

(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
2010 年 4 月 15 日(15.04.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/041708 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 71/02 (2006.01) C09D 183/12 (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) C09J 11/04 (2006.01)
C08K 5/00 (2006.01) C09J 11/06 (2006.01)
C09D 7/12 (2006.01) C09J 183/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/067541
- (22) 国際出願日: 2009 年 10 月 8 日(08.10.2009)
- (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 2008-262016 2008 年 10 月 8 日(08.10.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 宮崎 隼人 (MIYAZAKI, Hayato) [JP/JP]; 〒3778520 群馬県渋川市中村 1 1 3 5 番地 電気化学工業株式会社 電子材料総合研究所内 Gunma (JP). 深尾健司 (FUKAO, Kenji) [JP/JP]; 〒3778520 群馬県渋川市中村 1 1 3 5 番地 電気化学工業株式会社 電子材料総合研究所内 Gunma (JP). 大島和宏 (OSHIMA, Kazuhiro) [JP/JP]; 〒3778520 群馬県渋川市中村 1 1 3 5 番地 電気化学工業株式会社 電子材料総合研究所内 Gunma (JP).
- (74) 代理人: 正林 真之, 外(SHOBAYASHI, Masayuki et al.); 〒1700013 東京都豊島区東池袋 1 丁目 2 5 番 8 号 タカセビル本館 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, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ユーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: HEAT-CONDUCTIVE MOISTURE-CURABLE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 熱伝導性湿気硬化型樹脂組成物

(57) Abstract: Disclosed is a heat-conductive moisture-curable resin composition having high adhesion properties and rapid curability. The composition comprises (A) a polypropylene glycol having a hydrolyzable silyl group at one end of the molecule chain thereof, (B) a condensation-curing catalyst, and (C) a heat-conductive filler. Preferably, the composition additionally contains (D) a silane coupling agent. The heat-conductive filler (C) is preferably alumina. Also disclosed is a heat-conductive moisture-curable adhesive agent comprising the composition. Further disclosed is a cured product of the composition. Still further disclosed is a method for releasing heat generated in a heat-generating electronic component outside of the electronic component, which comprises applying the composition to the electronic component.

(57) 要約: 本発明の課題は、高い接着性および速硬化性を有する熱伝導性湿気硬化型樹脂組成物の提供である。本発明の組成物は、(A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコール、(B) 縮合硬化触媒、(C) 熱伝導性フィラーを含有する。該組成物はさらに (D) シランカップリング剤を含有することが好ましく、(C) 熱伝導性フィラーがアルミナであることが好ましい。本発明は、該組成物からなる熱伝導性湿気硬化型接着剤、および該組成物の硬化体も提供し、該組成物を発熱する電子部品に塗布することにより、電子部品から発生した熱を外へ放熱させる放熱方法も提供する。

WO 2010/041708 A1

明 細 書

発明の名称：熱伝導性湿気硬化型樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導性を有する湿気硬化型樹脂組成物、及び発熱した熱を外部へ放熱させる放熱方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子部品を集積化、高密度化、高性能化に伴い、電子部品自身の発熱量が大きくなってきている。発熱量の増加は、電子部品の性能の著しい低下、もしくは故障の原因となることから、電子部品の効率的な放熱は重要な技術である。

[0003] 電子部品の放熱方法として、発熱する電子部品と放熱器との間や、発熱する電子部品と金属製伝熱板との間に放熱材を導入し、電子部品から発生する熱を他の部材に伝え、電子部品に蓄積させないことが一般的である。この放熱材としては、放熱グリース、熱伝導性シート、熱伝導性接着剤等が用いられている。

[0004] 放熱グリースを用いた場合、発熱量が多量であるため、グリース成分が蒸発してしまったり、グリースと熱伝導性フィラーが分離してしまったりする。蒸発成分が電子部品に悪影響を及ぼすおそれがあるため、放熱グリースの使用は好ましくない。また、フィラーから分離したグリースが流れ、電子部品を汚染するおそれもある（特許文献1参照）。

[0005] また、熱伝導性シートを用いると、成分の流出の問題は解決するが、電子部品および放熱器等が固体のシートを押し付けられるため、両者間の密着性に不安が残る（特許文献2参照）。

[0006] 熱伝導性接着剤は硬化性であるため、蒸発したり、液状成分が流れたりして、電子部品を汚染することがない。しかし、硬化の際に電子部品に応力がかかり、電子部品の位置がずれてしまう恐れがある。また、接着した物を取り外す作業は困難であり、さらに電子部品を破壊してしまうおそれがある（

特許文献3参照)。

- [0007] そこで、電子部品と放熱材との間において、表面部分のみが硬化し内部に未硬化部分が残る熱伝導性接着剤を用いることが提案された。この熱伝導性接着剤によれば、電子部品と放熱材との密着性が大きい一方、未硬化部分があるので電子部品と放熱材との間の応力をなくすことができ、また取り外し作業が容易である(特許文献4, 5)。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：特開平3-162493号公報
特許文献2：特開2005-60594号公報
特許文献3：特開2000-273426号公報
特許文献4：特開2002-363429号公報
特許文献5：特開2002-363412号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] しかしながら、前述の熱伝導性接着剤には、未硬化部分が存在するため接着性に不安が残り、かつ内部を未硬化にするために硬化触媒を少量にする必要があり、その結果、硬化時間がかかるといった課題がある。
- [0010] 本発明は、上記課題を解決するため、高い接着性および速硬化性を有する組成物を提供するものである。

課題を解決するための手段

- [0011] 本発明は、
- (A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコール、
 - (B) 縮合硬化触媒、および
 - (C) 熱伝導性フィラー
- を含有する組成物を提供する。

本発明は、

(A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコール、

(B) 縮合硬化触媒、および

(C) 熱伝導性フィラー

を含有してなり、(B) 成分の配合量が(A) 成分の配合量に対して0.01～10質量%であり、(C) 成分の配合量が組成物全体に対して60～95質量%である組成物であることが好ましく、さらに(D) シランカップリング剤を含有する組成物であることが好ましく、さらに(E) 炭素物質を含有する組成物であることが好ましい。

本発明は、該組成物からなる熱伝導性湿気硬化型接着剤を提供し、該組成物の該硬化体も提供する。

本発明は、該組成物を発熱する電子部品に塗布することにより、電子部品から発生した熱を外部へ放熱させる放熱方法も提供する。

発明の効果

[0012] 本発明の組成物は、高い接着性および速硬化性を有する。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明で使用する(A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコールでは、ケイ素原子に少なくとも一個の加水分解性基が結合している。加水分解性基としては、カルボキシ基、ケトオキシム基、アルコキシ基、アルケノキシ基、アミノ基、アミノキシ基、アミド基等が挙げられる(例えば、旭硝子社製「S-1000」)。

[0014] 本発明で使用する(B) 硬化触媒は、特に限定されず、前記加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコールの縮合反応を促進する化合物を含む。前記(B) 成分の硬化触媒としては、シラノール化合物の縮合触媒であれば制限なく用いられるが、例えば、テトラブチルチタネート、テトラプロピルチタネート等のチタン酸エステル類；ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫マレエート、ジブチル錫ジアセテート、オクチル酸錫、ナフテン酸錫

、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物等の有機錫化合物：オクチル酸鉛、オクチル酸ビスマス等の有機ビスマス化合物、バナジルトリエトキシド、；ブチルアミン、オクチルアミン、ラウリルアミン、ジブチルアミン、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、オレイルアミン、シクロヘキシルアミン、ベンジルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、キシリレンジアミン、トリエチレンジアミン、グアニジン、ジフェニルグアニジン、2，4，6－トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、モルホリン、N－メチルモルホリン、1，8－ジアザビシクロ（5，4，0）ウンデセン－7（DBU）等のアミン系化合物又はこれらとカルボン酸等との塩；過剰のポリアミンと多塩基酸とから得られる低分子量ポリアミド樹脂；過剰のポリアミンとエポキシ化合物との反応生成物等の公知のシラノール縮合触媒が挙げられる。これらの中で、反応促進性の観点から、有機錫化合物及び／又は有機ビスマス化合物が好ましく用いられる。

[0015] 本発明で使用される（C）熱伝導性フィラーは、酸化アルミニウム等のアルミナやアルミニウム粉、酸化亜鉛、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、炭素繊維等の熱伝導性が高いフィラーであれば、特に限定されない。また、熱伝導性フィラーの形状は球状、破碎状等の任意の形状であってよく、0.1～100 μm 程度の平均粒径を有する。これらの中で、粘度の観点から、平均粒径1～40 μm の熱伝導性フィラーが好ましく用いられる。

[0016] （B）成分の配合量は、（A）成分の配合量に対して0.01～10質量％であることが好ましく、0.1～5質量％であることがより好ましい。（B）成分の配合量が0.01質量％以上であれば、硬化促進の効果が確実に得られるし、10質量％以下であれば、十分な硬化速度を得ることができる。

[0017] （C）成分の配合量は組成物全体に対して60～95質量％が好ましく、より好ましくは70～90質量％である。（C）成分の配合量が60質量％以上であれば、十分な熱伝導性能が得られ、95質量％以下であれば、電子

部品と放熱材との接着性が良化する。

[0018] 本発明で使用する（D）シランカップリング剤は、接着性、硬化性、安定性を向上するために配合されるものであり、公知のシランカップリング剤であってよい。シランカップリング剤としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリクロロシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシシリルトリエトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルメチルトリメトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルメチルトリエトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-クロロプロピルトリメトキシシラン、テトラメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン等が挙げられ、これらの1種又は2種以上を組み合わせ用いることができる。これらの中で、安定剤の観点からはビニルトリメトキシシランが、接着性、硬化性の観点からは3-グリシドキシプロピルメチルトリメトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルトリメトキシシランが好ましく用いられる。

[0019] （D）成分の配合量は（A）成分の配合量に対して0.1～10質量%であることが好ましく、1～5質量%であることがより好ましい。（D）成分の配合量が0.1質量%以上であれば十分な保存安定性が得られ、10質量%以下であれば硬化性および接着性が良化する。

[0020] 本発明で使用する（E）炭素物質は熱伝導性向上のために配合されるものであり、公知の炭素物質であってよい。炭素物質としては、ケッチェンブラック、ラヒーマ等の炭素繊維が挙げられる。

- [0021] (E) 成分の配合量は (A) 成分の配合量に対して 1 ~ 10 質量%であることが好ましく、2 ~ 7 質量%であることがより好ましい。(E) 成分の配合量が 2 質量%以上であれば十分な熱伝導性の向上効果が得られ、7 質量%以下であれば粘度上昇が抑えられる。
- [0022] 本発明においては、必要に応じ、さらに添加剤として、有機溶剤、酸化防止剤、難燃剤、可塑剤、チクソ性付与剤等も使用することができる。
- [0023] 本発明の組成物は空気中の湿分により硬化することができる。
- [0024] 本発明の組成物は、CUPやMPU等の演算回路、光ピックアップモジュール等の精密機器に使用されるレーザーダイオードに適用され、金属製伝熱板等の放熱材との間に配置される。
- [0025] 以下に実施例及び比較例をあげて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

実施例

- [0026] [表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
片末端ベースポリマー	100g	100g	100g	100g
酸化アルミニウム	1010g	1400g	1000g	700g
窒化アルミニウム	—	150g	80g	400g
窒化ホウ素	—	—	40g	30g
ビニルトリメトキシシラン	6g		6g	6g
3-グリシドキシプロピルメチルトリメトキシシラン		6g		
スズ系硬化触媒：材スタン U700)	6g	1g	—	2g
ビスマス系硬化触媒：プキヤット B7	—	—	2g	—
熱伝導率	2.1 W/m・K	5.1 W/m・K	4.2 W/m・K	4.0 W/m・K
タックフリー	15 分	30 分	30 分	40 分
硬度 (CSC2)	40	45	45	50
硬化状態 (未硬化率)	硬化 (0%)	硬化 (0%)	硬化 (0%)	硬化 (0%)

- [0027]

[表2]

	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1	比較例 2
片末端ベースポリマー	100g	100g	100g	—	
両末端ベースポリマー	—	—	—	100g	
酸化アルミニウム	1210g	495g	700g	1320g	
窒化アルミニウム	—	410g	400g	—	
窒化ホウ素	—	—	30g	—	
炭素繊維	3g	—	—	—	
ビニルトリメトキシシラン	6g	6g	—	6g	
3-グリシドキシプロピルメチルトリメトキシシラン	—	—	6g	—	
スズ系硬化触媒：材スチン U700)	2g	6g	—	6g	
ビスマス系硬化触媒：ブキヤット B7	—	—	2g	—	
熱伝導率	3.6W/m・K	3.4W/m・K	4.2W/m・K	2.9W/m・K	1.9W/m・K
タックフリー	45 分	15 分	50 分	10 分	6 時間
硬度 (GSC2)	40	50	30	50 以上	50
硬化状態 (未硬化率)	硬化 (0%)	硬化 (0%)	硬化 (0%)	硬化 (0%)	硬化 (50%)

[0028] (実施例 1)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール（片末端ベースポリマー）100g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物（ネオスタンU700）6g、酸化アルミニウム1010g（平均粒径 $25\mu\text{m}$ ）、ビニルトリメトキシシラン6gを混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0029] (実施例 2)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール100g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物1g、酸化アルミニウム1400g（平均粒径 $25\mu\text{m}$ ）、窒化アルミニウム150g（平均粒径 $20\mu\text{m}$ ）、3-グリシドキシプロピルメチルトリメトキシシラン6gを混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0030] (実施例 3)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール100g、オクチル酸ビスマス（ブキヤットB7）2g、酸化アルミニウム1000g（平均粒径 $25\mu\text{m}$ ）、窒化アルミニウム80g（平均粒径 $20\mu\text{m}$ ）、窒化ホウ素40g（平均粒径 $13\mu\text{m}$ ）、ビニルトリメトキシシラン6gを混

合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0031] (実施例 4)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール 100 g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物 2 g、酸化アルミニウム 700 g (平均粒径 $25\ \mu\text{m}$)、窒化アルミニウム 400 g (平均粒径 $20\ \mu\text{m}$)、窒化ホウ素 30 g (平均粒径 $13\ \mu\text{m}$)、ビニルトリメトキシシラン 6 g を混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0032] (実施例 5)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール 100 g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物 2 g、酸化アルミニウム 1210 g (平均粒径 $25\ \mu\text{m}$)、炭素繊維 (ケッチェンブラック) 3 g、ビニルトリメトキシシラン 6 g を混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0033] (実施例 6)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール 100 g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物 6 g、酸化アルミニウム 495 g (平均粒径 $25\ \mu\text{m}$)、窒化アルミニウム 410 g (平均粒径 $20\ \mu\text{m}$)、ビニルトリメトキシシラン 6 g を混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0034] (実施例 7)

メトキシシリル基を片末端に有するポリプロピレングリコール 100 g、オクチル酸ビスマス 2 g、酸化アルミニウム 700 g (平均粒径 $25\ \mu\text{m}$)、窒化アルミニウム 400 g (平均粒径 $20\ \mu\text{m}$)、窒化ホウ素 30 g (平均粒径 $13\ \mu\text{m}$) 3-グリシドキシプロピルメチルトリメトキシシラン 6 g を混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0035] (比較例 1)

メトキシシリル基を両末端に有するポリプロピレングリコール (両末端ベースポリマー) 100 g、ジブチル錫と正ケイ酸エチルとの反応物 6 g、酸化アルミニウム 1320 g (平均粒径 $25\ \mu\text{m}$)、ビニルトリメトキシシラン 6 g を混合して熱伝導性樹脂組成物を調製した。

[0036] (比較例 2)

比較として市販されている湿気硬化型放熱樹脂「製品名：Three Bond 2955 (スリーボンド社製)」を評価した。

[0037] (平均粒径評価)

平均粒径は「島津製作所製 SALD-2200」を用い、レーザー回析・散乱法にて測定した。

[0038] (熱伝導率評価)

熱伝導率は物質中の熱の伝わり易さを表し、大きいことが望まれる。上記で得られた各組成物について熱伝導率の評価を行った。熱伝導率は、「NETZSCH社製 LFA447」を用い、レーザーフラッシュ法にて、25℃で測定した。その結果、熱伝導率は、実施例1で2.1W/m・K、実施例2で5.1W/m・K、実施例3で4.2W/m・K、実施例4で4.0W/m・K、実施例5で3.6W/m・K、実施例6で3.4W/m・K、実施例7で4.2W/m・K、比較例1で2.9W/m・K、比較例2で1.9W/m・Kであった。

[0039] (タックフリー時間評価)

タックフリー時間は作業性および硬化性の一つの指針であり、タックフリー時間が長すぎると生産性が落ち、タックフリー時間が短すぎると作業途中で硬化が始まり、不良の発生原因となる。作業状況により求められるタックフリー時間の範囲は変化するが、10～60分、より好ましくは13～40分が作業性の観点で好ましいと考えられる。上記で得られた組成物を23℃・50%RH雰囲気下にて幅20mm×長さ20mm×厚さ5mmの型枠に流し込んで暴露させ、触指した。流し込んでから指に付着しなくなるまでの時間をタックフリー時間と定義した。この結果、タックフリー時間は、実施例1で15分、実施例2で30分、実施例3で30分、実施例4で40分、実施例5で45分、実施例6で15分、実施例7で50分、比較例1で10分、比較例2で6時間であった。

[0040] (硬度評価)

幅60mm×長さ40mm×厚さ5mmの型枠に流し込んだ各組成物を23℃・50%RH雰囲気下で10日間養生して作製した試験片について、アスカー高分子計器社製、デュロメーターアスカー硬度計「CSC2型」により硬度の測定を行った。測定値が50以下を示した場合、試験片が柔軟性を有すると定義した。測定値は、実施例1で40、実施例2で45、実施例3で45、実施例4で50、実施例5で40、実施例6で50、実施例7で30を示し、各試験片が優れた柔軟性を有していた。一方、測定値は比較例1で50以上を示し、試験片が十分な柔軟性を有さなかった。比較例2では測定値が50を示した。

[0041] (接着性評価)

幅50mm×長さ50mm×厚さ1.5mmのアルミ板の中央部に3gの各組成物を塗布し、アルミ板同士を押し付けた後、23℃70%RHの雰囲気下で1ヶ月間放置した。アルミ板を剥離したところ、実施例1～実施例7、比較例1では剥離面がすべて硬化していることを確認したが、比較例2では剥離面の50%が未硬化であった。

産業上の利用可能性

[0042] 本発明の熱伝導性湿気硬化型樹脂組成物は、高い熱伝導性、硬化後の柔軟性、速硬化性を有し、高精度に固定化された電子部品の放熱媒体として最適である。また、本発明の組成物は、その硬化速度が向上したため、高い生産性を有する。本発明の組成物は、硬化の際に電子部品に応力がほぼかからない程に軟らかい柔軟性を示す。

請求の範囲

- [請求項1] (A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコール、
- (B) 縮合硬化触媒、および
- (C) 熱伝導性フィラー
- を含有する組成物。
- [請求項2] (A) 分子鎖片末端に加水分解性シリル基を有するポリプロピレングリコール、
- (B) 縮合硬化触媒、および
- (C) 熱伝導性フィラー
- を含有し、(B) 成分の配合量が(A) 成分の配合量に対して0.01～10質量%であり、(C) 成分の配合量が組成物全体に対して60～95質量%である組成物。
- [請求項3] さらに(D) シランカップリング剤を含有する請求項1又は2記載の組成物。
- [請求項4] さらに(E) 炭素物質を含有する請求項1乃至3記載の組成物。
- [請求項5] 請求項1乃至4のいずれか1項に記載の組成物からなる熱伝導性湿気硬化型接着剤。
- [請求項6] 請求項1乃至4のいずれか1項に記載の組成物の硬化体。
- [請求項7] 請求項1乃至4のいずれか1項に記載の組成物を発熱する電子部品に塗布することにより、電子部品から発生した熱を外部へ放熱させる放熱方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/067541

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L71/02(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C09D7/12(2006.01)i, C09D183/12(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J183/12(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)

C08L1/00-101/14, C08K3/22, C08K5/00, C09D1/00-10/00, C09D101/00-201/10, C09J1/00-5/10, C09J9/00-201/10

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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 Y	JP 2005-325314 A (Kaneka Corp.), 24 November 2005 (24.11.2005), claims; paragraphs [0042], [0085], [0087], [0088], [0097], [0098], [0149], [0151], [0152] (Family: none)	1-7 3
X Y	JP 2000-86881 A (GE Toshiba Silicones Co., Ltd.), 28 March 2000 (28.03.2000), claims; paragraphs [0028], [0031], [0039], [0042], [0057] (Family: none)	1-6 3



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

24 November, 2009 (24.11.09)

Date of mailing of the international search report

08 December, 2009 (08.12.09)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/067541

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 5-59267 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 09 March 1993 (09.03.1993), claims; paragraphs [0038], [0039], [0041], [0047] (Family: none)	1, 2, 4-6 3
X Y	JP 9-95609 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 08 April 1997 (08.04.1997), claims; paragraphs [0011], [0044] to [0053], [0058] (Family: none)	1, 2, 4-6 3
A	JP 2001-302936 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 31 October 2001 (31.10.2001), claims; paragraphs [0001], [0020] (Family: none)	1-7
A	JP 2002-363429 A (Three Bond Co., Ltd.), 18 December 2002 (18.12.2002), claims; paragraphs [0023], [0024], [0035] (Family: none)	1-7
A	JP 2007-56052 A (Dow Corning Toray Co., Ltd.), 08 March 2007 (08.03.2007), claims; examples (Family: none)	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/067541

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The invention of claim 1 is not novel, as disclosed in the documents cited in Box C (e.g., JP 2005-325314 A, JP 2000-86881 A, JP 5-59267 A, JP 9-95609 A). Therefore, the invention of claim 1 has no "special technical feature" in the meaning within PCT Rule 13.2, second sentence.

Consequently, there is no technical relationship involving one or more of the same or corresponding special technical features among the inventions of claims 1-7, and the inventions cannot be regarded as being so linked to one another as to form a single general inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C08L71/02(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K5/00(2006.01)i, C09D7/12(2006.01)i, C09D183/12(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J183/12(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（I P C）） Int.Cl. C08L1/00-101/14, C08K3/22, C08K5/00, C09D1/00-10/00, C09D101/00-201/10, C09J1/00-5/10, C09J9/00-201/10			
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 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 日本国公開実用新案公報 1 9 7 1 - 2 0 0 9 年 日本国実用新案登録公報 1 9 9 6 - 2 0 0 9 年 日本国登録実用新案公報 1 9 9 4 - 2 0 0 9 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 Y	JP 2005-325314 A（株式会社カネカ）2005.11.24, 【特許請求の範囲】、【0042】、【0085】、【0087】、【0088】、【0097】、【0098】、【0149】、【0151】、【0152】（ファミリーなし）	1-7 3	
X Y	JP 2000-86881 A（ジーイー東芝シリコーン株式会社）2000.03.28, 【特許請求の範囲】、【0028】、【0031】、【0039】、【0042】、【0057】（ファミリーなし）	1-6 3	
☒ 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 2 4 . 1 1 . 2 0 0 9		国際調査報告の発送日 0 8 . 1 2 . 2 0 0 9	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / J P） 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） 中島 玲奈 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	4 J 3 6 3 9

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
X Y	JP 5-59267 A (旭硝子株式会社) 1993. 03. 09, 【特許請求の範囲】、 【0038】、【0039】、【0041】、【0047】 (ファミリー なし)	1, 2, 4-6 3
X Y	JP 9-95609 A (旭硝子株式会社) 1997. 04. 08, 【特許請求の範囲】、 【0011】、【0044】 - 【0053】、【0058】 (ファミリー なし)	1, 2, 4-6 3
A	JP 2001-302936 A (積水化学工業株式会社) 2001. 10. 31, 【特許請 求の範囲】、【0001】、【0020】 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2002-363429 A (株式会社スリーボンド) 2002. 12. 18, 【特許請 求の範囲】、【0023】、【0024】、【0035】 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2007-56052 A (東レ・ダウコーニング株式会社) 2007. 03. 08, 【特 許請求の範囲】、実施例 (ファミリーなし)	1-7

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってP C T規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。

請求項1に係る発明は、C欄に記載の文献（例えばJP 2005-325314 A, JP 2000-86881 A, JP 5-59267 A, JP 9-95609 A）に記載されるとおり、新規でない。したがって、請求項1に係る発明は、P C T規則13.2の第2文の意味における「特別な技術的特徴」を有さない。

よって、請求項1-7に係る発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係がなく、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。