

(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
2016 年 11 月 24 日(24.11.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/185936 A1

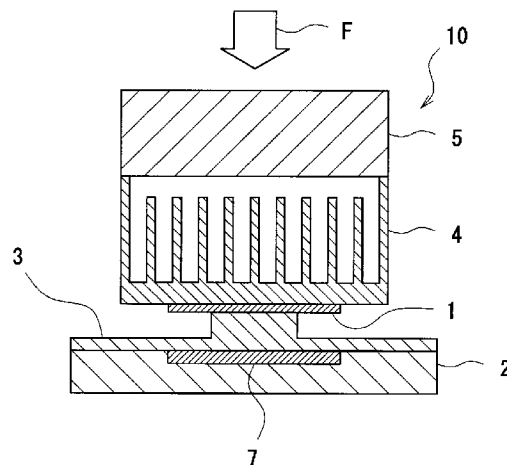
- (51) 国際特許分類:
C08L 91/06 (2006.01) C08K 5/10 (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/063789
- (22) 国際出願日: 2016 年 5 月 9 日(09.05.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-100566 2015 年 5 月 15 日(15.05.2015) JP
- (71) 出願人: ポリマテック・ジャパン株式会社
(POLYMATECH JAPAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒
3380837 埼玉県さいたま市桜区田島八丁目 10
番 1 号 Saitama (JP).
- (72) 発明者: 並木 一浩(NAMIKI, Kazuhiro); 〒3380837
埼玉県さいたま市桜区田島八丁目 10 番 1 号
ポリマテック・ジャパン株式会社内 Saitama (JP).
菊地 梢(KIKUCHI, Kozue); 〒3380837 埼玉県さ
いたま市桜区田島八丁目 10 番 1 号 ポリマ
テック・ジャパン株式会社内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 大竹 正悟(OHTAKE, Seigo); 〒1060044 東
京都港区東麻布二丁目 3 3 番 5 号 第 4 松坂ビ
ル 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.
- (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).

[続葉有]

(54) Title: THERMALLY CONDUCTIVE COMPOSITION AND THERMALLY CONDUCTIVE PASTE

(54) 発明の名称: 熱伝導性組成物および熱伝導性ペースト

[図1]



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a thermally conductive composition which has none of the concerns of low molecular siloxanes, by which a thermally conductive filler can be filled at a high density, which exhibits a good handleability at ordinary temperatures and which softens at a usage temperature. Provided is a thermally conductive composition which contains a thermally conductive filler and a binder constituted from a phase change material having a melting point of 35-120°C, a non-ionic surfactant and a non-volatile component, wherein the content of the phase change material is 10 parts by mass or higher, the content of the non-ionic surfactant is 60 parts by mass or higher and the content of the non-volatile component is 30 parts by mass or less, each relative to 100 parts by mass of the binder. This thermally conductive composition is a solid and exhibits excellent handleability at ordinary temperatures, softens, melts and binds tightly to an adherend when actually used, and thus can reduce thermal resistance.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2016/185936 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

低分子シロキサン懸念がなく、熱伝導性充填材を高充填でき、常温では取扱い性が良く、使用温度で軟化する熱伝導性組成物を提供すること。35℃～120℃の融点を有するフェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤と不揮発成分とでなるバインダーと、熱伝導性充填材と、を含む熱伝導性組成物であって、前記バインダー100質量部に占めるフェイズチェンジ物が10質量部以上、ノニオン界面活性剤が60質量部以上、不揮発成分が30質量部以下である熱伝導性組成物とした。この熱伝導性組成物によれば、常温において固体であり取扱い性にすぐれ、実使用時には軟化、溶融して被着体に密着し、熱抵抗を低くできる。

明 細 書

発明の名称：熱伝導性組成物および熱伝導性ペースト

技術分野

[0001] 本発明は発熱体と放熱体の間に配置して用いられる熱伝導性組成物に関する。より詳しくは所定の融点を有するフェイズチェンジ物を含有する熱伝導性組成物に関する。

背景技術

[0002] 電子機器では、半導体素子や機械部品等の発熱体から生じる熱を放熱するために、ヒートシンクなどの放熱体に取り付けられるが、この放熱体への熱の伝達を効率よくする目的で、発熱体と放熱体との間に熱伝導性部材を挟んで用いている。この熱伝導性部材には、熱伝導性シート（固体）や熱伝導性グリス（液体）、硬化型熱伝導性グリス（液状から固体）などの種類があり用途に応じて使い分けられている。熱伝導性グリスに関する技術は、例えば特許第4 7 1 3 1 6 1号（特許文献1）に記載がある。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特許第4 7 1 3 1 6 1号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら熱伝導性グリスは常温でペースト状であり、発熱体と放熱体との間の隙間が狭いときなどは塗布作業が困難であり、また所望の塗布部位以外に誤って付着し易いといった取扱いに対する不都合が指摘される場合がある。発熱体と放熱体との間に介在させる作業において常温で固体であれば取扱いが容易であることから、常温では固体でありながら、発熱体に組み込まれた後は、吸熱し軟化することで被着体に密着し、熱抵抗を低くできる性質を有する熱伝導性部材の開発が進められている。

[0005] ところが、こうした性質を発現する物質として、熱可塑性シリコーン材料

を用いることは低分子シロキサンの発生が懸念されるという問題がある。また、ワックス系材料を用いることは熱伝導性材料を高充填できずに熱伝導率を高め難いという問題がある。

[0006] そこで本発明は、こうした課題を解決するためになされたものである。すなわち、低分子シロキサンの懸念がなく、熱伝導性充填材を高充填でき、常温では取扱い性が良く、使用温度で軟化する熱伝導性組成物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

[0007] 本発明は、上記目的を達成するために、次に記す熱伝導性組成物と熱伝導性ペーストを提供する。

[0008] 即ち、本発明は35℃～120℃の融点を有するフェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤と不揮発成分とでなるバインダーと、熱伝導性充填材と、を含む熱伝導性組成物であって、前記バインダー100質量部に占めるフェイズチェンジ物が10質量部以上、ノニオン界面活性剤が60質量部以上、不揮発成分が30質量部以下である熱伝導性組成物である。

[0009] 35℃～120℃の融点を有するフェイズチェンジ物を含むため、常温で固体であり、発熱体からの熱を奪ってフェイズチェンジ物が溶融する熱伝導性組成物とすることができる。また、ノニオン界面活性剤を含むため、フェイズチェンジ物と熱伝導性充填材とを好適に分散させて混合することができる。加えて、不揮発成分を含むため、所望の性質にアレンジされた熱伝導性組成物とすることができる。

[0010] バインダー100質量部に占めるフェイズチェンジ物が10質量部以上、ノニオン界面活性剤が60質量部以上、不揮発成分が30質量部以下であるため、フェイズチェンジ物と熱伝導性充填材の双方を好適な分散状態で熱伝導性組成物中に高充填させることができる。即ち、ノニオン界面活性剤を60質量部以上含むことで、熱抵抗を極めて低くできる。また、このノニオン界面活性剤との組合せにおいて所定のフェイズチェンジ物を10質量部以上含むことで、高い熱伝導性と相変化の性質を発現することができる。

- [0011] フェイズチェンジ物は、パラフィン系ワックス、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックスから選ばれる一種または組合せとすることができる。フェイズチェンジ物をパラフィン系ワックス、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックスから選ばれる一種または組合せとすることで、常温で固体でありながら、実際の使用の際には溶融して発熱体や放熱体に密着させることができる。これにより熱伝導率の高い熱伝導性組成物とすることができる。
- [0012] ノニオン界面活性剤が、脂肪族カルボン酸エステルまたは芳香族カルボン酸エステルから選ばれる一種または組合せとすることができる。ノニオン界面活性剤を脂肪族カルボン酸エステルまたは芳香族カルボン酸エステルから選ばれる一種または組合せとすることで、フェイズチェンジ物と熱伝導性充填材との親和性を高めることができる。
- [0013] 熱伝導性充填材の含有量が熱伝導性組成物 100 体積部に対して 50～90 体積部である熱伝導性組成物とすることができる。熱伝導性充填材の占める割合が 50～90 体積%であるため、熱伝導性充填剤の充填量が多く、熱伝導性が高い熱伝導性組成物とすることができる。また、厚さ 20～40 μm での熱抵抗値が 0.080～0.150 $^{\circ}\text{C}/\text{W}$ である熱伝導性組成物とすることができる。厚さ 20～40 μm での熱抵抗値を 0.080～0.150 $^{\circ}\text{C}/\text{W}$ としたため、熱伝導性に優れた熱伝導性組成物である。
- [0014] 上記何れかの熱伝導性組成物と、溶剤とを含み、常温でペースト状ないし液状である熱伝導性ペーストとすることができる。上記何れかの熱伝導性組成物と、溶剤とを含み、常温でペースト状ないし液状である熱伝導性ペーストとしたため、発熱体と放熱体との間に熱伝導性組成物を介在させる際に、固体では不都合な場合にも対応することができる。即ち、熱伝導性グリスを塗布する装置のような従来から用いられている塗布装置や塗布設備、塗布方法にも対応して使用することができる。

また、ペースト状ないし液状の熱伝導性ペーストは被着体に密着させやすい点で熱伝導性組成物よりも好ましい。予め発熱体や放熱体と一体にしてお

くような場合に、例えば放熱体と熱伝導性組成物を一体にしたものを発熱体に取り付ける場合には、常温で固体の熱伝導性組成物は密着性が弱いため、被着体から剥がれたり、ずれたりし易いのと比べて、熱伝導性ペーストであれば被着体に密着させやすい。

発明の効果

[0015] 本発明の熱伝導性組成物によれば、低分子シロキサン懸念がなく、熱伝導性が高く、常温での取扱い性に優れる熱伝導性組成物である。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]熱抵抗試験機の模式断面図である。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明の実施形態を説明する。本発明の熱伝導性組成物は、35℃～120℃の融点を有するフェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤と任意の不揮発成分とでなるバインダーと、熱伝導性充填材と、を含んで構成している。以下に熱伝導性組成物に含まれる構成要素について説明する。

[0018] フェイズチェンジ物： フェイズチェンジ物は、35℃～120℃の融点を有する物質である。熱伝導性組成物に要求される性質は、常温で固体であり、実利用の際には発熱する電子部品の熱を吸収して軟化または溶融するものであることから、この性質を満たすための主要部となるものである。

[0019] したがって、融点が35℃未満では、常温でも過度に柔軟になり、取扱い性が悪くなるおそれがある。一方、120℃を超える場合には、特に高温で動作する特殊な使用用途でのみ利用可能で、汎用性の点で劣ることになる。融点の上限については、より好ましくは個別の仕様に依じて決定されるが、機器の動作に支障のない温度とすることが求められ一般的な用途であれば、80℃以下とすることが好ましい。

[0020] 融点については、溶け始めから溶け終わりまでの温度範囲が狭いことが好ましい。この温度範囲が狭い方が速やかに相変化して被着体に密着するためである。この温度範囲が狭い材料としては、分子量分布が狭い物質や、結晶性を有する物質を挙げることができる。

なお、本発明において融点とは、示差走査熱量分析（DSC）で測定したDSC曲線の吸熱ピークの温度である。また、融点の温度範囲とは、DSC曲線のベースラインと、ベースラインから吸熱ピークへ向かう変曲点における接線との交点の温度と、吸熱ピークからベースラインへ向かう変曲点における接線との交点の温度の範囲である。

[0021] こうしたフェイズチェンジ物としては、非シリコン系物質が好ましく、より具体的には、パラフィン系ワックス、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックスなどの種々のワックス状物質を挙げることができる。

[0022] フェイズチェンジ物の含有量は、フェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤、不揮発成分からなるバインダー100質量部において10質量部以上である。10質量部以上であれば、熱伝導性組成物において相変化の性質を備えることができるためである。また、ノニオン界面活性剤の含有量が60質量部以上であるため、必然的にフェイズチェンジ物の含有量は40質量部以下となることから、10～40質量部の範囲で含まれることとなる。フェイズチェンジ物の含有量は40質量部を超えると、相対的にノニオン界面活性剤の含有量が少なくなり熱抵抗が悪化するおそれがある。

[0023] ノニオン界面活性剤： ノニオン界面活性剤は、熱伝導性充填材の充填性を高める主たる成分である。こうしたノニオン界面活性剤としては、ポリオキシチレン型、アルキルエーテル型、脂肪族カルボン酸エステル型、芳香族カルボン酸エステル型、特殊フェノール型、アミド型、アルキルグルコシド型などを挙げることができる。これらの中では、芳香族カルボン酸エステル型またはポリオキシエチレン型を用いると、耐熱性を高めることができる点で好ましい。また、脂肪族カルボン酸エステル型を用いると、熱伝導性充填材の充填性を高めることができる点で好ましい。換言すれば、脂肪族カルボン酸エステル型を加えることで低粘度化が可能であるということであり、熱伝導性組成物を加熱して軟化したときの粘度を低くすることができる。したがって、一定荷重で厚みを薄くすることができることから、熱抵抗を低くすることができる。

[0024] 芳香族カルボン酸エステルとしては、フタル酸エステル、トリメチリット酸エステル、ピロメリット酸エステルなどが好適である。また、ポリオキシエチレン型としては、ポリオキシエチレンアルキルエーテルやポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルアミンなどが好適である。脂肪族カルボン酸エステルとしては、ラウリン酸ソルビタン、トリオレイン酸ソルビタン、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート、ポリエチレングリコールモノラウレート、ポリエチレングリコールモノパルミテート、ポリエチレングリコールモノステアレート、ポリエチレングリコールモノオレエート、ペンタエリストールモノオレエート、オレイン酸モノグリセリル、ペンタオレイン酸デカグリセリルが好適である。

[0025] ノニオン界面活性剤の含有量は、バインダー 100 質量部中に 60 質量部以上である。一方、フェイズチェンジ物の含有量が 10 質量部以上であるから必然的にノニオン界面活性剤の含有量は 90 質量部以下となり、60～90 質量部の範囲で含まれることとなる。好ましい含有量は 75～85 質量部である。含有量が 60 質量部未満になると、熱抵抗値が悪くなるおそれがある。一方、90 質量部を超えると、相対的にフェイズチェンジ物の含有量が 10 質量部未満となるため、相変化の性質が発現しなくなるおそれがある。75～85 質量部であれば相変化を顕著に示し、熱抵抗も低くすることができる。

[0026] ノニオン界面活性剤は、陰イオン系界面活性剤や陽イオン系界面活性剤、両性界面活性剤、フッ素系化合物、高分子系分散剤などとともに一般的に分散剤としての利用が知られている。しかしながら、主成分の性質に影響が出ないように全組成に対して 10 質量%以下の添加が推奨されており、30 質量%を超えて用いられることはほとんどなかった。ところが、発明者らが鋭意検討したところ、所定のフェイズチェンジ物との関係ではノニオン界面活性剤の含有量を多くすることで熱伝導性充填材の含有量も多くできることを

見出したのである。

[0027] ノニオン界面活性剤のバインダー 100 質量部に対する含有量を 60～90 質量部と高めることで、熱伝導性充填材の充填量を高めることができる理由は、以下のとおりであると考えられる。すなわち、金属の酸化被膜、酸化物、水酸化物のように熱伝導性充填材は親水性の表面を有することが多いが、こうした親水性の表面に対してノニオン界面活性剤の親水基部分が吸着しやすい。また、ノニオン界面活性剤のもう一方の親油性部分はフェイズチェンジ物との親和性が良い。そのため、ノニオン界面活性剤を介して熱伝導性充填材とフェイズチェンジ物とが結びつき易いからである。そうした一方で、陽イオン界面活性剤や陰イオン界面活性剤は固体の塩が多く選択肢が少ないことに加え、液状のものについてもバインダーとして熱伝導性充填材を繋ぎとめる性質が小さい傾向があり、熱伝導性充填材が高充填できなかつたり、粘度が高くなつたりと、熱伝導性組成物として要求される物性が得られにくい。

[0028] ノニオン界面活性剤は、充填性を高めるという目的のために、常温での粘度が 10～10,000 mPa・s であることが好ましい。また、ノニオン界面活性剤の相対的な含有量が多いため、熱伝導性組成物の安定性を考慮すると非反応性であることが好ましい。粘度が 10 mPa・s 未満では、揮発性が高いおそれがあり、使用をはじめてから経時で特性が変化するおそれがある。また、分子量が小さいことに起因して、熱伝導性組成物が脆くなるおそれがある。一方、粘度が 10,000 mPa・s を超えると、熱伝導性充填材を高充填できなくなるとともに、熱伝導性組成物が硬くなり加熱しても十分に軟化しないおそれがある。

[0029] ノニオン界面活性剤は、フェイズチェンジ物と混合して均一に混ざるものであることが好ましく、フェイズチェンジ物に応じた HLB 値を混ざりやすさの指標とすることができる。例えばパラフィン系ワックスやポリオレフィン系ワックスに対しては HLB 値が 1.7～16.7 のノニオン界面活性剤が均一に混合することができ好ましい。

[0030] 不揮発成分： バインダーとしてフェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤以外の成分として不揮発成分を含ませることができる。不揮発成分としては、融点が35℃未満の可塑剤等の液状成分や、融点が120℃を超える樹脂成分が挙げられる。融点が35℃未満の液状成分には、例えばパラフィン系オイルや、エステル系オイルを挙げることができる。これらのオイルを添加することで、熱伝導性組成物の常温および加熱状態での柔軟性を高めることができる。なお、融点が35℃未満の液状成分であっても、使用時に揮発して残存しない溶剤は不揮発成分には含まれない。

[0031] 融点が120℃を超える樹脂成分としては、エチレン-プロピレンゴム（EPR、EPDM）、エチレン-ブチレン共重合体、エチレン-ブチレン-スチレン共重合体、エチレン-プロピレン-スチレン共重合体、水素化ポリアルキルジエンモノオール、水素化ポリアルキルジエンジオール、水素化ポリイソプレなどを例示することができる。樹脂成分を添加することで、熱伝導性組成物の強度を高めることができる。この樹脂成分は、ノニオン界面活性剤や他の成分と相溶する事が好ましい。

[0032] 不揮発成分の含有量は、バインダー100質量部のうち、30質量部以下であり、含ませないことも可能である。即ち、バインダー100質量部のうち、フェイズチェンジ物が10質量部以上で、かつノニオン界面活性剤が60質量部以上であることから残された成分である不揮発成分は30質量部以下となる。融点が120℃を超える樹脂成分の場合は、多量に含むと熱伝導性組成物が硬くなりすぎるおそれがあるため、バインダー100質量部中で5質量部以下とすることが好ましい。

[0033] 不揮発成分には、生産性、耐候性、耐熱性など種々の性質を高める目的で種々の添加材を含ませることができる。そうした添加材を例示すれば、補強材、着色剤、耐熱向上剤、カップリング剤、難燃剤、劣化防止剤など、種々の機能性向上剤が挙げられる。

[0034] 熱伝導性充填材： 熱伝導性充填材は、文字どおり熱伝導性組成物に熱伝導性を付与する物質である。熱伝導性充填材には、例えば、金属や炭素、金

属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属水酸化物などからなる微細粉が挙げられる。金属としては、銅、アルミニウムなどが挙げられ、炭素としてはピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、樹脂繊維を炭化処理した繊維、樹脂繊維を黒鉛化処理した繊維や、グラファイト粉末などが挙げられる。耐電圧性が求められる場合には、金属や炭素以外の熱伝導性充填材を用いることが好ましい。

[0035] 金属酸化物としては、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化鉄、石英などが挙げられ、金属窒化物としては、窒化ホウ素、及び窒化アルミニウムなどが挙げられる。また、金属炭化物としては、炭化ケイ素などが挙げられ、金属水酸化物としては、水酸化アルミニウムなどが挙げられる。熱伝導性充填材の形状としては、球状であっても球状以外の形状であっても良いが、球状の粒子の方が高充填させやすいため、熱伝導性を高めやすい点で好ましい。

[0036] 熱伝導性充填材の平均粒径としては、 $0.3 \sim 10 \mu\text{m}$ とすることが好ましい。平均粒径が $0.3 \mu\text{m}$ 未満では熱伝導性充填材をバインダー中に高充填し難くなる。一方、平均粒径が $10 \mu\text{m}$ を超える場合には、加熱状態においても熱伝導性組成物の圧縮性が悪くなり、熱抵抗を下げ難いおそれがある。なお、本明細書、特許請求の範囲等という平均粒径は、別途説明のない限りレーザー回折散乱法で測定した体積基準の平均粒径である。

[0037] 上記熱伝導性充填材には、 $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ の熱伝導性充填材や、 $5 \sim 20 \mu\text{m}$ の熱伝導性充填材を所定量含むことが好ましい。複数の粒径の異なる熱伝導性充填材を混合した方が全体としては高充填できるようになり、熱伝導性を高めることができるからである。

[0038] 熱伝導性充填材の充填量は、熱伝導性組成物100体積部に対して50～90体積部を占めるものとし、60～90体積部とすることがより好ましい。50体積部未満では、熱伝導性が低くなるおそれがある。一方、90体積部を超えると、バインダー成分が少ないことから加熱してバインダーが相変化を起こしても粘度が十分に下がらず、薄膜化しにくくなり、熱抵抗が上昇

するおそれがある。

[0039] その他の成分： 熱伝導性組成物には、バインダーと熱伝導性充填材以外の成分を加えることができる。例えば、熱伝導性組成物を熱伝導性媒体として電子機器に組み付けた場合に、加熱状態でも熱伝導性組成物が一定の厚みを保持するために、スペーサーとなる粒子を配合させることができる。スペーサーとなる粒子には、例えば、ガラスビーズやセラミック粒子が挙げられ、熱伝導性組成物 100 体積部に対して 5 体積部以下、好ましくは 0.1 ~ 3 体積部程度を含ませることができる。0.1 体積部未満では、スペーサーとして機能しないおそれがあり、5 体積部を超えると、熱伝導性が悪くなるおそれがある。

[0040] また、熱伝導性組成物には、必要なら溶剤を添加することができる。例えば、シートを形成する場合には、熱伝導性組成物に溶剤を添加して熱伝導性ペーストとし、その熱伝導性ペーストを塗布してから溶剤を揮発させることでシート状の熱伝導性組成物を得ることができる。

[0041] 溶剤としては、所定の温度で揮発し、フェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤に対して相溶するものを使用することができる。例えばパラフィン系ワックスやポリオレフィン系ワックスに対しては、炭化水素系溶剤、芳香族系溶剤、ケトン系溶剤、エステル系溶剤を用いることができる。熱伝導性ペーストは溶剤の添加量を調整して、粘度を 1.0 ~ 2,000 Pa · s とすることが好ましい。

[0042] 熱伝導性組成物を製造するには、バインダーと熱伝導性充填材に、必要な成分を加えて混合する。フェイズチェンジ物は常温では固体のため、均一に混合するためには、加熱して混練することが好ましく、ニーダーやヒーター付プラネタリーミキサーを用いて混合することが好ましい。また、溶剤を添加する場合には、フェイズチェンジ物を溶剤に溶解させることで、常温で混合し易くすることができる。

[0043] 熱伝導性組成物は、含有するフェイズチェンジ物の性質から、所定の温度で相変化するため、常温では適度の硬さを有する一方で所定温度に加熱した

ときには軟化して被着体との密着性を高めることができる。即ち、常温で少なくとも固体、または流動性のない粘土状となる程度の硬さを有するため、シート状であればその形状を維持する程度の硬さがあって取扱い性が良く、シートとしない場合でも粘着性が過度に高くなく、接触する他の部材を汚染しないため取扱いがし易い。この点、他の部材が接触すると容易に付着して取扱い性に難があるグリスと相違する。

[0044] 上記実施形態については、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で適宜変更が可能である。以下、実施例に基づいて本発明をさらに説明するが、本発明は実施例で示される範囲に限定されるものではない。

実施例

[0045] 次に説明する試料 1 ～試料 26 の熱伝導性組成物または熱伝導性ペーストを作製し、種々の試験を行った。

[0046] <試料 1>: フェイズチェンジ物 1 として結晶性ポリオレフィン（融点 42℃、融点の温度範囲 39～45℃）15 質量部と、ノニオン系界面活性剤 A としてトリオレイン酸ソルビタン 85 質量部と、熱伝導性充填材として酸化アルミニウム（球状、1 μm）244 質量部と酸化アルミニウム（球状、12 μm）400 質量部と、溶剤としてイソパラフィン 40 質量部と、を混合して試料 1 の熱伝導性ペーストを得た。この熱伝導性ペーストの常温での粘度は 417 Pa・s であり液状であった。この熱伝導性ペーストをスクリーン印刷にて放熱体であるアルミニウム製のヒートシンクに塗布してから、乾燥することで、試料 1 の熱伝導性組成物を得た。この熱伝導性組成物は、放熱体に積層しており厚みが 90 μm であった。

[0047] <試料 2～10>: 試料 2～10 は、試料 1 と同じ材料を用いて、フェイズチェンジ物 A とノニオン界面活性剤 A の配合量を変化させたものである。その他は、試料 1 と同様にして試料 2～10 の熱伝導性ペーストと熱伝導性組成物を作製した。

こうした試料 1 ～試料 10 の配合等を表 1 に示す。

[0048]

[表1]

			試料1	試料2	試料3	試料4	試料5	試料6	試料7	試料8	試料9	試料10
組 成	バイン ダー	フェイズ チェンジ物1	15	0	5	10	20	30	40	50	90	100
		ノニオン界面 活性剤1	85	100	95	90	80	70	60	50	10	0
	熱伝導性充填材		644	644	644	644	644	644	644	644	644	644
	溶剤		40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	フィラー含有率(体積部)		62	62	62	62	62	62	62	62	62	62
評 価 項 目	(1)熱抵抗 (°C/W)		0.083	0.082	0.082	0.086	0.085	0.092	0.095	0.152	0.2	0.4
	厚み		24	24	25	24	25	26	32	36	48	56
	(2)取扱い性		○	×	×	△	○	○	○	○	○	○
	(3)相変化		○	×	×	△	○	○	○	○	×	×
	(4)耐熱性		△	△	△	△	△	△	△	△	○	○
	T1		51.1	51.7	52.5	51.4	52.4	53.3	53.4	54.9	56.3	63.3
	T2		47.5	48.2	49	47.7	48.7	49.4	49.4	48.5	47.9	46.7
	ΔT		3.6	3.5	3.5	3.7	3.7	3.9	4.1	6.45	8.4	14.7

[0049] <試料11～13>: 試料11～13は、試料1と比較してフェイズチェンジ物の種類を変更した試料である。より具体的には、試料11ではフェイズチェンジ物2を、試料12ではフェイズチェンジ物3を、試料13では、フェイズチェンジ物1とフェイズチェンジ物2とを等量混合したものを用いた。その他は、試料1と同様にして各試料の熱伝導性ペーストと熱伝導性組成物を作製した。

[0050] なおここで、フェイズチェンジ物1～3は次のとおりである。

フェイズチェンジ物1: 結晶性ポリオレフィン(融点42℃、融点の温度範囲39～45℃)

フェイズチェンジ物2: パラフィンワックス(融点46℃、融点の温度範囲40～50℃)

フェイズチェンジ物3: エステルワックス(融点46℃、融点の温度範囲40～50℃)

[0051] <試料14～19>: 試料14～19は、試料1と比較してノニオン界面活性剤の種類を変更した試料である。より具体的には、試料14ではノニオン界面活性剤2を、試料15ではノニオン界面活性剤3を、試料16では

ノニオン界面活性剤 4 を、試料 1 7 ではノニオン界面活性剤 5 を、試料 1 8 ではノニオン界面活性剤 6 を、試料 1 9 ではノニオン界面活性剤 1 とノニオン界面活性剤 2 とを等量混合したものを、それぞれ用いた。その他は、試料 1 と同様にして各試料の熱伝導性ペーストと熱伝導性組成物を作製した。

[0052] なおここで、ノニオン界面活性剤 1 ～ 6 は次のとおりである。

ノニオン界面活性剤 1 : トリオlein酸ソルビタン (HLB : 1.7、粘度 : 200mPa · s)

ノニオン界面活性剤 2 : ペンタオlein酸デカグリセリル (HLB : 3.5、粘度 : 5,000mPa · s)

ノニオン界面活性剤 3 : トリメリット酸トリイソデシル (HLB : 12、粘度 : 300mPa · s)

ノニオン界面活性剤 4 : ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート (HLB : 16.7、粘度 : 500mPa · s)

ノニオン界面活性剤 5 : ポリオキシエチレンオレイルエーテル (HLB : 13.3、粘度 : 100mPa · s)

ノニオン界面活性剤 6 : ポリオキシエチレンアルキルアミン (HLB : 15、粘度 : 450mPa · s)

こうした試料 1 1 ～試料 1 9 の配合等を表 2 に示す。

[0053]

[表2]

			試料 11	試料 12	試料 13	試料 14	試料 15	試料 16	試料 17	試料 18	試料 19
組 成	バイン ダー	フェイズ チェンジ物1	—	—	7.5	15	15	15	15	15	15
		フェイズ チェンジ物2	15	—	7.5	—	—	—	—	—	—
		フェイズ チェンジ物3	—	15	—	—	—	—	—	—	—
		ノニオン界面 活性剤1	85	85	85	—	—	—	—	—	42.5
		ノニオン界面 活性剤2	—	—	—	85	—	—	—	—	42.5
		ノニオン界面 活性剤3	—	—	—	—	85	—	—	—	—
		ノニオン界面 活性剤4	—	—	—	—	—	85	—	—	—
		ノニオン界面 活性剤5	—	—	—	—	—	—	85	—	—
		ノニオン界面 活性剤6	—	—	—	—	—	—	—	85	—
	熱伝導性充填材		644	644	644	644	644	644	644	644	644
溶剤		40	40	40	40	40	40	40	40	40	
フィラー含有率(体積部)			62	62	62	62	62	62	62	62	62
評 価 項 目	(1)熱抵抗 (℃／W)		0.083	0.097	0.092	0.096	0.105	0.102	0.107	0.109	0.085
	測定時厚み(μm)		24	32	38	36	38	37	38	36	30
	(2)取扱い性		○	○	○	○	○	○	○	○	○
	(3)相変化		○	○	○	○	○	○	○	○	○
	(4)耐熱性試験		△	△	△	○	○	○	○	○	△
	T1		52	50.9	52.2	52.7	53.7	53.5	52	51.5	52.3
	T2		48.4	46.7	48.3	48.6	49.2	49.2	47.4	46.7	48.7
	ΔT		3.6	4.2	3.9	4.1	4.5	4.3	4.6	4.8	3.6

[0054] <試料21～26>： 試料21～26は、試料1と比較してノニオン界面活性剤を可塑剤1～6にそれぞれ変更した試料である。即ち、試料21では可塑剤1を、試料22では可塑剤2を、試料23では可塑剤3を、試料24では可塑剤4を、試料25では可塑剤5を、試料26では可塑剤6をそれぞれ用いた。その他は、試料1と同様にして各試料の熱伝導性ペーストと熱伝導性組成物を作製した。

[0055] なおここで、可塑剤1～6は次のとおりである。

可塑剤1： ポリブテンオイル（粘度：400mPa・s）

可塑剤2： ポリブテンオイル（粘度：1，200mPa・s）

可塑剤3： ポリブテンオイル（粘度：50，000mPa・s）

可塑剤 4 : パラフィンオイル (粘度 : 10 mPa・s)

可塑剤 5 : パラフィンオイル (粘度 : 3,000 mPa・s)

可塑剤 6 : パラフィンオイル (粘度 : 12,000 mPa・s)

こうした試料 21 ~ 試料 26 の配合等を表 3 に示す。

[0056] [表3]

			試料21	試料22	試料23	試料24	試料25	試料26
組 成	バイン ダー	フェイズ チェンジ物A	15	15	15	15	15	15
		可塑剤1	85	—	—	—	—	—
		可塑剤2	—	85	—	—	—	—
		可塑剤3	—	—	85	—	—	—
		可塑剤4	—	—	—	85	—	—
		可塑剤5	—	—	—	—	85	—
		可塑剤6	—	—	—	—	—	85
		可塑剤7	—	—	—	—	—	—
	熱伝導性充填材		644	644	644	644	644	644
	溶剤		40	40	40	40	40	40
フィラー含有率(体積部)			62	62	62	62	62	62
評 価 項 目	(1)熱抵抗 (°C/W)		0.120	0.120	0.130	0.155	0.120	0.150
	測定時厚み(μm)		24	32	38	36	38	37
	(2)取扱い性		△	○	○	△	○	○
	(3)相変化		○	○	○	○	○	○
	(4)耐熱性試験		×	△	△	×	△	○

[0057] 上記試料 1 ~ 19, 21 ~ 26 の熱伝導性組成物について、以下に説明する試験を行い種々の評価を行った。

[0058] (1) 熱抵抗

熱抵抗は、図 1 に示すような熱抵抗試験機 10 にて測定した。まず、各試料の熱伝導性組成物 1 を、断熱材 2 上に置かれた表面が 10 mm × 21 mm の銅製ブロック 3 の上に設置した。そして、放熱体であるアルミニウム製のヒートシンク 4 と銅製ブロック 3 とで熱伝導性組成物 1 を挟み、ヒートシンク 4 上にはファン 5 を設置した。さらに重りでヒートシンクに 7 kg の荷重 F をかけた。銅製ブロック 3 内にはヒーター 7 (発熱量 42 W) が内蔵され

ている。7 kgの荷重をかけながらヒーター7を発熱させ、温度が定常状態になった時点での銅製ブロック3とヒートシンク4の温度を測定し、次の式(1)から熱伝導性組成物の熱抵抗を求めた。

[0059] 熱抵抗 = $(\theta_{j1} - \theta_{j0}) / \text{発熱量 } Q$ 式(1)

式(1)において、 θ_{j1} は銅製ブロック5の温度、 θ_{j0} はヒートシンク4の温度、発熱量 Q は42Wである。本試験では熱抵抗値の他に定常状態となった時点の試料厚み(μm)を記録した。測定結果に対し、熱抵抗値では0.150℃/W未満であるものを「○」、測定時の試料厚みでは40 μm 以下であるものを「○」とした。

[0060] (2) 取扱い性

23℃の雰囲気下で、ステンレス製重り(直径20mmの円柱、200g)を各試料の熱伝導性組成物に10秒間載せたとき、その表面に重りの跡が残るかどうかを評価した。跡が残らなかったものを「○」、微かに跡が残ったものを「△」、くっきりと跡が残ったものを「×」とした。

[0061] (3) 相変化

熱伝導性組成物が相変化を起こしているか否かについて、上記「(1) 熱抵抗」と上記「(2) 取扱い性」の2つの指標を挙げ、「(1) 熱抵抗」での評価が「○」であり、かつ「(2) 取扱い性」での評価も「○」であるような両指標が両立するものについて「○：相変化を起こしているもの」とし、何れか一方でも「×」があるものを「×：相変化を起こしていないもの」と判断した。取扱い性試験において取扱い性が良ければ常温でフェイズチェンジ物が固体となっていると考えられる一方で、熱抵抗試験において試料厚みが40 μm 以下になればヒーター加熱によりフェイズチェンジ物が溶融していると考えられるからである。

[0062] (4) 耐熱性

各試料の熱伝導性組成物を、150℃で24時間放置した後に、上記「(1) 熱抵抗」で示した試験と同様の試験を行って試料厚みを測定した。そして、試料厚みが40 μm を超えたものを「×」、試料厚みが40 μm 以下で

あったが、耐熱性試験を行っていない試料と比較して試料厚みが20%以上厚いものを「△」、試料厚みが40 μ m以下で且つ耐熱性試験を行っていない試料と比較して試料厚みは厚いが、その厚みの程度が20%未満だったものを「○」とした。

[0063] (5) 粘度

各試料の熱伝導性ペーストの粘度を、粘度計(BROOK FIELD製回転粘度計DV-E)にて、スピンドルNo. 14の回転子を用い、回転速度10rpm、測定温度23℃で測定した。

[0064] <試料1～10の評価>:

フェイズチェンジ物1の配合量が0～5質量部の試料2および試料3で取扱い性の評価が「×」であった。これは、フェイズチェンジ物の含有量が少なく物性を十分に高めることができなかったためと考えられる。一方、フェイズチェンジ物1の配合量が10質量部の試料3では「△」であり取扱い性が改善されている。そしてフェイズチェンジ物1の配合量が15質量部以上とした試料1、試料4～10では「○」となったことから、フェイズチェンジ物を10質量部以上含むと取扱い性が改善され、15質量部以上で特に良いことがわかった。

[0065] 次に熱抵抗値を見ると、試料1～試料5で極めて熱抵抗値が低くなっているが、その理由は、圧縮率も高かったことから、加熱とともに軟化して厚みが薄くなったからと考えられる。また、圧縮率の測定結果から、ノニオン界面活性剤の割合が多いほど柔軟になり厚みが薄くなるものと思われる。一方、試料6や試料7では熱抵抗が低かったが、試料8では熱抵抗がかなり大きくなっていた。この結果より、ノニオン界面活性剤の配合量が60質量部以上で熱抵抗値が一気に低くなり、70質量部以上では極めて低くなることがわかった。

[0066] <試料11～13の評価>:

試料11～13は、試料1に対してフェイズチェンジ物の種類を変更した試料である。ポリオレフィンワックスをパラフィンワックスやエステルワッ

クスに変更した場合であっても、熱抵抗値は、 $0.150^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 未満となり、取扱い性が良く、相変化が良好な熱伝導性組成物となった。試料 11 と試料 12 を試料 1 と比較すると、測定時の熱伝導性組成物の厚みはやや厚かったが、フェイズチェンジ物 2 とフェイズチェンジ物 3 は融点の幅がやや広いことから、加熱により軟化する程度がやや小さかったものと考えられる。

[0067] <試料 14 ～ 19 の評価> :

試料 14 ～ 19 は試料 1 と比較してノニオン界面活性剤の種類を変更したものだが、全ての試料 14 ～ 19 の全てで熱抵抗値は $0.150^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 未満となった。これらのノニオン界面活性剤の中でも、エステル型を用いた試料 14 ～ 16 および試料 19 は試料 1 とともに熱抵抗値が比較的 low、また、その中でも芳香族カルボン酸エステル型を用いた試料 15 およびポリオキシエチレン型を用いた試料 16 ～ 18 は、特に耐熱性に優れていた。

[0068] <試料 21 ～ 26 の評価> :

ノニオン界面活性剤に代えて界面活性作用のない可塑剤としてポリブテンオイルを用いた試料 21 ～ 23 は、試料 1 と比べると測定時の熱伝導性組成物の厚みが試料 21 以外は何れも厚く、熱抵抗も高い値となった。その理由は、ポリブテンオイルを用いた場合には熱伝導性充填材の充填性が悪く、また加熱した際の硬さがやや硬いからであると考えられる。

[0069] また、可塑剤としてパラフィンオイルを用いた試料 24 ～ 26 も試料 1 と比べると測定時の熱伝導性組成物の厚みが厚く、熱抵抗も高い値となった。その理由は、ポリブテンオイルの場合と同様に熱伝導性充填材の充填性が悪く、加熱した際の硬さがやや硬いからであると考えられる。

符号の説明

- [0070]
- 1 熱伝導性組成物
 - 2 断熱材
 - 3 銅製ブロック
 - 4 ヒートシンク
 - 5 ファン

7 ヒーター

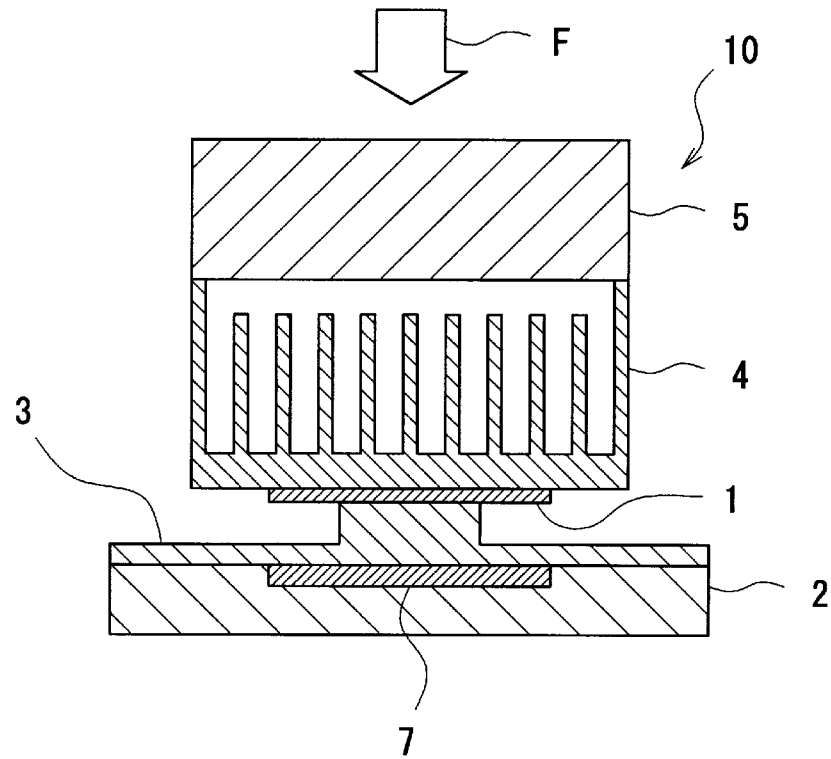
10 熱抵抗試験機

F 荷重

請求の範囲

- [請求項1] 35℃～120℃の融点を有するフェイズチェンジ物とノニオン界面活性剤と不揮発成分とでなるバインダーと、熱伝導性充填材と、を含む熱伝導性組成物であって、
- 前記バインダー100質量部に占めるフェイズチェンジ物が10質量部以上、ノニオン界面活性剤が60質量部以上、不揮発成分が30質量部以下である熱伝導性組成物。
- [請求項2] フェイズチェンジ物が、パラフィン系ワックス、エステル系ワックス、ポリオレフィン系ワックスから選ばれる一種または組合せである請求項1記載の熱伝導性組成物。
- [請求項3] ノニオン界面活性剤が、脂肪族カルボン酸エステルまたは芳香族カルボン酸エステルから選ばれる一種または組合せである請求項1または請求項2記載の熱伝導性組成物。
- [請求項4] 熱伝導性充填材の含有量が熱伝導性組成物100体積部に対して50～90体積部である請求項1～請求項3何れか1項記載の熱伝導性組成物。
- [請求項5] 厚さ20～40μmでの熱抵抗値が0.080～0.150℃/Wである請求項1～請求項4何れか1項記載の熱伝導性組成物。
- [請求項6] 請求項1～請求項5何れか1項記載の熱伝導性組成物と、溶剤とを含み、常温でペースト状ないし液状である熱伝導性ペースト。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063789

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L91/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08L101/00(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)

C08L91/00-91/08, C08K3/00-13/08, C08L101/00-101/16

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)

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 2008-510878 A (General Electric Co.), 10 April 2008 (10.04.2008), claims; paragraphs [0010], [0022], [0051], [0052], [0078], [0079]; examples & US 2006/0121068 A1 & WO 2006/023860 A2 claims; page 4, lines 5 to 13; page 6, 3rd line from the bottom to page 7, line 9; page 16, lines 8 to 31; page 23, line 23 to page 24, line 8; examples & EP 1806384 A1 & KR 10-2007-0051919 A & KR 10-2006-0100914 A	1-6 1-6
Y	JP 2004-75760 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 11 March 2004 (11.03.2004), claims; paragraphs [0005], [0014] to [0019] (Family: none)	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
19 July 2016 (19.07.16)

Date of mailing of the international search report
02 August 2016 (02.08.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063789

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2003-26928 A (3M Innovative Properties Co.), 29 January 2003 (29.01.2003), claims; paragraphs [0004], [0008], [0012] to [0015], [0017], [0018] & US 2004/0195678 A1 & WO 2003/004580 A1 claims; page 1, lines 23 to 32; page 2, lines 20 to 22; page 3, line 26 to page 5, line 11; page 5, line 27 to page 6, line 9 & CN 1522290 A & KR 10-0893237 B1	1-6
Y	JP 2009-507106 A (Honeywell International Inc.), 19 February 2009 (19.02.2009), claims; paragraphs [0019], [0028] to [0030], [0036] & US 2007/0051773 A1 claims; paragraphs [0024], [0033] to [0035], [0041] & WO 2007/027670 A1 & KR 10-2008-0044276 A & CN 101258594 A	1-6
Y	JP 2005-539094 A (Cognitek Management Systems, Inc.), 22 December 2005 (22.12.2005), claims; paragraphs [0007], [0032], [0033], [0037], [0049], [0050], [0065] & US 2004/0206941 A1 & WO 2003/060035 A1 claims; page 6, line 21 to page 7, line 15; page 8, lines 8 to 12; page 10, lines 25 to 28; page 15, line 17 to page 16, line 2	1-6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L91/06(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08L101/00(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. C08L91/00-91/08, C08K3/00-13/08, C08L101/00-101/16

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 1 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 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 2008-510878 A（ゼネラル・エレクトリック・カンパニー） 2008.04.10, 特許請求の範囲, [0010], [0022], [0051], [0052], [0078], [0079], 実施例 & US 2006/0121068 A1 & WO 2006/023860 A2(請求の範囲, 第4頁第 5-13行, 第6頁下から3行-第7頁第9行, 第16頁第8-31行, 第 23頁第23行-第24頁第8行, 実施例) & EP 1806384 A1 & KR 10-2007-0051919 A & KR 10-2006-0100914 A	1-6 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	「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
「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	「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
「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）	「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
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

1 9 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

0 2 . 0 8 . 2 0 1 6

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 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

佐藤 のぞみ

4 J

4 5 1 3

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

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
Y	JP 2004-75760 A (電気化学工業株式会社) 2004. 03. 11, 特許請求の範囲, [0005], [0014]-[0019] (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 2003-26928 A (スリーエム イノベイティブ プロパティズ カ ンパニー) 2003. 01. 29, 特許請求の範囲, [0004], [0008], [0012]-[0015], [0017], [0018] & US 2004/0195678 A1 & WO 2003/004580 A1 (請求の範囲, 第1頁第23-32行, 第2頁第20-22 行, 第3頁第26行-第5頁第11行, 第5頁第27行-第6頁第9行) & CN 1522290 A & KR 10-0893237 B1	1-6
Y	JP 2009-507106 A (ハネウエル・インターナショナル・インコーポ レーテッド) 2009. 02. 19, 特許請求の範囲, [0019], [0028]-[0030], [0036] & US 2007/0051773 A1 (特許請求の範囲, [0024], [0033]-[0035], [0041]) & WO 2007/027670 A1 & KR 10-2008-0044276 A & CN 101258594 A	1-6
Y	JP 2005-539094 A (コグニテク マネージメント システムズ イ ンコーポレイテッド) 2005. 12. 22, 特許請求の範囲, [0007], [0032], [0033], [0037], [0049], [0050], [0065] & US 2004/0206941 A1 & WO 2003/060035 A1 (請求の範囲, 第6頁第 21行-第7頁第15行, 第8頁第8-12行, 第10頁第25-28行, 第15 頁第17行-第16頁第2行)	1-6