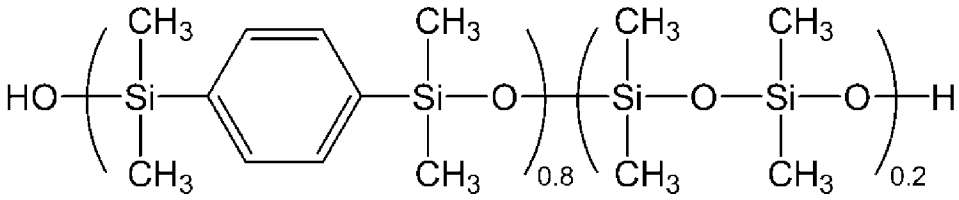
（式中、ｎは数平均分子量が上記範囲となる数である。）

[0042] ［実施例３］

ディーンスタークトラップを取り付けた１Ｌナスフラスコに、合成例１で得られた１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンを８０ｇ、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジヒドロキシジシロキサンを１４．

６７ｇ、ベンゼンを８００ｍＬ、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジンを４ｇ加え、２４時間加熱還流した。その後、３Ｌのメタノールに溶液を滴下し、再沈殿精製することで、下記化学式（４）で表される、白色粉末の樹脂（メソゲン・ケイ素化合物共重合体）を８２ｇ得た。収率８７％、Ｍｎ＝１６０，０００、ＰＤＩ＝２．０、熱伝導率＝０．２０Ｗ／ｍ・Ｋ、ｍｐ＝９０℃であった。このポリマーをポリマー３とする。

[化10]

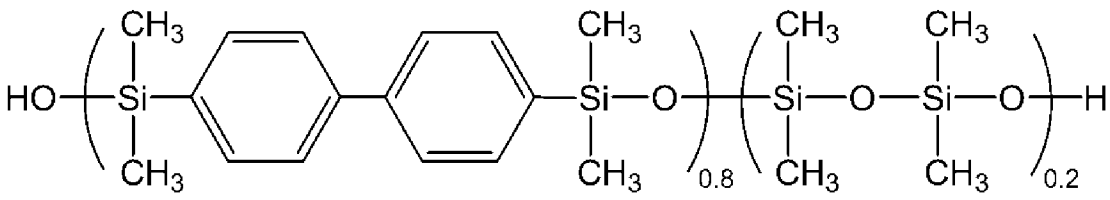


(4)

[0043] ［実施例４］

ディーンスタークトラップを取り付けた１Ｌナスフラスコに、合成例２で得られた４，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ビフェニルを１０６．９ｇ、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジヒドロキシジシロキサンを１４．６７ｇ、ベンゼンを８００ｍＬ、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジンを４ｇ加え、２４時間加熱還流した。その後、３Ｌのメタノールに溶液を滴下し、再沈殿精製することで、下記化学式（５）で表される、白色粉末の樹脂（メソゲン・ケイ素化合物共重合体）を１００ｇ得た。収率８５％、Ｍｎ＝２４，０００、ＰＤＩ＝２．２、熱伝導率＝０．２６Ｗ／ｍ・Ｋ、ｍｐ＝１４０℃であった。このポリマーをポリマー４とする。

[化11]



(5)

[0044] ［実施例５］

前述のポリマー１　５０ｇと球状アルミナ（ＤＡＷ－０７４５　電気化学工業製）１８５ｇをプラネタリーミキサーに仕込み、１８０℃で加熱混合し、６０ｍｍ×６０ｍｍ×６ｍｍの金型に流し込み、１５０℃、１０分間プレス成型することで組成物１を得た。熱伝導率は１．５８Ｗ／ｍ・Ｋであった。

[0045] ［実施例６］

前述のポリマー２　５０ｇと球状アルミナ（ＤＡＷ－０７４５　電気化学工業製）１８５ｇをプラネタリーミキサーに仕込み、２２０℃で加熱混合し、６０ｍｍ×６０ｍｍ×６ｍｍの金型に流し込み、２２０℃、１０分間プレス成型することで組成物２を得た。熱伝導率は２．１４Ｗ／ｍ・Ｋであった。

[0046] ［実施例７］

前述のポリマー３　５０ｇと球状アルミナ（ＤＡＷ－０７４５　電気化学工業製）１８５ｇをプラネタリーミキサーに仕込み、１８０℃で加熱混合し、６０ｍｍ×６０ｍｍ×６ｍｍの金型に流し込み、１５０℃、１０分間プレス成型することで組成物３を得た。熱伝導率は１．２８Ｗ／ｍ・Ｋであった。

[0047] ［実施例８］

前述のポリマー４　５０ｇと球状アルミナ（ＤＡＷ－０７４５　電気化学工業製）１８５ｇをプラネタリーミキサーに仕込み、１８０℃で加熱混合し、６０ｍｍ×６０ｍｍ×６ｍｍの金型に流し込み、１５０℃、１０分間プレス成型することで組成物４を得た。熱伝導率は１．６１Ｗ／ｍ・Ｋであった。

[0048] ［比較例１］

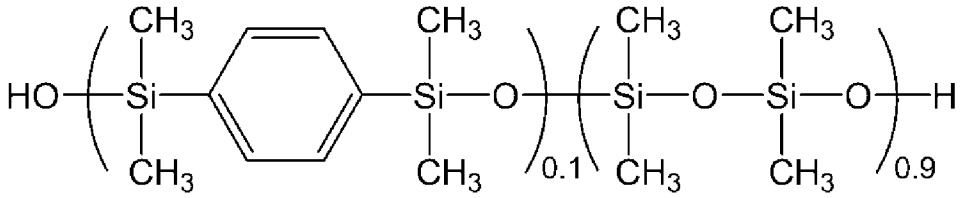
粘度１，０００ｍＰａ・ｓの両末端アルケニル基封鎖ジメチルシリコーンオイルを４８ｇ、ケイ素原子に直接結合した水素原子を４つ含むオルガノハイドロジェンポリシロキサンを１．９６ｇ（末端アルケニル基とＳｉ－Ｈ基

のモル比率が１：１）、球状アルミナ（ＤＡＷ－０７４５　電気化学工業製）１８５ｇをプラネタリーミキサーに仕込み、室温で３０分混合し、０．５質量％カールステット触媒トルエン溶液を０．０５ｇ添加し、更に５分混合した。これを、６０ｍｍ×６０ｍｍ×６ｍｍの金型に流し込み、１５０℃、１０分間プレス成型することで硬化物５を得た。熱伝導率は１．０８Ｗ／ｍ・Ｋであった。

[0049] ［比較例２］

ディーンスタークトラップを取り付けた１Ｌナスフラスコに、合成例１で得られた１，４－ビス（ヒドロキシジメチルシリル）ベンゼンを２０ｇ、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジヒドロキシジシロキサンを８０ｇ、ベンゼンを８００ｍＬ、ジ－２－エチルヘキサン酸１，１，３，３－テトラメチルグアニジンを４ｇ加え、２４時間加熱還流した。その後、３Ｌのメタノールに溶液を滴下し、再沈殿精製することで、下記化学式（６）で表される、高粘度の透明液体を６８ｇ得た。収率７５％、Ｍｎ＝２４０，０００、ＰＤＩ＝２．５であった。この液体を－３０℃まで冷却したが、固体とはならず、熱伝導率は測定できなかった。

[化12]



(6)

[0050] 上記実施例１～８及び比較例１で得られたポリマー１～４、組成物１～４及び硬化物５を用いて、各種物性（硬さ、引張り強度、伸び）を評価した。また、組成物１～４及び硬化物５の融点を測定した。これらの結果を下記表１に示す。なお、各種物性に関しては、１５０℃、１０分間プレス成型することで１００ｍｍ×１００ｍｍ×２ｍｍのシートを作製し、自動硬度計と引張り試験機を用いて測定を行った。なお、物性測定の条件はＪＩＳ　Ｋ　６２４９に準拠する。

[0051] [表1]

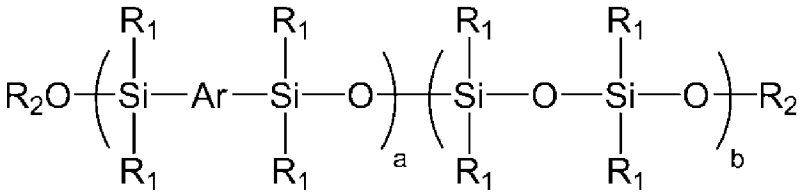
	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	比較例1
	ポリマー1	ポリマー2	ポリマー3	ポリマー4	組成物1	組成物2	組成物3	組成物4	硬化物5
硬さ	D57	D65	D38	D52	D71	D78	D55	D69	A38
引張り強度:MPa	22	28	12	17	21	25	15	24	1
伸び:%	56	21	92	49	3	4	3	3	106
熱伝導率:W/m・K	0.25	0.35	0.20	0.26	1.58	2.14	1.28	1.61	1.08
融点:℃	125	210	90	140	130	210	92	150	なし

[0052] これらの結果から、本発明に係るメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料（実施例１～４）の熱伝導率は０．３５～０．２０Ｗ／ｍ・Ｋと、従来の放熱材料として一般的に使用されているジメチルシリコーン樹脂（文献値０．１８Ｗ／ｍ・Ｋ）よりも優れており、機械的物性も優れていることがわかる。更に、本発明に係るメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体（樹脂）及び熱伝導性充填剤（充填剤）を含有する組成物からなる放熱材料（実施例５～８）は熱可塑性を持つことから、化学架橋が必要なジメチルシリコーンゴム（比較例１）と比較して、成型性に優れる。樹脂と充填剤を含有する組成物からなる放熱材料（実施例５～８）の熱伝導率は、樹脂の熱伝導率が大きくなると飛躍的に向上することが知られており、本発明の樹脂においても、充填剤添加後の熱伝導率が通常のジメチルシリコーン樹脂と充填剤との組合せに比較して大幅に向上している。これらのことから、本発明のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料及び該（共）重合体と熱伝導性充填剤を含有する組成物からなる放熱材料は、放熱材料として好適であり、特には半導体装置及び電子部品のための放熱用の樹脂材料として好適に用いることができる。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体からなる放熱材料。

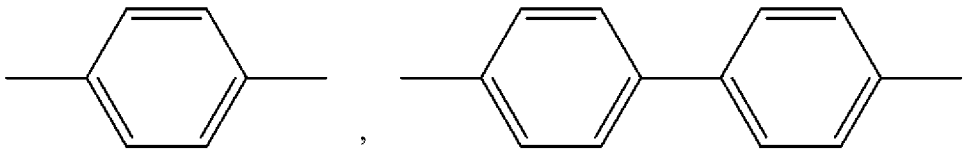
[化1]



(1)

（式中、Ａｒは下記式

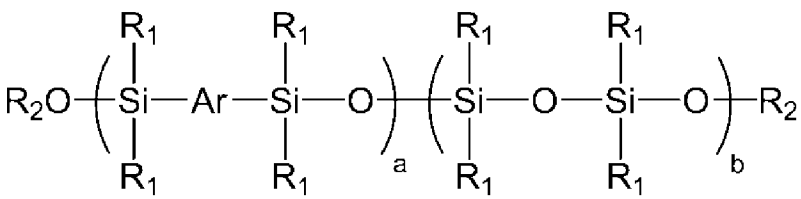
[化2]



で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH=CH_2$）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH_2-CH=CH_2$）である。）

[請求項2] 下記一般式（１）で表される、数平均分子量が１，０００～５００，０００のメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体１００質量部に対して熱伝導性充填剤が１００～１，５００質量部含有されたメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物からなる放熱材料。

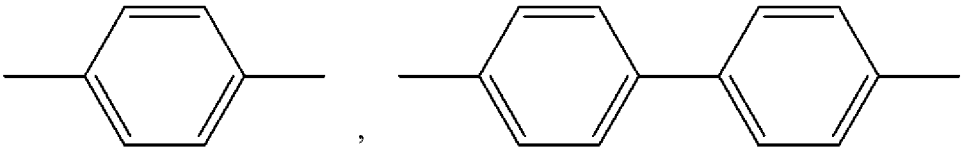
[化3]



(1)

（式中、Ａｒは下記式

[化4]



で示される構造から選ばれるメソゲン基である。ａは０．５～１の正数を示し、ｂは０～０．５の数を示す（ただし、ａ、ｂはそれぞれ、分子中におけるそれぞれの繰り返し単位数の比率を表すものであり、ａ＋ｂ＝１である。）。R_1は独立に炭素原子数１～８の脂肪族不飽和結合を含まない１価炭化水素基であり、R_2は独立に水素原子、－Ｓｉ（CH_3）$_3$、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（ＯＨ）、－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH=CH_2$）又は－Ｓｉ（CH_3）$_2$（$CH_2-CH=CH_2$）である。）

[請求項3] メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物が、前記一般式（１）で表されるメソゲン・ケイ素化合物（共）重合体の融点±５０℃の温度範囲で溶融し、流動性を持つものであることを特徴とする請求項２記載の放熱材料。

[請求項4] メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体組成物の熱伝導率が、１Ｗ／ｍ・Ｋ以上であることを特徴とする請求項２又は３記載の放熱材料。

[請求項5] メソゲン・ケイ素化合物（共）重合体単体での熱伝導率が０．２Ｗ／ｍ・Ｋ以上である請求項１～４のいずれか１項に記載の放熱材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/065414

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G77/52(2006.01)i, *C08L83/14*(2006.01)i, *C08K3/00*(2006.01)i, *C09K5/00*(2006.01)i, *H01L23/36*(2006.01)i, *H01L23/373*(2006.01)i

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)
C08G77/00-77/62, C08L83/00-83/16, C08K3/00-13/08, C09K5/00-5/20, H01L23/34-23/473

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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.
X Y A	JP 63-230768 A (Mitsubishi Electric Corp.), 27 September 1988 (27.09.1988), claims; page 2, upper right column to lower left column; examples (particularly, tables 1, 3) (Family: none)	2-5 2-5 1
Y A	JP 2012-49567 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 08 March 2012 (08.03.2012), claims; paragraphs [0009], [0095] to [0096], [0153], [0158] to [0159]; chemical formula 17 & US 2012/0153342 A1 claims; paragraphs [0009], [0078] to [0080], [0125], [0130] to [0131]; Chem. 17 & WO 2011/155482 A1 & EP 2581954 A1	2-5 1

☒ 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
18 August 2016 (18.08.16)	30 August 2016 (30.08.16)

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

International application No.
PCT/JP2016/065414

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	WO 2016/024516 A1 (IST Corp.), 18 February 2016 (18.02.2016), claims (Family: none)	1-5
P,A	JP 2015-160862 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 07 September 2015 (07.09.2015), claims (Family: none)	1-5
A	JP 2014-80522 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 08 May 2014 (08.05.2014), claims & KR 10-2014-0049477 A & CN 103772995 A & TW 201428044 A	1-5
A	JP 2015-78296 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 23 April 2015 (23.04.2015), claims (Family: none)	1-5

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０６５４１４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G77/52(2006.01)i, C08L83/14(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C09K5/00(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i

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））

Int.Cl.　C08G77/00－77/62,　C08L83/00－83/16,　C08K3/00－13/08,　C09K5/00－5/20,　H01L23/34－23/473

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	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６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
X Y A	JP 63-230768 A (三菱電機株式会社) 1988.09.27, 特許請求の範囲, 第2頁右上欄～左下欄, 実施例欄(特に[第1表]及び[第3表]) (ファミリーなし)	2－5 2－5 1
Y A	JP 2012-49567 A (積水化学工業株式会社) 2012.03.08, 特許請求の範囲,[0009],[0095]-[0096],[0153],[0158]-[0159],[化17] & US 2012/0153342 A1, claims,[0009],[0078]-[0080],[0125],[0130]-[0131],[Chem.17] & WO 2011/155482 A1 & EP 2581954 A1	2－5 1

☑　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矛盾するものではなく、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
１８．０８．２０１６	３０．０８．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　９４５６
前田　孝泰
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

Ｃ（続き）．　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
ＰＡ	WO 2016/024516 A1（株式会社アイ．エス．テイ）2016.02.18，請求の範囲（ファミリーなし）	1－5
ＰＡ	JP 2015-160862 A（信越化学工業株式会社）2015.09.07，特許請求の範囲（ファミリーなし）	1－5
Ａ	JP 2014-80522 A（信越化学工業株式会社）2014.05.08，特許請求の範囲 & KR 10-2014-0049477 A & CN 103772995 A & TW 201428044 A	1－5
Ａ	JP 2015-78296 A（信越化学工業株式会社）2015.04.23，特許請求の範囲（ファミリーなし）	1－5