(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
2024年12月5日(05.12.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/247493 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 101/00 (2006.01) *C08L 83/04* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) *C09K 5/14* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/014209

(22) 国際出願日： 2024年4月8日(08.04.2024)

(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 2023-087807 2023年5月29日(29.05.2023) JP
PCT/JP2023/041437 2023年11月17日(17.11.2023) JP

(71) 出願人: 富士高分子工業株式会社 (FUJI POLYMER INDUSTRIES CO., LTD.) [JP/JP]; 〒4500002 愛知県名古屋市中村区名駅五丁目２１番１号ＦＵＪＩＰＯＬＹビル Aichi (JP).

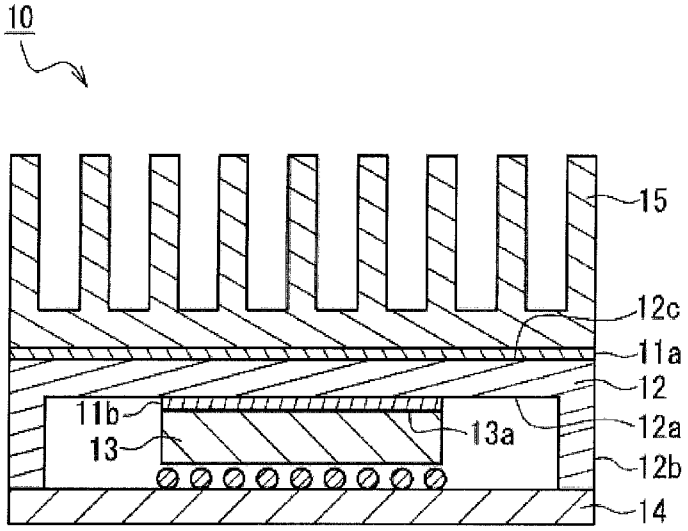
(72) 発明者: 神谷優希(KAMIYA Yuki).

(74) 代理人: 弁理士法人池内アンドパートナーズ (IKEUCHI & PARTNERS); 〒5306026 大阪府大阪市北区天満橋１丁目８番３０号ＯＡＰタワー２６階 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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,

(54) **Title:** THERMALLY CONDUCTIVE COMPOSITION, THERMALLY CONDUCTIVE SHEET USING SAME, AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(54) 発明の名称： 熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法



(57) **Abstract:** The present invention contains a matrix resin (component A) that is composed of a thermosetting resin, a curing catalyst, and thermally conductive particles. The thermally conductive particles contain the component B and the component C described below. (1) component B: 220-500 parts by mass of alumina, which has a median diameter (D50) of the volume-based cumulative particle size distribution of not less than 0.01 μm but less than 1 μm, is contained relative to 100 parts by mass of the matrix resin (2) component C: 1,900-2,500 parts by mass of aluminum nitride, which has a median diameter (D50) of 0.01 μm to 150 μm inclusive, is contained relative to 100 parts by mass of the matrix resin Consequently, the present invention provides: a thermally conductive composition which has a high thermal conductivity, a low plasticity, and good moldability; and a thermally conductive sheet which uses the same, and a production method therefor.

WO 2024/247493 A1

［続葉有］

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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

(57) 要約:熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂(A成分)と硬化触媒と熱伝導性粒子を含み、熱伝導性粒子は下記B成分とC成分を含み、(1)B成分:体積基準による累積粒度分布のD50(メジアン径)が0.01μm以上1μm未満のアルミナがマトリックス樹脂100質量部に対して220～500質量部含み、(2)C成分:D50(メジアン径)が0.01μm以上150μm以下の窒化アルミニウムをマトリックス樹脂100質量部に対して1900～2500質量部含む。これにより、熱伝導率が高く、かつ組成物の可塑度が低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法を提供する。

明　細　書

発明の名称 ：

熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法

技術分野

[0001]　本発明は、電気・電子部品等の発熱部と放熱体の間に介在させるのに好適な熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法に関する。

背景技術

[0002]　近年のＣＰＵ等の半導体の性能向上はめざましくそれに伴い発熱量も膨大になっている。そのため発熱するような電子部品には放熱体が取り付けられ、半導体と放熱部との密着性を改善する為に熱伝導性シートが使われている。機器の小型化、高性能化、高集積化に伴い熱伝導性シートには柔らかさ、高熱伝導性が求められている。従来、熱伝導性シートとして特許文献１～４等が提案されている。さらに本出願人は特許文献５において熱伝導率の高い熱伝導性シートを提案している。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特表２０２１－５１８４６６号公報

特許文献2：再表２０２０－１３７９７０号公報

特許文献3：再表２０１８－０８８４１６号公報

特許文献4：特開２０１６－２１６５２３号公報

特許文献5：特許第７０６１７３６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　しかし、従来の熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートは、熱伝導率を高くすると、組成物の可塑度が高くなり、成形加工性が悪くなるという問題があった。これは熱伝導率を高くするためには熱伝導性粒子を多量に

加える必要があり、そうすると組成物の可塑度が高くなり、成形加工性が悪くなるためである。

[0005] 本発明は前記従来の問題を解決するため、熱伝導率が高く、かつ組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明の熱伝導性組成物は、熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子を含む熱伝導性組成物であって、前記熱伝導性粒子は下記Ｂ成分とＣ成分を含み、

（１）Ｂ成分：体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１μｍ未満のアルミナがマトリックス樹脂１００質量部に対して２２０～５００質量部含み、下記Ｂ－１成分とＢ－２成分を含み、

Ｂ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上０．３μｍ未満、ＢＥＴ比表面積が９m^2／ｇ以上のアルミナがＢ成分１００質量％に対して３０～１００質量％、

Ｂ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．３μｍ以上１μｍ未満のアルミナがＢ成分１００質量％に対して０～７０質量％、

（２）Ｃ成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１５０μｍ以下の窒化アルミニウムをマトリックス樹脂１００質量部に対して１９００～２５００質量部含み、下記Ｃ－１成分とＣ－２成分を含み、

Ｃ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上３０μｍ未満、

Ｃ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が３０μｍ以上１５０μｍ以下、

であることを特徴とする。

[0007] 本発明の熱伝導性シートは、前記の熱伝導性組成物がシートに成形されていることを特徴とする。

本発明の熱伝導性シートの製造方法は、前記の熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを製造する。

発明の効果

[0008] 本発明は、前記組成とすることにより、熱伝導率が高く、かつ組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートを提供できる。すなわち、伝導性粒子の種類、粒径及び添加量を特定化することにより、熱伝導率が高く、組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物とすることができた。具体的には、前記熱伝導性組成物の硬化前の脱泡後の可塑度が好ましくは１００未満であり、好ましい熱伝導率は１４Ｗ／ｍ・Ｋ以上である。また本発明の熱伝導性シートの製造方法は、組成物の可塑度が低く、成形加工性が良好であることから、連続シート成形が可能となる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]図１は本発明の一実施形態における熱伝導性シートの使用方法を示す模式的断面図である。

[図2]図２Ａ－Ｂは本発明の一実施例における試料の熱伝導率の測定方法を示す模式的説明図である。

発明を実施するための形態

[0010] 本発明は、マトリックス樹脂と硬化触媒と熱伝導性粒子を含む熱伝導性組成物である。マトリックス樹脂は、シリコーンゴム、シリコーンゲル、アクリルゴム、フッ素ゴム、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂、アクリル樹脂、シリコーン樹脂、フッ素樹脂等の熱硬化性樹脂が好ましい。この中でもシリコーンが好ましく、エラストマー、ゲル、パテ又はグリースなどである。シリコーンの硬化システムは過酸化物、付加、縮合等いかなる方法を用いてもよい。シリコーンは耐熱性が高いことから好ましい。また、周辺への腐食性がないこと、系外に放出される副生成物が少ないこと、深部まで確実に硬化することなどの理由により付加反応型であることが好ましい。

[0011] マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対し、熱伝導性粒子は次のとおりとする。

（１）Ｂ成分：体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１μｍ未満のアルミナがマトリックス樹脂１００質量部に対して２２０～５００質量部添加する。好ましい添加量は２３０～４８０質量部であり、より好ましい添加量は２４０～４４０質量部である。

また、Ｂ成分は下記Ｂ－１成分とＢ－２成分を含む。

・Ｂ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上０．３μｍ未満、ＢＥＴ比表面積が９m^2／ｇ以上のアルミナがＢ成分１００質量％に対して３０～１００質量％である。好ましいＤ５０（メジアン径）は０．１μｍ以上０．３μｍ未満である。また好ましいＢＥＴ比表面積は９～２０m^2／ｇであり、さらに好ましくは１０～１８m^2／ｇである。なお、ＢＥＴ比表面積はＪＩＳＲ　１６２６－１９９６の規定により測定する。

・Ｂ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．３μｍ以上１μｍ未満のアルミナがＢ成分１００質量％に対して０～７０質量％である。好ましいＤ５０（メジアン径）は０．３μｍ以上１．０μｍ以下である。

（２）Ｃ成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１５０μｍ以下の窒化アルミニウムをマトリックス樹脂１００質量部に対して１９００～２５００質量部添加する。好ましいＤ５０（メジアン径）は０．１μｍ以上１２０μｍ以下である。また、好ましい添加量は１９２０～２４００質量部であり、より好ましい添加量は１９４０～２３００質量部である。

また、Ｃ成分は下記Ｃ－１成分とＣ－２成分を含む。

・Ｃ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上３０μｍ未満

・Ｃ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が３０μｍ以上１５０μｍ以下である。

[0012] 本発明では、熱伝導性粒子は平均粒子径が異なる複数種類の無機粒子を併用する。このようにすると大きな粒子の間に小さな粒子径の熱伝導性無機粒子が埋まり、最密充填に近い状態で充填でき、熱伝導性が高く、組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物が得られる。

[0013] 前記Ｃ－１成分とＣ－２成分の存在割合は質量割合で、Ｃ－２成分≦Ｃ－１成分が好ましく、さらに好ましくはＣ－２成分＜Ｃ－１成分である。これ

により、熱伝導率が高く、組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物が得られる。

また、熱伝導性組成物の硬化前の真空脱泡後の可塑度は１００未満が好ましく、より好ましくは１０～９９さらに好ましくは２０～９９、とくに好ましくは３０～９９である。これにより、組成物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物が得られる。可塑度は、JIS K 6300-3,ISO 2007:1991に従い、ウォーレス可塑度計（Wallace plastometer）を使用し、測定温度２５℃において、２枚の金属プレート間に試料を一定荷重（１００Ｎ），一定時間（１５秒）で圧縮した後の厚さ（ｔ）を圧縮前の厚さ（t_0）で割った値を可塑度（P_0＝ｔ／t_0×１００）で求める。P_0が小さいほど柔軟であることを示す。なお、可塑度（P_0）の数値が小さいことと、可塑度が低いことは同義である。

[0014] 熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導率は１４Ｗ／ｍ・Ｋ以上が好ましく、より好ましくは１４～２０Ｗ／ｍ・Ｋ、さらに好ましくは１４．５～２０Ｗ／ｍ・Ｋである。これにより熱伝導率が高く、放熱シート：ＴＩＭ(Thermal Interface Material)として好適である。

[0015] 熱伝導性組成物の硬化物のＳＨＯＲＥ　００硬さは７５以下が好ましく、より好ましくは１０～７５、さらに好ましくは１５～７２である。これにより、発熱体及び放熱体（ヒートシンク）への追従性が良好となる。

[0016] マトリックス樹脂は、付加硬化型シリコーンポリマー、過酸化物硬化型シリコーンポリマー及び縮合型シリコーンポリマーから選ばれる少なくとも一つが好ましい。

[0017] 前記マトリックス樹脂１００質量部に対し、さらにシランカップリング剤を０．１～１０質量部添加することが好ましく、より好ましくは０．５～７質量部添加する。シランカップリング剤は、熱伝導性粒子の表面に被覆され（表面処理）、マトリックス樹脂に充填されやすくなるとともに（可塑剤機能）、熱伝導性粒子へ硬化触媒が吸着されるのを防ぎ、硬化阻害を防止する効果がある。これは保存安定性に有用である。シランカップリング剤は、Ｒ

（CH_3）$_a$Ｓｉ（ＯＲ’）$_{4-a}$（Ｒは炭素数１～２０の非置換または置換有機基、Ｒ’は炭素数１～４のアルキル基、ａは０もしくは１）で示されるシラン化合物、もしくはその部分加水分解物がある。Ｒ（CH_3）$_a$Ｓｉ（ＯＲ’）$_{4-a}$（Ｒは炭素数１～２０の非置換または置換有機基、Ｒ’は炭素数１～４のアルキル基、ａは０もしくは１）で示されるアルコキシシラン化合物（以下単に「シラン」という。）は、一例としてメチルトリメトキシラン，エチルトリメトキシラン，プロピルトリメトキシラン，ブチルトリメトキシラン，ペンチルトリメトキシラン，ヘキシルトリメトキシラン，ヘキシルトリエトキシシラン，オクチルトリメトキシシラン，オクチルトリエトキシラン，デシルトリメトキシシラン，デシルトリエトキシシラン，ドデシルトリメトキシシラン，ドデシルトリエトキシシラン，ヘキサデシルトリメトキシシラン，ヘキサデシルトリエトキシシシラン，オクタデシルトリメトキシシラン，オクタデシルトリエトキシシシラン等のシラン化合物がある。前記シラン化合物は、一種又は二種以上混合して使用することができる。

[0018] 前記Ｂ成分のアルミナ（酸化アルミニウム）及びＣ成分の窒化アルミニウムなる群から選ばれる少なくとも一成分は、不定形破砕状粒子であるのが好ましい。不定形破砕状粒子は入手しやすい。以下において、不定形破砕状は単に不定形とも表示する。

[0019] 本発明の前記熱伝導性組成物はシートに成形されている熱伝導性シートであるシートであると汎用性が高く、ＴＩＭとして好適である。熱伝導性シートの厚みは０．２～１０ｍｍの範囲が好ましい。

[0020] 本発明の熱伝導性シートの製造方法は、前記熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートとする。真空脱泡は、前記熱伝導性組成物（コンパウンド）を－０．０８～－０．１　Ｐａの圧力に減圧し、５～１０分間程度置き、脱泡する。圧延はロール圧延加工、プレス加工などがあるが、ロール圧延加工は連続生産が可能であることから、ロール圧延加工が好ましい。

[0021] 前記熱伝導性組成物の絶縁破壊電圧（ＪＩＳ　Ｋ６２４９）は、７～１６

ｋＶ／ｍｍであるのが好ましい。これにより、電気的絶縁性の高い熱伝導性シートとすることができる。

[0022] 前記熱伝導性組成物の体積抵抗率（ＪＩＳ　Ｋ６２４９）は、10^{10}～10^{14}Ω・ｃｍであるのが好ましい。これにより、電気的絶縁性の高い熱伝導性シートとすることができる。

[0023] 本発明の一例として、付加反応型シリコーン組成物（未硬化組成物）の場合は、下記組成のコンパウンドが好ましい。

Ａ　マトリックス樹脂

マトリックス樹脂は、下記（Ａ１）（Ａ２）を含む。

（Ａ１）ベースポリマー成分：１分子中に少なくとも２個のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有する直鎖状オルガノポリシロキサン

（Ａ２）架橋成分：１分子中に少なくとも２個のケイ素原子に結合した水素原子を含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、前記Ａ成分中のケイ素原子結合アルケニル基１モルに対して、１モル未満の量

前記(Ａ１）（Ａ２）成分以外に反応基を持たないオルガノポリシロキサンを含んでもよい。例えば未反応シリコーンオイルであり、一例としてジメチルポリシロキサンがある。

本明細書ではベースポリマー成分（Ａ１）と架橋成分（Ａ２）と未反応シリコーンオイルとシランカップリング剤の合計で１００質量部とする。

Ｂ　熱伝導性粒子：前記のとおりである。

Ｃ　白金系金属触媒：マトリックス樹脂に対して質量単位で０．０１～１０００ｐｐｍの量

Ｄ　その他添加剤：シランカップリング剤、硬化遅延剤、着色剤等；任意量

[0024] 以下、各成分について説明する。

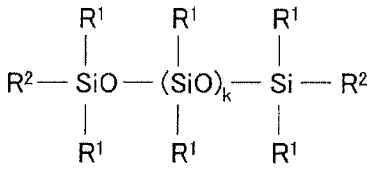
（１）ベースポリマー成分（Ａ１成分）

ベースポリマー成分は、一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を２個以上含有するオルガノポリシロキサンであり、アルケニル基を２個以上含有するオルガノポリシロキサンは本発明のシリコーンゴム組成物における

主剤（ベースポリマー成分）である。このオルガノポリシロキサンは、アルケニル基として、ビニル基、アリル基等の炭素原子数２～８、特に２～６の、ケイ素原子に結合したアルケニル基を一分子中に２個有する。粘度は２５℃で10～1000000ｍＰａ・ｓ、特に100～100000ｍＰａ・ｓであることが作業性、硬化性などから望ましい。

具体的には、下記一般式（化１）で表される１分子中に２個以上かつ分子鎖末端のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有するオルガノポリシロキサンを使用する。側鎖はアルキル基で封鎖された直鎖状オルガノポリシロキサンである。２５℃における粘度は10～1000000ｍＰａ・ｓのものが作業性、硬化性などから望ましい。なお、この直鎖状オルガノポリシロキサンは少量の分岐状構造（三官能性シロキサン単位）を分子鎖中に含有するものであってもよい。

[0025] [化1]



[0026] 式中、R^1は互いに同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基であり、R^2はアルケニル基であり、ｋは０又は正の整数である。ここで、R^1の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換の一価炭化水素基としては、例えば、炭素原子数１～１０、特に１～６のものが好ましく、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、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基、並びに、これらの基の水素原子の一部又は全部をフッ素、臭素、塩素等のハロゲン原子、シアノ基等で置換したもの、例えばクロロメチル基、クロロプロピル基、ブロモエチル基、トリフロロプロピル基等のハロゲン置換アルキ

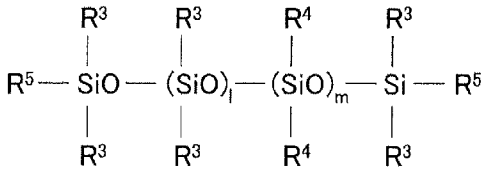
ル基、シアノエチル基等が挙げられる。R^2のアルケニル基としては、例えば炭素原子数２～６、特に２～３のものが好ましく、具体的にはビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、イソブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基等が挙げられ、好ましくはビニル基である。一般式（１）において、ｋは、一般的には$0 \leqq k \leqq 10000$を満足する０又は正の整数であり、好ましくは$5 \leqq k \leqq 2000$、より好ましくは$10 \leqq k \leqq 1200$を満足する整数である。

Ａ１成分のオルガノポリシロキサンとしては一分子中に例えばビニル基、アリル基等の炭素原子数２～８、特に２～６のケイ素原子に結合したアルケニル基を３個以上、通常、３～３０個、好ましくは、３～２０個程度有するオルガノポリシロキサンを併用しても良い。分子構造は直鎖状、環状、分岐状、三次元網状のいずれの分子構造のものであってもよい。好ましくは、主鎖がジオルガノシロキサン単位の繰り返しからなり、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖された、２５℃での粘度が10～1000000ｍＰａ・ｓ、特に100～100000ｍＰａ・ｓの直鎖状オルガノポリシロキサンである。

[0027] アルケニル基は分子のいずれかの部分に結合していればよい。例えば、分子鎖末端、あるいは分子鎖非末端（分子鎖途中）のケイ素原子に結合しているものを含んでも良い。なかでも下記一般式（化２）で表される分子鎖両末端のケイ素原子上にそれぞれ１～３個のアルケニル基を有し、但し、この分子鎖末端のケイ素原子に結合したアルケニル基が、両末端合計で３個未満である場合には、分子鎖非末端（分子鎖途中）のケイ素原子に結合したアルケニル基を、（例えばジオルガノシロキサン単位中の置換基として）、少なくとも１個有する直鎖状オルガノポリシロキサンであって、上記でも述べた通り２５℃における粘度が10～1,000,000ｍＰａ・ｓのものが作業性、硬化性などから望ましい。なお、この直鎖状オルガノポリシロキサンは少量の分岐状構造（三官能性シロキサン単位）を分子鎖中に含有するものであってもよい。

[0028]

[化2]



[0029] 式中、R^3は互いに同一又は異種の非置換又は置換一価炭化水素基であって、少なくとも１個がアルケニル基である。R^4は互いに同一又は異種の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基であり、R^5はアルケニル基であり、ｌ，ｍは０又は正の整数である。ここで、R^3の一価炭化水素基としては、炭素原子数１～１０、特に１～６のものが好ましく、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、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基、オクテニル基等のアルケニル基や、これらの基の水素原子の一部又は全部をフッ素、臭素、塩素等のハロゲン原子、シアノ基等で置換したもの、例えばクロロメチル基、クロロプロピル基、ブロモエチル基、トリフロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基やシアノエチル基等が挙げられる。

また、R^4の一価炭化水素基としても、炭素原子数１～１０、特に１～６のものが好ましく、上記R^1の具体例と同様のものが例示できるが、但しアルケニル基は含まない。R^5のアルケニル基としては、例えば炭素数２～６、特に炭素数２～３のものが好ましく、具体的には前記式（化１）のR^2と同じものが例示され、好ましくはビニル基である。ｌ，ｍは、一般的には$0<l+m\leqq 10000$を満足する０又は正の整数であり、好ましくは$5\leqq l+m\leqq 2000$、より好ましくは$10\leqq l+m\leqq 1200$で、かつ$0<l/(l+m)\leqq 0.2$、好ましくは、$0.0011\leqq l/(l+m)\leqq 0.1$を満足する整数である。

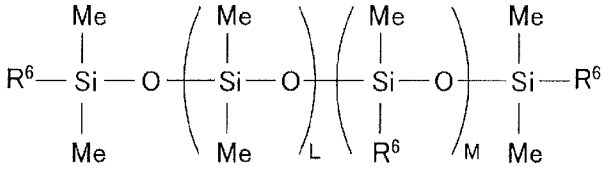
[0030] （２）架橋成分（Ａ２成分）

本発明のＡ２成分のオルガノハイドロジェンポリシロキサンは架橋剤として作用するものであり、この成分中のＳｉＨ基とＡ成分中のアルケニル基とが付加反応（ヒドロシリル化）することにより硬化物を形成するものである。かかるオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、一分子中にケイ素原子に結合した水素原子（即ち、ＳｉＨ基）を２個以上有するものであればいずれのものでもよく、このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの分子構造は、直鎖状、環状、分岐状、三次元網状構造のいずれであってもよいが、一分子中のケイ素原子の数（即ち、重合度）は2～1000、特に2～300程度のものを使用することができる。

[0031] 水素原子が結合するケイ素原子の位置は特に制約はなく、分子鎖の末端でも分子鎖非末端（分子鎖途中）でもよい。また、水素原子以外のケイ素原子に結合した有機基としては、前記一般式（化１）のR^1と同様の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基が挙げられる。

[0032] Ａ２成分のオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては下記構造のものが例示できる。

[化3]



[0033] 上記の式中、R^6は互いに同一又は異種のアルキル基、フェニル基、エポキシ基、アクリロイル基、メタアクリロイル基、アルコキシ基、水素原子であり、少なくとも２つは水素原子である。Ｌは0～1,000の整数、特には0～300の整数であり、Ｍは1～200の整数である。

[0034] （３）触媒成分（Ｃ成分）

Ｃ成分の触媒成分はヒドロシリル化反応に用いられる触媒を用いることができる。例えば白金黒、塩化第２白金、塩化白金酸、塩化白金酸と一価アルコールとの反応物、塩化白金酸とオレフィン類やビニルシロキサンとの錯体

、白金ビスアセトアセテート等の白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒などの白金族金属触媒が挙げられる。２液室温硬化シリコーンポリマーには白金族系金属触媒が含まれているが、追加の白金族系金属触媒を使用するのは硬化速度をコントロールするためである。

[0035] （４）熱伝導性粒子（Ｂ成分及びＣ成分）

本発明では、熱伝導性粒子は平均粒子径が異なる３種類以上の無機粒子を併用するのが好ましい。３種類の場合はＢ－１成分、Ｃ－１成分、Ｃ－２成分であり、４種類の場合はこれにＢ－２成分が加わる。このようにすると大きな粒子の間に小さな粒子径の熱伝導性無機粒子が埋まり、最密充填に近い状態で充填でき、熱伝導性が高くなる。

[0036] （５）その他添加剤

本発明の組成物には、必要に応じて前記以外の成分を配合することができる。例えばベンガラ、酸化チタン、酸化セリウムなどの耐熱向上剤、難燃助剤、硬化遅延剤などを添加してもよい。着色、調色の目的で有機或いは無機顔料を添加しても良い。前記のシランカップリング剤を添加してもよい。

[0037] 以下図面を用いて説明する。以下の図面において、同一符号は同一物を示す。図１は本発明の一実施形態における熱伝導性シートを放熱構造体１０に組み込んだ模式的断面図である。熱伝導性シート１１ｂは、半導体素子等の電子部品１３の発する熱を放熱するものであり、ヒートスプレッダ１２の電子部品１３と対峙する主面１２ａに固定され、電子部品１３とヒートスプレッダ２との間に挟持される。また、熱伝導シート１１ａは、ヒートスプレッダ１２とヒートシンク１５との間に挟持される。そして、熱　伝導シート１１ａ，１１ｂは、ヒートスプレッダ２とともに、電子部品１３の熱を放熱する放熱部材を構　成する。ヒートスプレッダ１２は、例えば方形板状に形成され、電子部品１３と対峙する主面１２ａと、主面１２ａの外周に沿って立設された側壁１２ｂとを有する。ヒートスプレッダ２は、側壁１２ｂに囲まれた主面１２ａに熱伝導シート１１ｂが設けられ、また主面１２ａと反対側の他面12ｃに熱伝導シート１１ａを介してヒートシンク１５が設けられる。

電子部品１３は、例えば、ＢＧＡ等の半導体素子であり、配線基板１４へ実装されている。

実施例

[0038] 以下実施例を用いて説明する。本発明は実施例に限定されるものではない。各種パラメーターについては下記記載の方法で測定した。

[0039] ＜熱伝導率＞

熱伝導性シリコーンゴムシートの熱伝導率は、ホットディスク（ＩＳＯ２２００７－２：２００８準拠）により測定した。この熱伝導率測定装置１は図２Ａに示すように、ポリイミドフィルム製センサ２を２個の試料３ａ，３ｂで挟み、センサ２に定電力をかけ、一定発熱させてセンサ２の温度上昇値から熱特性を解析する。センサ２は先端４が直径７ｍｍであり、図２Ｂに示すように、電極の２重スパイラル構造となっており、下部に印加電流用電極５と抵抗値用電極（温度測定用電極）６が配置されている。熱伝導率は以下の式（数１）で算出する。

[数1]

$$\lambda = \frac{Po \cdot D(\tau)}{\pi^{3/2} \cdot r} \cdot \frac{D(\tau)}{\Delta T(\tau)}$$

λ ：熱伝導率(W/m・K)

Po ：定電力(W)

r ：センサの半径(m)

τ ：$\sqrt{\alpha \cdot t/r^2}$

α ：試料の熱拡散率(m^2/s)

t ：測定時間(s)

$D(\tau)$ ：無次元化されたτの関数

$\Delta T(\tau)$ ：センサの温度上昇(K)

＜硬さ＞

熱伝導性シリコーンゴムシートの硬さは、ＳＨＯＲＥ　００に従い測定し

た。

＜可塑度＞

可塑度は、ＪＩＳ　Ｋ　６３００－３，ＩＳＯ　２００７：１９９１に従い、ウォーレス可塑度計（Wallace plastometer）を使用し、測定温度２３℃において、２枚の金属プレート間に試料を一定荷重（１００Ｎ），一定時間（１５秒）で圧縮した後の厚さ（ｔ）を圧縮前の厚さ（t_0）で割った値を可塑度（P_0＝ｔ／t_0×１００）で求めた。可塑度（P_0）は数値が小さいほど柔軟であることを示す。

真空前可塑度は、コンパウンドを作成した状態の可塑度である。脱泡後可塑度はコンパウンドを作成した後、－０．１Ｐａの減圧状態で５分間脱泡した後の可塑度である。コンパウンドは脱泡した後にシート成形することから、脱泡後可塑度は重要である。

＜ＢＥＴ比表面積＞

熱伝導性粒子のＢＥＴ比表面積はＪＩＳ　Ｒ　１６２６－１９９６の規定により測定した。ＢＥＴ比表面積は数値が大きいほど、熱伝導性粒子の体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）は小さい。

[0040]（実施例１～５、比較例１～５）

１．材料成分

（１）ポリオルガノシロキサン（Ａ成分）

市販のポリオルガノシロキサンを含む２液室温硬化シリコーンポリマー（シリコーン成分）を使用した。一方の液（Ａ液）には、ベースポリマー成分（Ａ成分のうちのＡ１成分）と白金族系金属触媒が含まれており、他方の液（Ｂ液）には、ベースポリマー成分（Ａ成分のうちのＡ１成分）と架橋剤成分（Ａ成分のうちのＡ２成分）であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンが含まれる。Ａ液とＢ液の比率は、質量比でＡ：Ｂ＝１００：１００である。

（２）熱伝導性粒子（Ｂ成分）

表１に記載の熱伝導性粒子を使用した。平均粒子径は、レーザー回折光散

乱法による粒度分布測定において、体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）である。この測定器としては、例えば堀場製作所社製のレーザー回折／散乱式粒子分布測定装置ＬＡ－９５０Ｓ２がある。表中のμｍの前の数値は各粒子の平均粒子径である。

（３）熱伝導性粒子（Ｃ成分）

表１に記載の熱伝導性粒子を使用した。平均粒子径は、レーザー回折光散乱法による粒度分布測定において、体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）である。この測定器としては、例えば堀場製作所社製のレーザー回折／散乱式粒子分布測定装置ＬＡ－９５０Ｓ２がある。表中のμｍの前の数値は各粒子の平均粒子径である。また表中のAlNは窒化アルミニウムの略語である。

（４）白金族系金属触媒（Ｃ成分）

追加の白金族系金属触媒として、白金－ビニルジシロキサン錯体を使用した。尚、上記の通り２液室温硬化シリコーンポリマー（シリコーン成分）には白金族系金属触媒が含まれている。各実施例のシリコーン組成物の調製に際し、ポリオルガノシロキサンが十分に硬化するように、追加の白金族系金属触媒を添加した。

（５）添加剤１

未反応シリコーンオイルとしてジメチルポリシロキサン（ブルックリンフィールド型回転粘度計 SP No.2を使用し、25℃における粘度：１００ｍｍ^2/ｓ）を使用した。

（６）添加剤２

シランカップリング剤としてデシルトリメトキシシランを使用した。

[0041] ２．コンパウンド

各材料について前記表１に示す量を計量し、それらを混合装置に入れてコンパウンドとした。表１において、各材料の量を、シリコーン成分（２液室温硬化シリコーンポリマー）を１００質量部(100g)とした場合の量（質量部）で記載している。このコンパウンドは－０．１Ｐａの減圧状態で５分間脱

泡した。

[0042] ３．シート成形加工

離型処理をしたポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルムで前記コンパウンドを挟み込み、等速ロールにて、温度２３℃、ロール速度０．５ｍ／分、厚み２．０ｍｍのシート状に圧延成形し、引き続き１００℃、１５分で加熱硬化して熱伝導性シリコーンゴムシートを得た。成形加工性は前記条件で成形できた場合「可能」、できない場合は「NG」と判断した。

以上の条件と結果を表１～２に示す。表１～２においては、ベースポリマー成分（Ａ１）と架橋成分（Ａ２）と未反応シリコーンオイルとシランカップリング剤の合計で１００質量部としたときの各成分の添加量を示す。

[0043]

[表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
A:ﾏﾄﾘｯｸｽ樹脂, 2 液硬化型ｼﾘｺｰﾝﾎﾟﾘﾏｰ(g)	44.5	92.5	42.8	42.8	42.8
A:未反応オイル(g)	50	—	50	50	50
A:シランカップリング剤(g)	5	7	7	7	7
白金触媒(g)	0.5	0.5	0.2	0.2	0.2
B-1:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.16μm, BET 比表面積 13m²/g(g)	150	150	—	—	—
B-1:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.21μm, BET 比表面積 11m²/g (g)	—	—	300	400	90
B-2:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.3μm, BET 比表面積 7m²/g (g)	100	150	—	—	180
B-2:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.88μm, BET 比表面積 16m²/g (g)	—	—	—	—	—
C-1:不定形 AlN, D50=1μm(g)	450	450	500	400	400
C-1:不定形 AlN, D50=20μm(g)	750	700	1000	700	900
C-2:不定形 AlN, D50=70μm(g)	—	—	700	—	—
C-2:不定形 AlN, D50=84μm(g)	—	—	—	1000	800
C-2:不定形 AlN, D50=108μm(g)	850	800	—	—	—
フィラー合計質量(g)	2300	2250	2500	2500	2370
組成物合計質量(g)	2400	2350	2600	2600	2470
(B-1)+(B-2)アルミナ合計質量(g)	250	300	300	400	270
(B-1)/[(B-1)+(B-2)]割合(%)	60	50	100	100	33.3
(C-1)+(C-2)AlN 合計質量(g)	2050	1950	2200	2100	2100
(C-1)質量(g)	1200	1150	1500	1100	1300
(C-2)質量(g)	850	800	700	1000	800
硬さ(SHORE 00)	67	66	57	61	70
熱伝導率(W/mK)	14.5	15.0	15.2	15.5	14.5
硬化前可塑度	86.1	88.3	89.0	84.0	98.8
成形加工性	可能	可能	可能	可能	可能

[0044]

[表2]

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
A:ﾏﾄﾘｯｸｽ樹脂, 2 液硬化型ｼﾘｺｰﾝﾎﾟﾘﾏｰ(g)	92.5	92.5	42.8	42.8	94.8
A:未反応オイル(g)	—	—	50	50	
A:シランカップリング剤(g)	7	7	7	7	5
白金触媒(g)	0.5	0.5	0.2	0.2	0.2
B-1:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.16μm, BET 比表面積 13m²/g (g)	—	—	200	550	300
B-1:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.21μm, BET 比表面積 11m²/g (g)	—	—	—	—	—
B-2:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.3μm, BET 比表面積 7m²/g (g)	300	—	—	—	—
B-2:不定形ｱﾙﾐﾅ, D50=0.88μm, BET 比表面積 16m²/g (g)	—	300	—	—	—
C-1:不定形 AlN, D50=1μm(g)	450	450	400	400	400
C-1:不定形 AlN, D50=20μm(g)	800	700	700	700	700
C-2:不定形 AlN, D50=70μm(g)	—	—	—	—	—
C-2:不定形 AlN, D50=84μm(g)	—	—	900	800	700
C-2:不定形 AlN, D50=108μm(g)	800	800	—	—	—
フィラー合計質量(g)	2350	2250	2200	2450	2100
組成物合計質量(g)	2450	2350	2300	2550	2200
(B-1)+(B-2)アルミナ合計質量(g)	300	300	200	550	300
(B-1)/[(B-1)+(B-2)]割合(%)	0	0	100	100	100
(C-1)+(C-2)AlN 合計質量(g)	2050	1950	2000	1900	1800
(C-1)質量(g)	1250	1150	1100	1100	1100
(C-2)質量(g)	800	800	900	800	700
硬さ(SHORE 00)	—	—	—	67	70
熱伝導率(W/mK)	—	—	—	12.7	12.3
硬化前可塑度	100	100	100	78.9	54
成形加工性	NG	NG	NG	可能	可能

[0045] 表１～２に示すとおり、実施例１～５は熱伝導率が高く、かつ組成物の脱泡後の可塑度（硬化前可塑度）が低いことが確認できた。

これに対して比較例１は、Ｂ－１成分が無いことにより可塑度が上昇し、成形加工性はNGであった。比較例２は、Ｂ－１成分が無く、ＢＥＴ比表面積だけ大きくても可塑度が上昇し、成形加工性はNGであった。比較例３は、Ｂ成分が下限値を下回り、可塑度が上昇し、成形加工性はNGであった。比較例４は、Ｂ成分が上限値を上回り、熱伝導率が低下した。比較例５は、Ｃ成分

が下限値を下回り、熱伝導率が低下した。

産業上の利用可能性

[0046] 本発明の熱伝導性組成物及び熱伝導性シートは、電気・電子部品等の発熱部と放熱体の間に介在させる放熱シート：ＴＩＭ(Thermal Interface Material)として好適である。

符号の説明

[0047] １　熱伝導率測定装置

２　センサ

３ａ，３ｂ　試料

４　センサの先端

５　印加電流用電極

６　抵抗値用電極（温度測定用電極）

１０　放熱構造体

１１ａ，１１ｂ　熱伝導性シート

１２　ヒートスプレッダ

１３　電子部品

１４　配線基板

１５　ヒートシンク

請求の範囲

[請求項1] 熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子を含む熱伝導性組成物であって、

前記熱伝導性粒子は下記Ｂ成分とＣ成分を含み、

（１）Ｂ成分：体積基準による累積粒度分布のＤ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１μｍ未満のアルミナがマトリックス樹脂１００質量部に対して２２０～５００質量部含み、下記Ｂ－１成分とＢ－２成分を含み、

Ｂ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上０．３μｍ未満、ＢＥＴ比表面積が９m^2／ｇ以上のアルミナがＢ成分１００質量％に対して３０～１００質量％、

Ｂ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．３μｍ以上１μｍ未満のアルミナがＢ成分１００質量％に対して０～７０質量％、

（２）Ｃ成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上１５０μｍ以下の窒化アルミニウムをマトリックス樹脂１００質量部に対して１９００～２５００質量部含み、下記Ｃ－１成分とＣ－２成分を含み、

Ｃ－１成分：Ｄ５０（メジアン径）が０．０１μｍ以上３０μｍ未満、

Ｃ－２成分：Ｄ５０（メジアン径）が３０μｍ以上１５０μｍ以下、

であることを特徴とする熱伝導性組成物。

[請求項2] 前記Ｃ－１成分とＣ－２成分は質量割合で、Ｃ－２成分≦Ｃ－１成分である請求項１に記載の熱伝導性組成物。

[請求項3] 前記熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導率は１４Ｗ／ｍ・Ｋ以上である請求項１又は２に記載の熱伝導性組成物。

[請求項4] 前記熱伝導性組成物の硬化物のＳＨＯＲＥ　００硬さが７５以下である請求項１～３のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項5] 前記マトリックス樹脂は、付加硬化型シリコーンポリマー、過酸化

物硬化型シリコーンポリマー及び縮合型シリコーンポリマーから選ばれる少なくとも一つである請求項１～４のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項6] 前記マトリックス樹脂１００質量部に対し、さらにシランカップリング剤を０．１～１０質量部含む請求項１～５のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物。

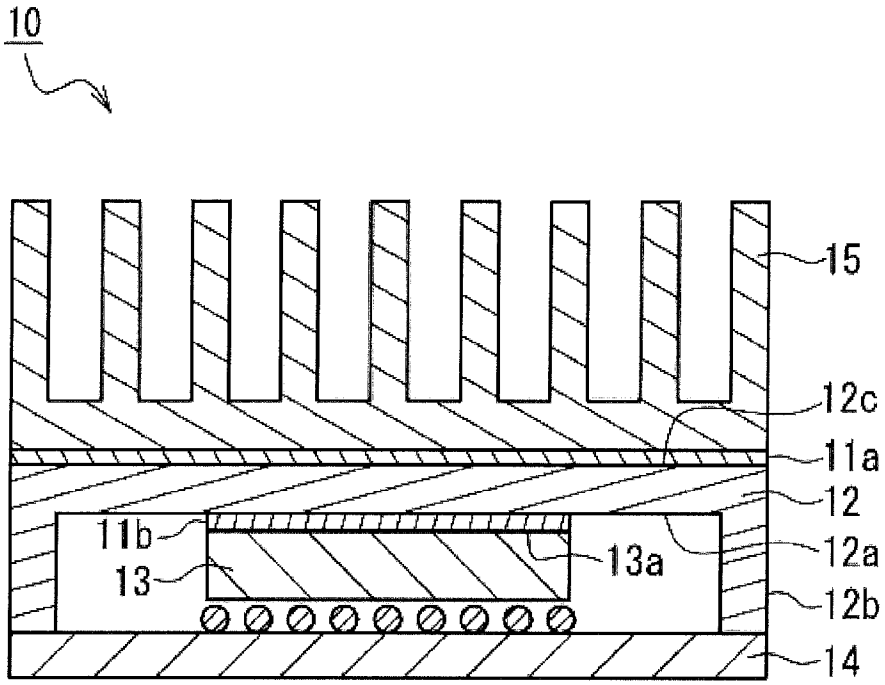
[請求項7] 前記Ｂ成分のアルミナ及びＣ成分の窒化アルミニウムなる群から選ばれる少なくとも一成分は、不定形破砕状粒子である請求項１～６のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物はシートに成形されていることを特徴とする熱伝導性シート。

[請求項9] 前記熱伝導性シートの厚みは０．２～１０ｍｍの範囲である請求項８に記載の熱伝導性シート。

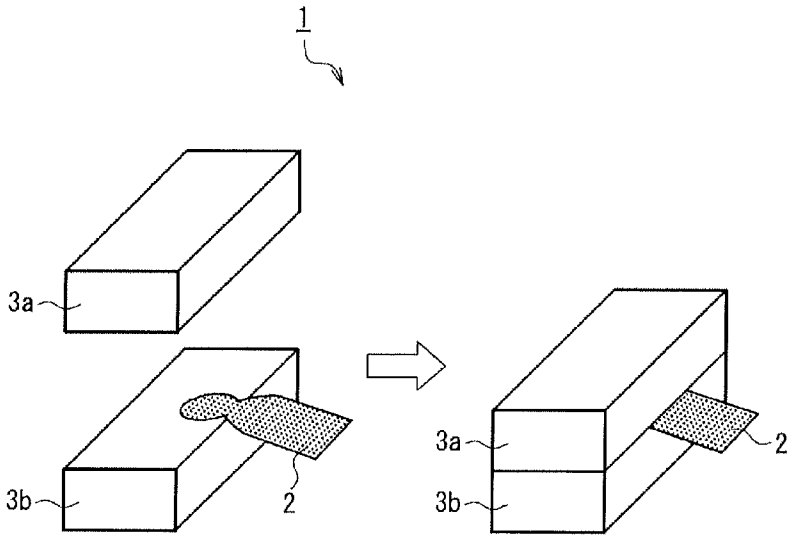
[請求項10] 請求項１～７のいずれか１項に記載の熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを製造することを特徴とする熱伝導性シートの製造方法。

[図1]

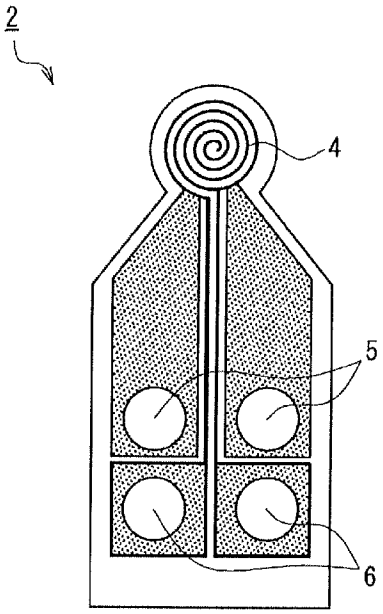


[図2]

A



B



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/014209

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 101/00(2006.01)i; ***C08K 3/22***(2006.01)i; ***C08L 83/04***(2006.01)i; ***C09K 5/14***(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08L83/04; C08K3/22; C09K5/14 101E

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)

C08L101/00; C08K3/22; C08L83/04; C09K5/14

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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 2013-147600 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 01 August 2013 (2013-08-01)	1-10
A	JP 7217079 B1 (FUJI POLYMER INDUSTRIES CO., LTD.) 02 February 2023 (2023-02-02)	1-10
A	WO 2020/137086 A1 (FUJI POLYMER INDUSTRIES CO., LTD.) 02 July 2020 (2020-07-02)	1-10
A	WO 2022/264790 A1 (DEXERIALS CORP.) 22 December 2022 (2022-12-22)	1-10

☐ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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
30 April 2024	**14 May 2024**
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/JP2024/014209

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2013-147600 A	01 August 2013	CN 103214853 A	
		TW 201341470 A	
JP 7217079 B1	02 February 2023	WO 2023/135857 A1	
		TW 202328344 A	
WO 2020/137086 A1	02 July 2020	US 2021/0017437 A1	
		EP 3753993 A1	
		KR 10-2020-0125685 A	
		CN 112041411 A	
		TW 202024238 A	
WO 2022/264790 A1	22 December 2022	JP 6960554 B1	
		TW 202307099 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/014209

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 101/00(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08L83/04; C08K3/22; C09K5/14 101E

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））

C08L101/00; C08K3/22; C08L83/04; C09K5/14

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４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 2013-147600 A (信越化学工業株式会社) 01.08.2013 (2013-08-01)	1-10
A	JP 7217079 B1 (富士高分子工業株式会社) 02.02.2023 (2023-02-02)	1-10
A	WO 2020/137086 A1 (富士高分子工業株式会社) 02.07.2020 (2020-07-02)	1-10
A	WO 2022/264790 A1 (デクセリアルズ株式会社) 22.12.2022 (2022-12-22)	1-10

☐ 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
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
30.04.2024	14.05.2024

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）
松元　洋 4W 4166
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/JP2024/014209

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2013-147600 A	01.08.2013	CN 103214853 A	
		TW 201341470 A	
JP 7217079 B1	02.02.2023	WO 2023/135857 A1	
		TW 202328344 A	
WO 2020/137086 A1	02.07.2020	US 2021/0017437 A1	
		EP 3753993 A1	
		KR 10-2020-0125685 A	
		CN 112041411 A	
		TW 202024238 A	
WO 2022/264790 A1	22.12.2022	JP 6960554 B1	
		TW 202307099 A	