

(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
2018年5月11日(11.05.2018)



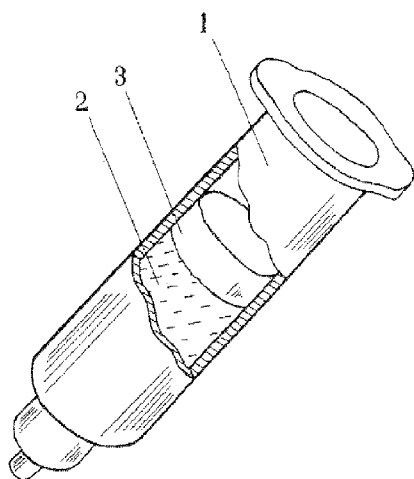
(10) 国際公開番号

WO 2018/084012 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 83/07 (2006.01) *C08L 83/05* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/038184
- (22) 国際出願日: 2017年10月23日(23.10.2017)
- (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 2016-214766 2016年11月2日(02.11.2016) JP
- (71) 出願人: 東レ・ダウコーニング株式会社(DOW CORNING TORAY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 山▲崎▼ 春菜(YAMAZAKI, Haruna); 〒2990108 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内 Chiba (JP).
島 涼登(SHIMA, Ryoto); 〒2990108 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング株式会社内 Chiba (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

(54) Title: REACTIVE HOT-MELT SILICONE FILLING CONTAINER AND METHOD FOR MANUFACTURING REACTIVE HOT-MELT SILICONE

(54) 発明の名称: 反応性ホットメルトシリコン充填容器および反応性ホットメルトシリコンの製造方法



(57) Abstract: This reactive hot-melt silicone filling container is characterized in that: a container is filled with a crosslinking silicone composition including (A) an alkenyl-group-bonded organopolysiloxane that includes a branched-chain organopolysiloxane having an alkenyl group and having a softening point of a least 50°C, (B) an organopolysiloxane having at least two silicon-atom-bonded hydrogen atoms in a single molecule, and (C) a hydrosilylation reaction catalyst; the container is heated to cause B-stage crosslinking of the composition; and a reactive hot-melt silicone that is nonflowable at 25 °C and has a melt viscosity at 120 °C of 5,000 Pa · s or less is formed; the application of heat making it possible to remove the reactive hot-melt silicone, which has exceptional gap-filling performance.

(57) 要約: 本発明の反応性ホットメルトシリコン充填容器は、(A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、(B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン、および(C) ヒドロシリル化反応用触媒を含む架橋性シリコン組成物を容器に充填し、該容器を加熱することにより前記組成物をBステージ状に架橋させ、25℃で非流動性であり、120℃での熔融粘度が5,000 Pa · s以下の反応性ホットメルトシリコンを形成したものであり、加熱により、ギャップフィル性に優れた反応性ホットメルトシリコンを取り出し可能であるという特徴がある。

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).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

反応性ホットメルトシリコーン充填容器および反応性ホットメルトシリコーンの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、反応性ホットメルトシリコーン充填容器、および反応性ホットメルトシリコーンの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 基板上にＬＥＤ素子が多数配置されたチップアレイモジュールを製造する際、多数のＬＥＤ素子を一括して封止あるいは被覆するため、シート状の反応性ホットメルトシリコーンが使用されている。例えば、特許文献１には、一分子中に少なくとも２個のアルケニルシリル基を有するオルガノポリシロキサン、一分子中に少なくとも２個のヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン、ヒドロシリル化反応用触媒、および反応抑制剤を含む架橋性シリコーン組成物をシート状に半硬化させてなる反応性ホットメルトシリコーンが提案されている。

[0003] しかし、このシート状の反応性ホットメルトシリコーンは、ＬＥＤ素子と基板とのギャップのため、封止あるいは被覆の際にエアーを巻き込み易く、封止あるいは被覆されたＬＥＤの外観不良や信頼性の低下等の課題がある。

[0004] また、反応性ホットメルトシリコーンを調製する際、架橋性シリコーン組成物の加熱により成分の揮発やヒドロシリル化反応のエアインヒビションを生じるという課題もある。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献１：特開２０１１－２１９５９７号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の目的は、加熱により、ギャップフィル性に優れる反応性ホットメルトシリコーンを取り出し可能な反応性ホットメルトシリコーン充填容器、および加熱時の成分の揮発やエアインヒビションが抑制され、加熱により流動性を有し、ギャップフィル性に優れる反応性ホットメルトシリコーンの製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器は、

(A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、

(B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン { (A) 成分中のアルケニル基1モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が0.01～10モルとなる量 }、および

(C) 触媒量のヒドロシリル化反应用触媒を含む架橋性シリコーン組成物を容器に充填し、該容器を加熱することにより前記組成物をBステージ状に架橋させ、25℃で非流動性であり、120℃での熔融粘度が5,000 Pa・s以下の反応性ホットメルトシリコーンを形成することを特徴とする。

[0008] 上記架橋性シリコーン組成物は、さらに、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して、0.0001～5質量部の(D)反応抑制剤および／または0.01～10質量部の(E)有機パーオキサイドを含むことが好ましい。

[0009] また、容器は、カートリッジ、フレキシブル容器、ペール缶、またはドラム缶であることが好ましい。

[0010] 本発明の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法は、25℃で非流動性であり、120℃での熔融粘度が5,000 Pa・s以下の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法であって、

(A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、

(B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン { (A) 成分中のアルケニル基1モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が0.01～10モルとなる量}、および

(C) 触媒量のヒドロシリル化反应用触媒を含む架橋性シリコーン組成物を容器中で加熱してBステージ状に架橋させることを特徴とする。

[0011] 上記架橋性シリコーン組成物は、さらに、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して、0.0001～5質量部の(D)反応抑制剤および／または0.01～10質量部の(E)有機パーオキサイドを含むことが好ましい。

[0012] また、容器は、カートリッジ、フレキシブル容器、ペール缶、またはドラム缶であることが好ましい。

発明の効果

[0013] 本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器は、加熱により、ギャップフィル性に優れる反応性ホットメルトシリコーンを取り出し可能であるという特徴があり、また、本発明の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法は、加熱時の成分の揮発やエアインヒビションが抑制され、加熱により流動性を有し、ギャップフィル性に優れる反応性ホットメルトシリコーンを効率よく製造することができるという特徴がある。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器の一例であるカートリッジを示す一部破断面を有する斜視図

発明を実施するための形態

[0015] はじめに、本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器を詳細に説明する。

[0016] 本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器は、

(A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、

(B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン { (A) 成分中のアルケニル基1モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が0.01～10モルとなる量}、および

(C) 触媒量のヒドロシリル化反应用触媒

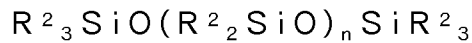
を含む架橋性シリコーン組成物を容器に充填し、該容器を加熱することにより前記組成物をBステージ状に架橋させることを特徴とする。なお、この「Bステージ状」とは、JIS K 6800に定義されているBステージ（熱硬化性樹脂の硬化中間体）の状態をいい、架橋性シリコーン組成物を不完全に硬化させることにより、溶剤により膨潤するものの、完全に溶解することがなく、「反応性ホットメルト」とは、室温（25℃）では流動性を失ったような状態であるが、高温（例えば、120℃以上）に加熱すると再び溶融し、次いで硬化するものをいう。

[0017] (A) 成分は、アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサンである。軟化点を有する分岐鎖状のオルガノポリシロキサンとは、分子鎖中に、式： $R^1SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位および／または式： $SiO_{4/2}$ で表されるシロキサン単位を有し、式： $R^1_3SiO_{1/2}$ で表されるシロキサン単位および／または式： $R^1_2SiO_{2/2}$ で表されるシロキサン単位を有してもよいオルガノポリシロキサンである。式中、 R^1 は同じかまたは異なる一価炭化水素基であり、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等の炭素数1～12のアルキル基；ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基等の炭素数2～12のアルケニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6～12のアリール基；ベンジル基、

フェネチル基等の炭素数 7 ～ 12 のアラルキル基；これらの基の水素原子の一部または全部を塩素原子、フッ素原子等のハロゲン原子で置換した基が例示される。ただし、一分子中の少なくとも 1 つの R¹ は前記アルケニル基である。

[0018] このような分岐鎖状のオルガノポリシロキサンは、その軟化点が 50℃ 以上である。この軟化点とは、例えば、JIS K 6863-1994「ホットメルト接着剤の軟化点試験方法」で規定されるホットメルト接着剤の環球法による軟化点試験方法で測定される温度をいう。このような軟化点を有するオルガノポリシロキサンとしては、式： $R^1SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位からなり、一分子中の全 R¹ の 50 ～ 80 モル％がアリール基であるオルガノポリシロキサン、式： $R^1SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_3SiO_{1/2}$ で表されるシロキサン単位からなり、一分子中の全 R¹ の 50 ～ 80 モル％がアリール基であるオルガノポリシロキサン、式： $R^1SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_2SiO_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなり、一分子中の全 R¹ の 50 ～ 80 モル％がアリール基であるオルガノポリシロキサン、式： $R^1SiO_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_2SiO_{2/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_3SiO_{1/2}$ で表されるシロキサン単位からなり、一分子中の全 R¹ の 50 ～ 80 モル％がアリール基であるオルガノポリシロキサン、式： $SiO_{4/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_3SiO_{1/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： $SiO_{4/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_3SiO_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $R^1_2SiO_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサンが例示される。

[0019] (A) 成分は、前記の分岐鎖状のオルガノポリシロキサンのみであってもよく、また、前記の分岐鎖状のオルガノポリシロキサンと直鎖状のオルガノポリシロキサンとの混合物であってもよい。この直鎖状のオルガノポリシロキサンは、反応性ホットメルトシリコーンを硬化して得られる硬化物の硬さを調整したり、その可とう性を付与するための成分であり、一般式：



で表される。

[0020] 式中、 R^2 は同じかまたは異なる一価炭化水素基であり、前記 R^1 と同様の基が例示される。ただし、一分子中の少なくとも2つの R^2 は前記アルケニル基である。また、式中、 n は1～1,000の範囲内の整数、1～500の範囲内の整数、5～500の範囲内の整数、あるいは、10～500の範囲内の整数であることが好ましい。これは、 n が上記範囲の下限以上であると、得られる硬化物の機械的強度が良好であり、一方、上記範囲の上限以下であると、得られる架橋性シリコン組成物の充填性が良好となるからである。

[0021] (A)成分中、分岐鎖状のオルガノポリシロキサンと直鎖状のオルガノポリシロキサンの割合は限定されず、直鎖状のオルガノポリシロキサンは、(A)成分中の0～80質量%の範囲内となる量、0～70質量%の範囲内となる量、0～60質量%の範囲内となる量、5～80質量%の範囲内となる量、5～70質量%の範囲内となる量、5～60質量%の範囲内となる量、10～80質量%の範囲内となる量、10～70質量%の範囲内となる量、あるいは、10～60質量%の範囲内となる量であることが好ましい。これは、直鎖状のオルガノポリシロキサンの含有量が上記範囲の下限以上であると、得られる硬化物の機械的特性が良好であり、一方、上記範囲の上限以下であると、得られる反応性ホットメルトシリコンのホットメルト性が良好であるからである。

[0022] (B)成分は、一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサンである。(B)成分中のケイ素原子結合有機基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等の炭素数1～12のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6～12のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等の炭素数7～12のアラルキル基；これらの基の水素原子の一部または全部を塩素原子、フッ素原子等のハロゲン原子で置換した基が例示される。(B)成分の分子構造は限定されず、直鎖状、一

部分岐を有する直鎖状、環状、分岐鎖状が例示される。

[0023] このような（Ｂ）成分としては、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジフェニルシロキサンオリゴマー、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルフェニルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルフェニルシロキサンオリゴマー、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、式： $\text{SiO}_{4/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： $\text{SiO}_{4/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン、式： $\text{HMe}_2\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサンと式： $\text{C}_6\text{H}_5\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサンからなるオルガノポリシロキサン、およびこれらの２種以上の混合物が例示される。

[0024] （Ｂ）成分の含有量は、（Ａ）成分中のアルケニル基の合計１モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が０．０１～１０モルの範囲内となる量であり、好ましくは、０．０１～５モルの範囲内となる量、０．０５～５モルの範囲内となる量、あるいは、０．０１～５モルの範囲内となる量であることが好ましい。これは、（Ｂ）成分の含有量が上記範囲の下限以上であると、本組成物のヒドロシリル化反応が十分に進行し、Ｂステージ状の反応性ホットメルトシリコーンを得ることができるからであり、一方、上記範囲の上限以下であると、反応性ホットメルトシリコーンを硬化して得られる硬化物の耐熱性が良好であるからである。なお、本組成物に後述する有機過酸化物を配合する場合には、本組成物をＢステージ状に架橋させるために（Ａ）成分中のアルケニル基１モルに対して（Ｂ）成分中のケイ素原子結合水素

原子が1モル以下となる量、あるいは、1モル未満となる量であってもよい。これは、本組成物を架橋させるために（B）成分中のケイ素原子結合水素原子が全て反応した場合であっても、得られる反応性ホットメルトシリコーンを有機過酸化物により熱硬化させることができるからである。

[0025] （C）成分は、（A）成分中のアルケニル基と（B）成分中のケイ素原子結合水素原子とのヒドロシリル化反応を促進するための触媒であり、例えば、白金系触媒、ロジウム系触媒、パラジウム系触媒が挙げられる。特に、本組成物のヒドロシリル化反応を著しく促進できることから白金系触媒が好ましい。この白金系触媒としては、白金微粉末、塩化白金酸、塩化白金酸のアルコール溶液、白金－アルケニルシロキサン錯体、白金－オレフィン錯体、白金－カルボニル錯体が例示され、特に、白金－アルケニルシロキサン錯体が好ましい。このアルケニルシロキサンとしては、1,3－ジビニル－1,1,3,3－テトラメチルジシロキサン、1,3,5,7－テトラメチル－1,3,5,7－テトラビニルシクロテトラシロキサン、これらのアルケニルシロキサンのメチル基の一部をエチル基、フェニル基等で置換したアルケニルシロキサン、これらのアルケニルシロキサンのビニル基をアリル基、ヘキセニル基等で置換したアルケニルシロキサンが例示される。

[0026] （C）成分の含有量は、本組成物のヒドロシリル化反応を促進する触媒量であり、好ましくは、（A）成分および（B）成分の合計量に対して、本成分中の金属原子が質量単位で0.01～1,000ppmの範囲内となる量、0.01～500ppmの範囲内となる量、0.01～200ppmの範囲内となる量、0.01～100ppmの範囲内となる量、あるいは、0.01～50ppmの範囲内となる量である。これは、（C）成分の含有量が上記範囲の下限以上であると、本組成物のヒドロシリル化反応が促進されるからであり、一方、上記範囲の上限以下であると、得られる反応性ホットメルトシリコーンに着色等の問題が生じにくくなるからである。

[0027] 本組成物には、本組成物のヒドロシリル化反応をコントロールするため、（D）反応抑制剤を含有してもよい。（D）成分としては、1－エチニルシ

クロヘキサンー１－オール、２－メチル－３－ブチン－２－オール、３，５－ジメチル－１－ヘキシン－３－オール、２－フェニル－３－ブチン－２－オール等のアルキンアルコール；３－メチル－３－ペンテン－１－イン、３，５－ジメチル－３－ヘキセン－１－イン等のエンイン化合物；トリス（１，１－ジメチルプロピンオキシ）メチルシラン、ビス（１，１－ジメチルプロピンオキシ）ジメチルシラン等のアルキンオキシシラン；１，３，５，７－テトラメチル－１，３，５，７－テトラビニルシクロテトラシロキサン、１，３，５，７－テトラメチル－１，３，５，７－テトラヘキセニルシクロテトラシロキサン等の（Ａ）成分に該当しないアルケニル基含有シクロシロキサン；その他、ベンゾトリアゾールが例示される。

[0028] （Ｄ）成分の含有量は限定されないが、上記（Ａ）成分～（Ｃ）成分の合計１００質量部に対して、０～５質量部の範囲内、あるいは０．０００１～５質量部の範囲内であることが好ましい。これは、（Ｄ）成分の配合は任意であるが、（Ｄ）成分の含有量が上記範囲内であると、反応性ホットメルトシリコーンを調製しやすいからである。

[0029] 本組成物には、得られる反応性ホットメルトシリコーンを熱硬化させるため、必要に応じて、さらに、（Ｅ）有機過酸化物を配合してもよい。（Ｅ）成分は、本組成物をＢステージ状に架橋させる際には活性を有さず、得られる反応性ホットメルトシリコーンを加熱した際に活性を有するようなものが好ましく、例えば、１０時間半減期温度が９０℃以上であるものが好ましい。（Ｅ）成分としては、例えば、過酸化アルキル類、過酸化ジアシル類、過酸化エステル類、および過酸化カーボネート類が挙げられる。

[0030] 過酸化アルキル類としては、例えば、ジクミルパーオキサイド、ジ－tert－ブチルパーオキサイド、ジ－tert－ブチルクミルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ジ（tert－ブチルパーオキシ）ヘキサン、２，５－ジメチル－２，５－ジ（tert－ブチルパーオキシ）ヘキシン－３、tert－ブチルクミル、１，３－ビス（tert－ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン、３，６，９－トリエチル－３，６，９－トリメチル－１，４，７－ト

リパーオキシナンが挙げられる。

[0031] 過酸化ジアシル類としては、例えば、ベンゾイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、デカノイルパーオキシドが挙げられる。

[0032] 過酸化エステル類としては、例えば、1,1,3,3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、 α -クミルパーオキシネオデカノエート、tert-ブチルパーオキシネオデカノエート、tert-ブチルパーオキシネオヘプタノエート、tert-ブチルパーオキシピバレート、tert-ヘキシルパーオキシピバレート、1,1,3,3-テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、tert-アミルパーオキシル-2-エチルヘキサノエート、tert-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、tert-ブチルパーオキシイソブチレート、ジ-tert-ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート、tert-アミルパーオキシ-3,5,5-トリメチルヘキサノエート、tert-ブチルパーオキシ-3,5,5-トリメチルヘキサノエート、tert-ブチルパーオキシアセテート、tert-ブチルパーオキシベンゾエート、ジブチルパーオキシトリメチルアディペートが挙げられる。

[0033] 過酸化カーボネート類としては、例えば、ジ-3-メトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ(2-エチルヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシカーボネート、tert-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、ジ(4-tert-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジセチルパーオキシジカーボネート、ジミリスチルパーオキシジカーボネートが挙げられる。

[0034] (E)成分としては、過酸化アルキル類が好ましく、特に、その10時間半減期温度が90℃以上、あるいは95℃以上のものが好ましい。このような(E)成分としては、ジクミルパーオキシド、ジ-tert-ブチルパーオキシド、ジ-tert-ヘキシルパーオキシド、tert-ブチルクミルパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルパーオキシ)ヘキサン、1,3-ビス(tert-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、ジ-(2

ー t ー ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、3, 6, 9 ー トリエチル ー 3, 6, 9 ー トリメチル ー 1, 4, 7 ー トリパーオキシソナンが挙げられる。

[0035] (E) 成分の含有量は限定されないが、(A) 成分～(C) 成分の合計 100 質量部に対して、0.01～10 質量部の範囲内、0.05～10 質量部の範囲内、0.05～5 質量部の範囲内、あるいは、0.01～5 質量部の範囲内が好ましい。これは、(E) 成分の含有量が上記範囲の下限以上であると、得られる反応性ホットメルトシリコーンを十分に熱硬化させることができるからであり、一方、上記範囲の上限以下であると、得られる硬化物に気泡等を生じ難くなるからである。

[0036] また、本組成物には、得られる反応性ホットメルトシリコーンに接着性を付与するために接着付与剤を配合してもよい。この接着付与剤としては、ケイ素原子に結合したアルコキシ基を一分子中に少なくとも 1 個有する有機ケイ素化合物が好ましい。このアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、メトキシエトキシ基が例示され、特に、メトキシ基が好ましい。また、この有機ケイ素化合物のケイ素原子に結合するアルコキシ基以外の基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基等のハロゲン置換もしくは非置換の一価炭化水素基；3 ー グリシドキシプロピル基、4 ー グリシドキシブチル基等のグリシドキシアルキル基；2 ー (3, 4 ー エポキシシクロヘキシル)エチル基、3 ー (3, 4 ー エポキシシクロヘキシル)プロピル基等のエポキシシクロヘキシルアルキル基；3, 4 ー エポキシブチル基、7, 8 ー エポキシオクチル基等のエポキシアルキル基；3 ー メタクリロキシプロピル基等のアクリル基含有一価有機基；水素原子が例示される。この有機ケイ素化合物は本組成物中のアルケニル基またはケイ素原子結合水素原子と反応し得る基を有することが好ましく、具体的には、ケイ素原子結合水素原子またはアルケニル基を有することが好ましい。また、各種の基材に対して良好な接着性を付与できることから、この有機ケイ素化合物は一分子中に少なくとも 1 個のエポキシ基含有一価有機基を有するものであることが好ましい。このような有機ケイ素化

合物としては、オルガノシラン化合物、オルガノシロキサンオリゴマー、アルキルシリケートが例示される。このオルガノシロキサンオリゴマーあるいはアルキルシリケートの分子構造としては、直鎖状、一部分枝を有する直鎖状、分枝鎖状、環状、網状が例示され、特に、直鎖状、分枝鎖状、網状であることが好ましい。このような有機ケイ素化合物としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のシラン化合物；一分子中にケイ素原子結合アルケニル基もしくはケイ素原子結合水素原子、およびケイ素原子結合アルコキシ基をそれぞれ少なくとも1個ずつ有するシロキサン化合物、ケイ素原子結合アルコキシ基を少なくとも1個有するシラン化合物またはシロキサン化合物と一分子中にケイ素原子結合ヒドロキシ基とケイ素原子結合アルケニル基をそれぞれ少なくとも1個ずつ有するシロキサン化合物との混合物、メチルポリシリケート、エチルポリシリケート、エポキシ基含有エチルポリシリケートが例示される。なお、この接着付与剤の含有量は限定されないが、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して0.01～10質量部の範囲内であることが好ましい。これは、接着付与剤の含有量が上記範囲内であると、得られる反応性ホットメルトシリコーンの接着性が良好であるからである。

[0037] また、本組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、トリメチルシロキシ封鎖ジメチルポリシロキサン、トリメチルシロキシ封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、式： $(\text{C}_6\text{H}_5)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{SiO}_{4/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサン等のアルケニル基およびケイ素原子結合水素原子を有さないオルガノポリシロキサンを配合してもよい。このオルガノポリシロキサンは、軟化点が50℃以上であるものが好ましい。このようなオルガノポリシロキサンの配合量は限定されないが、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して0～250質量部の範囲内であることが好ましい。これは、このようなオルガノポリシロキサンの含有量が上

記範囲内であると、反応性ホットメルトシリコーンを調製しやすいからである。

[0038] さらに、本組成物には、その他任意の成分として、シリカ、酸化チタン、ガラス、アルミナ、酸化亜鉛等の無機質充填剤；ポリメタクリレート樹脂等の有機樹脂微粉末；耐熱剤、蛍光体、染料、顔料、難燃性付与剤を配合してもよい。

[0039] 上記（Ａ）成分～（Ｃ）成分を含み、必要に応じてその他の成分を含む架橋性シリコーン組成物を容器に充填し、該容器を加熱する。本組成物を容器に充填する際、本組成物を脱気しておくことが好ましい。充填後、本組成物を充填した容器を加熱することにより、本組成物をＢステージ状に架橋させる。

[0040] このようにして得られる反応性ホットメルトシリコーンは２５℃において非流動性で、１２０℃の溶融粘度が５，０００Pa・s以下、好ましくは、１０～３，５００Pa・sの範囲内である。ここで、非流動性とは、無負荷の状態で流動しないことを意味し、例えば、JIS K 6863-1994「ホットメルト接着剤の軟化点試験方法」で規定されるホットメルト接着剤の環球法による軟化点試験方法で測定される軟化点未満での状態を示し、つまり、２５℃において非流動性であるためには、軟化点が２５℃よりも高い必要がある。２５℃において非流動性であると、該温度での形状保持性が良好で、表面粘着性の低い反応性ホットメルトシリコーンが得られるからである。また、１２０℃の溶融粘度が上記の範囲内であると、ホットメルト後、２５℃に冷却した後の密着性が良好な反応性ホットメルトシリコーンが得られる。

[0041] 本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器で利用できる容器は、耐熱性を有し、架橋性シリコーン組成物のヒドロシリル化反応を阻害しないものであれば特に限定されない。このような容器としては、プラスチック製または金属製のカートリッジ；プラスチックフィルムパック、金属箔積層フィルムパック、ジャバラ状容器、チューブ状容器等のフレキシブル容器；プラ

スチック製または金属製のペール缶；およびプラスチック製または金属製のドラム缶が例示され、特に、カートリッジが好ましい。このようなカートリッジとしては、例えば、武蔵エンジニアリング株式会社製のPSY-30FH2-PやPSY-30FHPにより入手可能である。

[0042] 本発明の反応性ホットメルトシリコン充填容器の一例であるカートリッジの一部破断面を有する斜視図を図1に示した。図1において、カートリッジ1中に反応性ホットメルトシリコン2が充填されており、前記カートリッジ内部には該反応性ホットメルトシリコンを溶融押し出しするためのプランジャー3が設けられている。一般に、カートリッジをメルターに装着し反応性ホットメルトシリコンを溶融状態とし、機械力あるいはガス圧によりプランジャーを移動させることにより反応性ホットメルトシリコンを押し出す。なお、反応性ホットメルトシリコンの吐出量をコントロールすることにより、形状、膜厚、塗布面積等を制御することができる。

[0043] 本発明の反応性ホットメルトシリコン充填容器によれば、平坦な表面を有する基板上に搭載された光半導体素子をエアーを巻き込むことなしに、半球状、半円筒形状、ドーム形状等の任意の形状で封止あるいは被覆することができる。

[0044] 次に、本発明の反応性ホットメルトシリコンの製造方法を詳細に説明する。

[0045] 本発明の反応性ホットメルトシリコンの製造方法は、上記で説明したとおりであり、前記(A)成分～(C)成分、および必要に応じてその他任意の成分を含む架橋性シリコン組成物を容器中で加熱してB-ステージ状に架橋させることを特徴とする。

[0046] 本発明の製造方法では、本組成物を容器中で加熱してB-ステージ状に架橋させるので、本組成物に含まれる低分子量成分や反応抑制等の揮発が抑制され、また、ヒドロシリル化反応で懸念されるエアインヒビション等の問題が生じ難い。

実施例

[0047] 本発明の反応性ホットメルトシリコン充填容器および反応性ホットメルトシリコンの製造方法を実施例により詳細に説明する。なお、式中、Me、Ph、Viはそれぞれメチル基、フェニル基、ビニル基を表す。また、反応性ホットメルトシリコンの120℃における溶融粘度、初期トルク値が発現する時間、および硬化物の硬さを次のようにして測定した。

[0048] [反応性ホットメルトシリコンの溶融粘度]

反応性ホットメルトシリコンの120℃の溶融粘度を、ティー・エイ・インスツルメント社製のAR550レオメーターにより、直径20mm、コーン角2°のコーンプレートを用いて、せん断速度1/sで測定した。

[0049] [初期トルク値が発現するまでの時間]

所定温度に設定した測定装置（ALPHA TECHNOLOGIES Rheometer MDR 2000P）の固定された下ダイと昇降する上ダイから構成される円盤状のダイ中空部に6gの反応性ホットメルトシリコンをセットし、上下のダイを密閉した後、振動数1.66Hz、振動角=1°の条件において、トルク値が1dNmに到達するまでの時間を測定し、これを初期トルク値が発現するまでの時間とした。

[0050] [硬化物の硬さ]

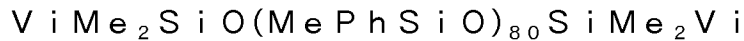
反応性ホットメルトシリコンを150℃で2時間プレス成形することによりシート状の硬化物を作製した。このシート状硬化物の硬さをJIS K 6253に規定されるタイプDデュロメータにより測定した。

[0051] [実施例1～5]

下記の成分を表1に示した組成（質量部）で均一に混合して架橋性シリコン組成物を調製した。なお、表1中、SiH/Viは、（A）成分中のビニル基1モルに対する、（B）成分中のケイ素原子結合水素原子のモル数を示す。その後、この架橋性シリコン組成物を容量30ccのカートリッジ中に充填し、表1に示した条件で加熱し、次いで、室温まで冷却することにより反応性ホットメルトシリコン充填容器を作製した。

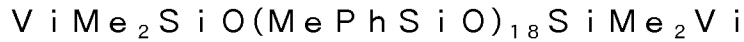
[0052] （A）成分として、次の成分を用いた。

(a-1) 成分：式：



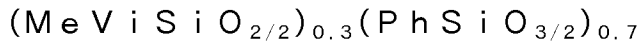
で表されるメチルフェニルポリシロキサン

(a-2) 成分：式：



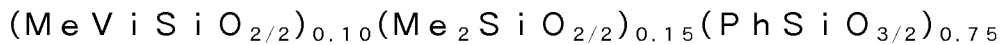
で表されるメチルフェニルポリシロキサン

(a-3) 成分：軟化点が100℃である、平均単位式：



で表されるオルガノポリシロキサン

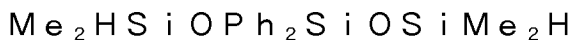
(a-4) 成分：軟化点が150℃である、平均単位式



で表されるオルガノポリシロキサン

[0053] (B) 成分として、次の成分を用いた。

(b-1) 成分：式：



で表されるオルガノポリシロキサン

[0054] (C) 成分として、次の成分を用いた。

(c-1) 成分：白金-1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体の1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン溶液（白金金属を0.1重量%含有する溶液）

[0055] その他の成分として、次の成分を用いた。

(f-1) 成分：粘度が30 mPa・sである分子鎖両末端シラノール基封鎖メチルビニルシロキサンオリゴマーと3-グリシドキシプロピルトリメトキシシランの縮合反応物からなる接着付与剤

[0056]

[表1]

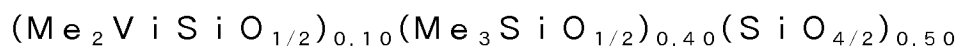
		実 施 例				
		1	2	3	4	5
架橋性シリコーン組成物 (質量部)	(a-1)成分	—	—	—	—	23.13
	(a-2)成分	—	10.00	40.00	20.00	10.20
	(a-3)成分	69.72	61.88	38.13	46.42	34.95
	(a-4)成分	—	—	—	9.74	11.92
	(b-1)成分	30.28	28.12	21.81	23.34	19.30
	(c-1)成分	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025	0.0025
	(f-1)成分	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50
SiH/Vi		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
B-ステージ化の条件(温度/時間)		120℃/20分	120℃/20分	120℃/50分	120℃/20分	120℃/20分
反応性ホットメルトシリコーンの120℃における溶融粘度(Pa・s)		29.3	37.2	210	20.6	87.5
反応性ホットメルトシリコーンの150℃で初期トルク値が発現するまでの時間(分)		4	4	10	6	7
硬化物の硬さ		75	72	38	58	50

[0057] [実施例6～9]

上記および下記の成分を表2に示した組成(質量部)で均一に混合して架橋性シリコーン組成物を調製した。なお、表2中、SiH/Viは、(A)成分中のビニル基1モルに対する、(B)成分中のケイ素原子結合水素原子のモル数を示す。その後、この架橋性シリコーン組成物を容量30ccのカートリッジ中に充填し、表2に示した条件で加熱し、次いで室温まで冷却することにより反応性ホットメルトシリコーン充填容器を作製した。

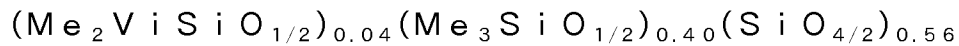
[0058] (A)成分として、前記の他、次の成分を用いた。

(a-5)成分: 軟化点が300℃である、平均単位式:



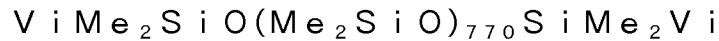
で表されるオルガノポリシロキサン

(a-6) 成分：軟化点が300℃である、平均単位式



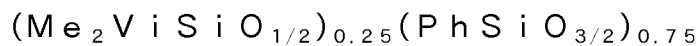
で表されるオルガノポリシロキサン

(a-7) 成分：式：



で表されるジメチルポリシロキサン

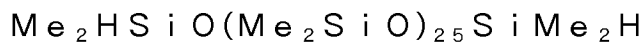
(a-8) 成分：軟化点が100℃である、平均単位式：



で表されるオルガノポリシロキサン

[0059] (B) 成分として、前記の他、次の成分を用いた。

(b-2) 成分：式：



で表されるオルガノポリシロキサン

[0060] (D) 成分として、次の成分を用いた。

(d-1) 成分：1, 3, 5, 7-テトラメチル-1, 3, 5, 7-テトラビニルシクロテトラシロキサン

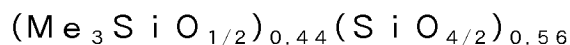
(d-2) 成分：トリス(1, 1-ジメチルプロピンオキシ)メチルシラン

[0061] (E) 成分として、前記の他、次の成分を用いた。

(e-1) 成分：2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルパオキシ)ヘキサン

[0062] その他の成分として、次の成分を用いた。

(g-1) 成分：軟化点100℃である、平均単位式：



で表されるオルガノポリシロキサン

[0063]

[表2]

		実 施 例			
		6	7	8	9
架橋性シリコン組成物の組成(質量部)	(a-1)成分	—	—	18. 19	15. 83
	(a-5)成分	44. 0	33. 2	—	—
	(a-6)成分	—	24. 6	—	—
	(a-7)成分	3. 10	2. 30	—	—
	(a-8)成分	—	—	64. 89	56. 49
	(b-1)成分	—	—	14. 66	24. 45
	(b-2)成分	11. 40	8. 60	—	—
	(c-1)成分	0. 06	0. 04	0. 07	0. 14
	(d-1)成分	—	—	1. 82	2. 85
	(d-2)成分	—	—	—	0. 63
	(e-1)成分	1. 0	0. 7	0. 36	0. 32
	(g-1)成分	40. 5	30. 5	—	—
SiH/Vi		0. 3	0. 2	0. 5	0. 9
B-ステージ化の条件 (温度/時間)		120℃/ 30分	120℃/ 30分	120℃/ 30分	120℃/ 30分
反応性ホットメルトシリ コーンの120℃におけ る熔融粘度(Pa・s)		250	2580	170	50
反応性ホットメルトシリ コーンの180℃で初期 トルク値が発現するま での時間(秒)		10	71	30	10
硬化物の硬さ		30	48	56	25

産業上の利用可能性

[0064] 本発明の反応性ホットメルトシリコーン充填容器は、加熱により、ギャップフィル性の良好な反応性ホットメルトシリコーンを取り出し可能であるので、基板上にLED等の光半導体素子が搭載されたチップアレイモジュールにおける前記光半導体素子の封止や被覆を効率的に行うことができる。

符号の説明

- [0065] 1 カートリッジ
 2 反応性ホットメルトシリコーン

3 プランジャー

請求の範囲

- [請求項1] (A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、
- (B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン { (A) 成分中のアルケニル基1モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が0.01～10モルとなる量}、および
- (C) 触媒量のヒドロシリル化反応用触媒を含む架橋性シリコーン組成物を容器に充填し、該容器を加熱することにより前記組成物をBステージ状に架橋させ、25℃で非流動性であり、120℃での熔融粘度が5,000 Pa・s以下の反応性ホットメルトシリコーンを形成することを特徴とする反応性ホットメルトシリコーン充填容器。
- [請求項2] 架橋性シリコーン組成物が、さらに、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して0.0001～5質量部の(D)反応抑制剤を含む、請求項1に記載の反応性ホットメルトシリコーン充填容器。
- [請求項3] 架橋性シリコーン組成物が、さらに、(A)成分～(C)成分の合計100質量部に対して0.01～10質量部の(E)有機パーオキシドを含む、請求項1または2に記載の反応性ホットメルトシリコーン充填容器。
- [請求項4] 容器が、カートリッジ、フレキシブル容器、ペール缶、またはドラム缶である、請求項1乃至3のいずれか1項に記載の反応性ホットメルトシリコーン充填容器。
- [請求項5] (A) アルケニル基を有し、軟化点が50℃以上である分岐鎖状のオルガノポリシロキサンを少なくとも含む、アルケニル基結合オルガノポリシロキサン、
- (B) 一分子中に少なくとも2個のケイ素原子結合水素原子を有する

オルガノポリシロキサン { (A) 成分中のアルケニル基 1 モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が 0.01 ~ 10 モルとなる量 }、および

(C) 触媒量のヒドロシリル化反応用触媒

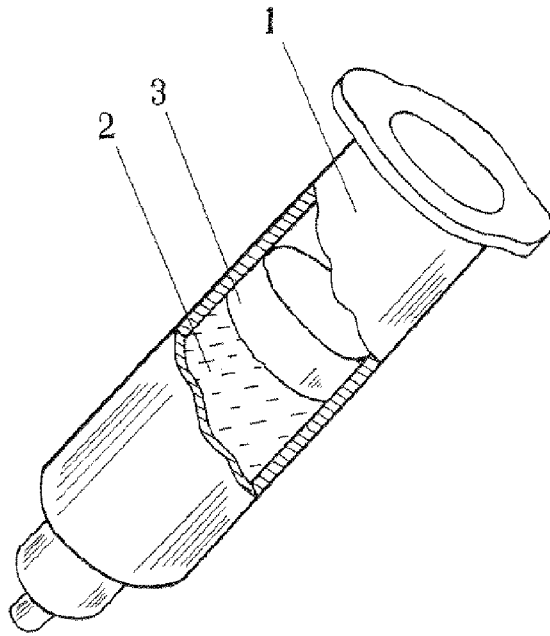
を含む架橋性シリコーン組成物を容器中で加熱して B ステージ状に架橋させることを特徴とする、25℃で非流動性であり、120℃での熔融粘度が 5,000 Pa・s 以下の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法。

[請求項6] 架橋性シリコーン組成物が、さらに、(A) 成分～(C) 成分の合計 100 質量部に対して 0.0001 ~ 5 質量部の (D) 反応抑制剤を含む、請求項 5 に記載の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法。

[請求項7] 架橋性シリコーン組成物が、さらに、(A) 成分～(C) 成分の合計 100 質量部に対して 0.01 ~ 10 質量部の (E) 有機パーオキサイドを含む、請求項 5 または 6 に記載の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法。

[請求項8] 容器が、カートリッジ、フレキシブル容器、ペール缶、またはドラム缶である、請求項 5 乃至 7 のいずれか 1 項に記載の反応性ホットメルトシリコーンの製造方法。

【図1】



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/038184

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08L83/07 (2006.01) i, C08L83/05 (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)

Int.Cl. C08L83/07, C08L83/05

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	1971-2017
Registered utility model specifications of Japan	1996-2017
Published registered utility model applications of Japan	1994-2017

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	JP 2016-124967 A (DOW CORNING TORAY SILICONE) 11 July 2016, claim 1, paragraphs [0073], [0086], [0091]-[0095], table 1 (Family: none)	1-8
X A	JP 2016-504461 A (DOW CORNING CORPORATION) 12 February 2016, claim 5, paragraphs [0049], [0053], [0131], [0197] & US 2015/0315427 A1, claim 5, paragraphs [0071], [0076], [0154], [0221] & WO 2014/100656 A1 & CN 104870585 A	5-7 1-4, 8



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
25 December 2017

Date of mailing of the international search report
16 January 2018

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/JP2017/038184

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2016/103654 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE) 30 June 2016, table 1 & CN 107207859 A & KR 10-2017-0101228 A	1-8
A	WO 2015/093329 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE) 25 June 2015, table 1 & TW 201527478 A	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08L83/07(2006.01)i, C08L83/05(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. C08L83/07, C08L83/05

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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	JP 2016-124967 A（東レ・ダウコーニング株式会社）2016.07.11, 請求項1, [0073], [0086], [0091]-[0095], [表1] （ファミリーなし）	1-8
X A	JP 2016-504461 A（ダウ コーニング コーポレーション） 2016.02.12, 請求項5, [0049], [0053], [0131], [0197] & US 2015/0315427 A1, claim5, [0071], [0076], [0154], [0221] & WO 2014/100656 A1 & CN 104870585 A	5-7 1-4, 8

☒ 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

25.12.2017

国際調査報告の発送日

16.01.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/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）

海老原 えい子

4 J

6289

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
A	WO 2016/103654 A1 (東レ・ダウコーニング株式会社) 2016. 06. 30, [表 1] & CN 107207859 A & KR 10-2017-0101228 A	1-8
A	WO 2015/093329 A1 (東レ・ダウコーニング株式会社) 2015. 06. 25, [表 1] & TW 201527478 A	1-8