

(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
2022年10月6日(06.10.2022)



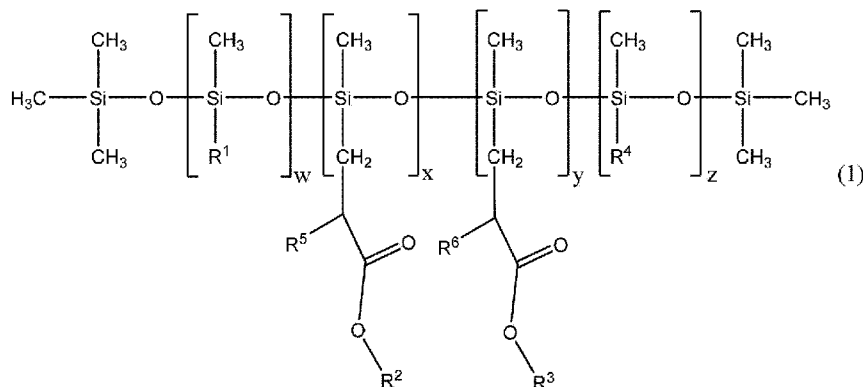
(10) 国際公開番号

WO 2022/210781 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 77/38 (2006.01) C09K 5/10 (2006.01)
C08L 83/04 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/015685
- (22) 国際出願日: 2022年3月29日(29.03.2022)
- (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 2021-062162 2021年3月31日(31.03.2021) JP
- (71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 石田 浩也 (ISHIDA, Hiroya); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). カヤル マニシュ (KAYAL, Manish); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 田口 昌浩, 外 (TAGUCHI, Masahiro et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門 E S ビル 8 階 ダイヤ特許事務所 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: SIDE CHAIN-TYPE ALKYL-MODIFIED SILICONE RESIN

(54) 発明の名称: 側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂



(57) Abstract: A side chain alkyl-modified silicone resin according to the present invention is represented by general formula (1) below. (In formula (1), R¹ is a hydrogen atom or an alkyl group; R² is an alkyl group I having a carbon number of 1 to 14; R³ is an alkyl group II having a carbon number of 15 to 18; R⁵ and R⁶ are independent hydrogen atoms or methyl groups, respectively; R⁴ is a methyl group or an ethyl group; w, x, y, and z represent unit numbers of component units, where w, x, y, and z may be 0, x and y are never simultaneously 0, and the percentage ratio of the total of x and y to the total of w, x, y, and z is 80% to 100%.) According to the present invention, a silicone resin can be provided which has high heat conductivity while maintaining flexibility.

(57) 要約: 本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂は、下記一般式(1)で表される。(式(1)において、R¹は水素原子又はアルケニル基であり、R²は炭素数1~14のアルキル基Iであり、R³は炭素数15~18のアルキル基IIであり、R⁵及びR⁶はそれぞれ独立して水素原子又はメチル基であり、R⁴はメチル基又はエチル基であり、w、x、y、zはそれぞれの構成単位のユニット数を表し、w、x、y、zはそれぞれ0であってもよく、x、yは同時に0となることはなく、w、x、y、zの合計に対するxとyの合計の割合が80~100%である。)本発明によれば、柔軟性を維持しつつ、熱伝導率が高いシリコーン樹脂を提供することができる。



WO 2022/210781 A1

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,
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, 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：側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂

技術分野

[0001] 本発明は側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂及び該側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂を含む樹脂コンポジット材料に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器は、回路の高集積化に伴う発熱量の増加から熱対策が重要となり、そのための放熱材料の需要が高まっている。放熱用シリコーングリースは、各種電子機器から発生する熱を逃がす用途などとして使用され、一般にシリコーン樹脂（マトリクス樹脂）とフィラーとを含有する材料であり、高い熱伝導性及び柔軟性が求められている。放熱用シリコーングリースの熱伝導性を向上させるためには、熱伝導率の高いフィラーを使用すること、フィラーの充填率を高めること、マトリクス樹脂の熱伝導率を向上させることなどが考えられる。

しかしながら、熱伝導率の高いフィラーとして窒化ホウ素、窒化アルミニウム、ダイヤモンドなどが知られているが、これらのフィラーはシリコーン樹脂への馴染みや分散性が低く、充填率を高めると柔軟性が悪くなる傾向がある。また、フィラーの充填率を高めようとする、放熱用シリコーングリースのようなコンポジット材料の比重が重くなるため、電子機器を軽量化することができない。

一方、マトリクス樹脂の熱伝導性を改善する方法として、シリコーン鎖にアルキル基を導入した例（特許文献1～5）、シリコーン鎖に液晶部位を導入した例（非特許文献1）なども報告されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開平10-110179号公報

特許文献2：特開平11-049958号公報

特許文献3：特開2005-154532号公報

特許文献4：特開2007-277387号公報

特許文献5：特開2009-209230号公報

非特許文献

- [0004] 非特許文献1：Ying Li, Chenggong Li, Liang Zhang, Wenyong Zhou., Journal of Materials Science: Materials in Electronics, Published online: 18 March 2019 (<https://doi.org/10.1007/s10854-019-01150-1>)

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0005] しかしながら、特許文献1～5には、シリコーン樹脂に導入するアルキル基の種類及びアルキル基の導入率と、熱伝導率との関係について何ら記載されておらず、具体的にどのようにしてシリコーン樹脂の熱伝導率を向上させるかが明らかではない。また、非特許文献1ではシリコーン鎖に液晶部位を導入することにより結晶性を高めて熱伝導率を向上させているが、樹脂が架橋しすぎるため固体となってしまう柔軟性を失っている。

以上のように、シリコーン樹脂自体の熱伝導率を向上させる具体的手法について、ほとんど例がなく解決手段が乏しい状況である。

そこで本発明では、柔軟性を維持しつつ、熱伝導率が高いシリコーン樹脂を提供することを課題とする。

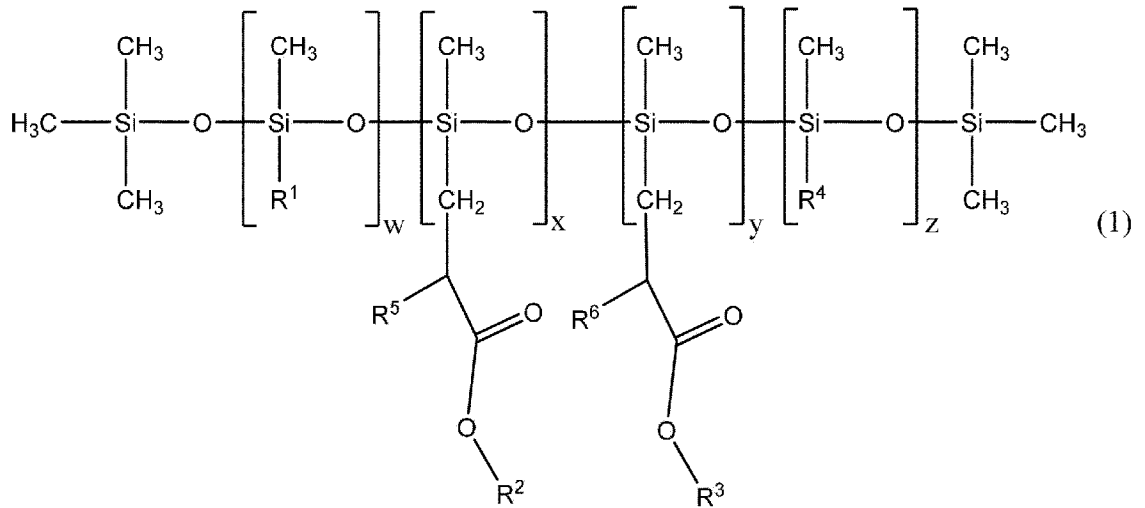
課題を解決するための手段

- [0006] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、アルキル基又はメタアクリル基に由来する鎖を介してアルキル基を導入した式(1)で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂により上記課題が解決できることを見出し、本発明を完成させた。

すなわち、本発明は、下記[1]～[9]に関する。

[0007] [1] 下記一般式(1)で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[化1]



(式(1)において、 R^1 は水素原子又はアルケニル基であり、 R^2 は炭素数1～14のアルキル基Iであり、 R^3 は炭素数15～18のアルキル基IIであり、 R^5 及び R^6 はそれぞれ独立して水素原子又はメチル基であり、 R^4 はエチル基であり、 w 、 x 、 y 、 z はそれぞれの構成単位のユニット数を表し、 w 、 x 、 y 、 z はそれぞれ0であってもよく、 x 、 y は同時に0となることはなく、 w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x と y の合計の割合が80～100%である。)

[2] 前記式(1)において、 w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x の割合が20～80%であり、 y の割合が15～75%である、上記[1]に記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[3] 前記 R^2 及び R^3 が直鎖状のアルキル基である、上記[1]又は[2]に記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[4] 式(1)において w 、 x 、 y 、 z の合計に対して w の割合が0%を超え20%以下である、上記[1]～[3]のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[5] 式(1)において w 、 x 、 y 、 z の合計に対して w の割合が0%である、上記[1]～[3]のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

1～14のアルキル基Iであり、R³は炭素数15～18のアルキル基IIであり、R⁵及びR⁶はそれぞれ独立して水素原子又はメチル基であり、R⁴はエチル基である。w、x、y、zはそれぞれの構成単位のユニット数を表し、w、x、y、zはそれぞれ0であってもよく、x、yは同時に0となることはなく、w、x、y、zの合計に対するxとyの合計の割合が80～100%である。

なお、本明細書において、wで示す括弧内の構成単位を「R¹を有する構成単位」と記載することがあり、xで示す括弧内の構成単位を「R²を有する構成単位」と記載することがあり、yで示す括弧内の構成単位を「R³を有する構成単位」と記載することがあり、zで示す括弧内の構成単位を「R⁴を有する構成単位」と記載することがある。

また、本明細書において、「側鎖型」とは、化学種がポリマー主鎖分子の中心部分に結合している型を意味する。

[0010] 本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂は、一般式(1)の構造を有することにより、柔軟性を維持しつつ熱伝導率が向上する。熱伝導率が向上する理由は定かではないが、以下のように推定される。

樹脂の熱伝導率を向上させるには、ポリマー鎖のフォノン伝搬を上げることが効果的である。Si-O-Si結合から形成されるシリコーン鎖よりも、C-C-C結合から形成されるアルキル鎖の方が、結合角が広くひずみが少ないためフォノン伝搬が改善される。さらに、式(1)で示す通り、アルキル基はシリコーン鎖の側鎖に導入されているので、末端に導入するよりもアルキル基の導入率を上げることができる。これに加え、アルキル基はアクリル基又はメタアクリル基に由来する鎖を介して導入されている。アクリル基又はメタアクリル基に由来する鎖は酸素結合を有していることから、水素結合によりポリマー間のグレインが形成されやすくなり、熱伝導率がより向上すると考えられる。また、側鎖に導入されたアルキル基によりポリマー分子の回転半径が大きくなることや、分子持続長が長くなることにより、熱伝導率が向上すると考えられる。

このように、フォノン伝搬を高められるアルキル基を、アクリル基又はメタアクリロイル基に由来する鎖を介して多く導入しているため、熱伝導率が向上すると推定される。

[0011] <R¹>

式(1)においてR¹は水素原子又はアルケニル基である。アルケニル基としては、好ましくは炭素数2~10のアルケニル基であり、例えば、ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基、デセニル基などを挙げることができる。

式(1)において、wはR¹を有する構成単位のユニット数を表し、0~10であることが好ましく、0~5であることがより好ましい。

また、式(1)においてw、x、y、zの合計に対するwの割合は、好ましくは0%であるか又は0%を超え20%以下であり、より好ましくは0%であるか又は0%を超え10%以下である。wの割合がこのような範囲であると、側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の凝集を抑制でき、柔軟性を良好に維持することができる。

[0012] R¹はケイ素原子に結合した水素原子又はアルケニル基を表すため、反応性の高い部位となる。そのため、本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂はR¹を有することにより、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンやヒドロジェンオルガノポリシロキサンなどと付加反応による硬化物を形成させることができる。

式(1)においてR¹は存在していなくてもよい(すなわち、w=0であってもよい)。R¹が存在しない場合は、凝集物の形成を効果的に抑制できる。

[0013] <R²>

式(1)においてR²は炭素数1~14のアルキル基Iである。側鎖にこのような長鎖アルキル基Iを導入することにより、熱伝導率を高めることができる。R²は炭素数6~12のアルキル基であることが好ましく、炭素数8~12のアルキル基であることがより好ましく、炭素数12のアルキル基であ

ることがさらに好ましい。

[0014] 式(1)において、 x は R^2 を有する構成単位のユニット数を表し、0～100であることが好ましく、5～80であることがより好ましく、10～60であることがさらに好ましい。

式(1)において w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x の割合は0～100%であり、好ましくは60～100%であり、より好ましくは80～100%である。

式(1)が後述する R^3 を有する構成単位を有する場合、例えば w 、 x 、 y 、 z の合計に対する y の割合が15～75%である場合は、 x の割合は20～80%の範囲であってもよく、このような場合でも熱伝導率を高めることができる。

[0015] R^2 で表されるアルキル基 $|$ は、熱伝導率向上の観点から直鎖状のアルキル基であることが好ましい。直鎖状のアルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、 n -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、 n -ウンデシル基、 n -ドデシル基、 n -トリデシル基、 n -テトラデシル基を挙げることができる。

式(1)において複数の R^2 は同一であっても異なってもよいが、製造の容易性などから同一であることが好ましい。

[0016] $\langle R^3 \rangle$

式(1)において R^3 は炭素数15～18のアルキル基 $||$ である。本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂は、アルキル基 $||$ を導入することにより、熱伝導率を高めることができる。

R^3 は炭素数16～18の長鎖アルキル基であることが好ましく、炭素数18の長鎖アルキル基であることがより好ましい。

[0017] 式(1)において、 y は R^3 を有する構成単位のユニット数を表し、0～100であることが好ましく、10～70であることがより好ましく、20～50であることがさらに好ましい。

また、式（１）において w 、 x 、 y 、 z の合計に対する y の割合は、 $0\sim 100\%$ であり、好ましくは $15\sim 75\%$ であり、より好ましくは $20\sim 70\%$ である。 y の割合をこれら下限値以上とすることにより、側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の熱伝導率が高まりやすくなる。また y の割合をこれら上限値以下とすることにより、側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の性状が室温（ 23°C ）において液状となりやすく、取り扱い性が良好になる。

[0018] また、式（１）において w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x と y の合計の割合は $80\sim 100\%$ である。 x と y の合計の割合が 80% 未満であると、側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂におけるアルキル基の数が少なくなり、そのため熱伝導率が低下する。 x と y の合計の割合は、好ましくは $85\sim 100\%$ であり、より好ましくは $90\sim 100\%$ であり、さらに好ましくは $95\sim 100\%$ である。

[0019] 式（１）において、 x 、 y はそれぞれ 0 であってもよいが、 x 、 y は同時に 0 になることはなく、好ましくは x 、 y は共に 0 でないことが好ましい。すなわち、アルキル基Ⅰ及びアルキル基Ⅱを両方導入することが好ましく、これにより、より熱伝導率が向上しやすくなる。

[0020] R^3 で表されるアルキル基Ⅱは、熱伝導率向上の観点から直鎖状のアルキル基であることが好ましい。直鎖状のアルキル基としては、 n -ペンタデシル基、 n -ヘキサデシル基、 n -ヘプタデシル基、 n -オクタデシル基を挙げることができる。

式（１）において複数の R^3 は同一であっても異なってもよいが、製造の容易性などから同一であることが好ましい。

[0021] $\langle R^5, R^6 \rangle$

R^5 及び R^6 はそれぞれ独立して水素原子又はメチル基である。中でも、熱伝導率向上の観点から、 R^5 及び R^6 は共にメチル基であることが好ましい。

[0022] $\langle R^4 \rangle$

式（１）において R^4 はエチル基である。式（１）において、 z は R^4 を有する構成単位のユニット数を表し、 $0\sim 10$ であることが好ましく、 $0\sim 5$

であることがより好ましい。

また、式（１）において w 、 x 、 y 、 z の合計に対して、 z の割合は、好ましくは０％であるか又は０％を超え２０％以下であり、より好ましくは０％であるか又は０％を超え１０％以下である。

本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂を製造する際に、 R^4 を導入することにより、 R^1 の量を調整しやすくなる。なお、側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の製造過程において、 R^1 の量が適切に調整されるのであれば R^4 は導入しなくてもよい（すなわち $z = 0$ であってもよい）。

[0023] 本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂は、 R^1 を有する構成単位、 R^2 を有する構成単位、 R^3 を有する構成単位、 R^4 を有する構成単位の割合が上記したとおりであればよく、分子鎖内での各構造単位の並び方は限定されない。すなわち、分子内に各構造単位がブロック的に存在してしてもよいし、ランダム的に存在しててもよい。

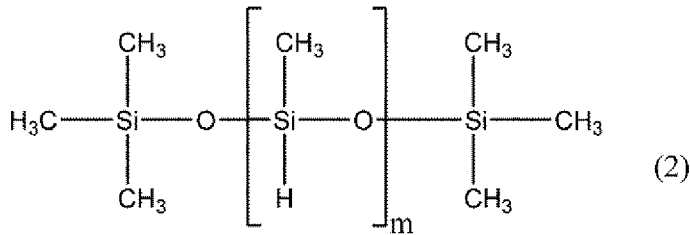
[0024] <分子量>

本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の重量平均分子量は特に限定されないが、好ましくは $5,000 \sim 20,000$ であり、より好ましくは $7,000 \sim 18,000$ である。重量平均分子量がこのような範囲であると、適切な粘度に調整することができ、柔軟性を維持しやすくなる。重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定を行い、ポリスチレン換算により求められる値である。

[0025] [側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の製造方法]

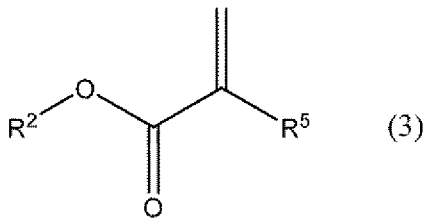
本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の製造方法は、特に限定されない。例えば下記式（２）で表されるヒドロシル基を有するオルガノポリシロキサン化合物を、白金触媒の存在下で、下記式（３）で示すアルキル（メタ）アクリレートⅠ及び下記式（４）で示すアルキル（メタ）アクリレートⅡから選択される少なくとも一方と反応させる工程を備える方法が挙げられる。

[化3]



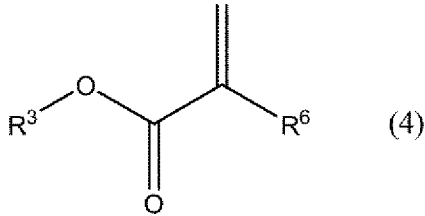
(式(2)において、 m は10~200であり、好ましくは10~120であり、より好ましくは15~80である。)

[化4]



(式(3)における R^2 及び R^5 は式(1)のものと同義である)

[化5]



(式(4)における R^3 及び R^6 は式(1)のものと同義である)

[0026] このような工程を備えることで、式(2)のヒドロシリル基(SiH)の一部又は全部が、アルキル(メタ)アクリレートI及びアルキル(メタ)アクリレートIIの少なくともいずれかと反応して、式(1)における R^2 を有する構成単位及び R^3 を有する構成単位を形成することができる。この際、 R^2 及び R^3 の導入量は、アルキル(メタ)アクリレートI及びアルキル(メタ)アクリレートIIの配合量を調節することで、所望の量に調整することができる。

本工程において、反応温度、反応時間は適宜調整すればよく、例えば反応温度を40~120℃とすることが好ましく、反応時間は1~24時間とすることが好ましい。

反応は溶媒の存在下で行ってもよい。溶媒の種類は特に限定されず、不飽和二重結合を有する炭化水素の種類に応じて適宜調整すればよいが、合成物の溶解性や反応温度等の観点から、トルエンが好ましい。

[0027] 上記した反応の後、必要に応じて式(2)における残存したヒドロシリル基の数を低減させるため、さらにエチレンやメチルメタクリレート、エチルメタクリレート、メチルアクリレート、エチルアクリレートを加えて反応させてもよい。エチレンを加えて反応させた場合は、式(1)における R^4 を有する構成単位が形成される。メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、メチルアクリレート、エチルアクリレートを加えて反応させた場合は、式(1)における R^2 を有する構成単位が形成される。

上記のとおりにして、式(1)で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂を得ることができる。なお、 R^1 をアルケニル基とする場合は、不飽和二重結合を2つ有する炭化水素、好ましくは両末端に不飽和二重結合を有する炭素数4~18の炭化水素を添加して、ヒドロシリル基と反応させるとよい。

[0028] [樹脂コンポジット材料]

本発明の樹脂コンポジット材料は、上記した一般式(1)で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂と絶縁性熱伝導フィラーを含有する。該樹脂コンポジット材料は、側鎖型アルキル変性樹脂がマトリクス樹脂となり、該マトリクス樹脂中に絶縁性熱伝導フィラーが分散している。

上記したとおり、本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂は熱伝導性に優れるため、絶縁性熱伝導フィラーを併用することにより、より効果的に熱伝導率が向上する。

[0029] 樹脂コンポジット材料中の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂の含有量は、特に制限されず、絶縁性熱伝導フィラーの分散性、熱伝導性を考慮しつつ適宜調整すればよいが、好ましくは10~97質量%であり、より好ましくは50~95質量%である。

[0030] <絶縁性熱伝導フィラー>

本発明の樹脂コンポジット材料は、絶縁性熱伝導フィラーを含有する。絶縁性熱伝導フィラーを含有することにより、樹脂コンポジット材料の絶縁性及び熱伝導性を向上させることができる。

[0031] 絶縁性熱伝導フィラーの平均粒径は、特に限定されないが、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $250\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

なお、平均粒径は、例えば、レーザー回折法などにより測定することができ、累積体積が50%であるときの粒子径 (d_{50}) を平均粒径とすればよい。

[0032] 絶縁性熱伝導フィラーは、例えば、 20°C での体積抵抗率が好ましくは $1.0 \times 10^{10}\ \Omega \cdot \text{cm}$ 以上の絶縁性、及び熱伝導率が好ましくは $10\ \text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$ 以上の熱伝導性を有する。

体積抵抗率は、JIS C 2141に準拠して測定することができる。

熱伝導率は、例えば、クロスセクションポリッシャーにて切削加工したフィラー断面に対して、株式会社ベテル製サーマルマイクロスコプを用いて、周期加熱サーモリフレクタンス法により測定することができる。

[0033] 絶縁性熱伝導フィラーの含有量は、特に制限されないが、側鎖型アルキル変性シリコン樹脂100質量部に対して、好ましくは10~97質量部であり、より好ましくは50~95質量部である。絶縁性熱伝導フィラーの含有量がこれら下限値以上であると、樹脂コンポジット材料の熱伝導性が高まる。一方、絶縁性熱伝導フィラーの含有量がこれら上限値以下であると、樹脂コンポジット材料が必要以上に硬くなったり、取り扱い性が悪くなったりすることを防止することができる。

[0034] 絶縁性熱伝導フィラーの種類としては、特に制限されないが、例えば、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化アルミニウム、及びダイヤモンドなどが挙げられる。

絶縁性熱伝導フィラーは1種を単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0035] <その他の成分>

樹脂コンポジット材料は、本発明の効果を阻害しない範囲で必要に応じて、上記した一般式（１）で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂以外のその他のシリコーン樹脂を含んでいてもよい。

その他のシリコーン樹脂としては、アルケニル基、ヒドロシリル基、アルコキシ基などの反応性基を有するシリコーン樹脂であってもよいし、反応基を有しないシリコーン樹脂であってもよい。

その他のシリコーン樹脂を含有させる場合、その含有量は、樹脂コンポジット材料に対して、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは１０質量％以下である。

また、本発明の樹脂コンポジット材料は、必要に応じて、分散剤、酸化防止剤、熱安定剤、着色剤、難燃剤、帯電防止剤等の添加剤を含有してもよい。

[0036] 本発明の樹脂コンポジット材料の用途は特に限定されないが、放熱用シリコーングリースとして各種放熱用途に使用することができる。例えば、前記樹脂コンポジット材料を、半導体素子などの電子部品とヒートシンクとの間に配置して、電子部品から発生する熱を効果的に放熱することができる。

実施例

[0037] 以下、本発明の具体的な実施例及び比較例を挙げることにより、本発明を明らかにする。なお、本発明は以下の実施例に限定されない。

[0038] 各実施例、比較例の各化合物（シリコーン樹脂）の評価方法は以下のとおりである。

[0039] [熱伝導率]

各実施例、比較例の各化合物の熱伝導率の測定をC-Therm社製のTCiにより行い、以下の評価基準に基づいて評価した。

（評価）

AA・・・0.165W/mK以上

A・・・0.160W/mK以上0.165W/mK未満

B . . . 0.150W/mK以上0.160W/mK未満

C . . . 0.150W/mK未満

[0040] [初期形状]

各実施例、比較例の各化合物（シリコン樹脂）の性状が室温（23℃）において液体であれば「A」、固体であれば「B」として評価した。

[0041] [シリコンへの溶解性]

25℃において、各実施例及び比較例の化合物3gとシリコン7gとを混合して各化合物の溶解性を確認した。なお、シリコンとしてはジメチルシリコンオイル（信越化学製「KF-96-100cst」）を用いた。

溶解した場合を「A」、溶解しなかった場合を「C」として評価した。

[0042] [経時変化（ゲル化）]

各実施例、比較例の各化合物（シリコン樹脂）について、120℃、85%湿度で24時間経過させた後のゲル化の有無を確認した。

（評価）

A . . . ゲル化が確認されなかった。

C . . . ゲル化が確認された。

[0043] 実施例及び比較例で使用した側鎖型アルキル変性シリコン樹脂は、次に示す化合物1～21、比較化合物1～10として準備した。

[0044] (化合物1)

化合物1は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はメチル基、R⁵はメチル基)7.5gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し、化合物1を得た。

化合物1をSi-NMRで分析して、表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコン樹脂が製造できていることを確認した。なお、後述する各化合物についても同様の方法で同定した。

[0045] (化合物2)

化合物2は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=24$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基)12.2gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物2を得た。

化合物2は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0046] (化合物3)

化合物3は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=35$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基)12.49gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物3を得た。

化合物3は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0047] (化合物4)

化合物4は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=56$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基)12.81gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物4を得た。

化合物4は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0048] (化合物5)

化合物5は以下のとおり製造した。

式(2)のヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=56$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 は炭素数8の分岐アルキル基、 R^5 はメチル基)14.9gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物5を得た。化合物5は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0049] (化合物6)

化合物6は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=56$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 はn-オクチル基、 R^5 はメチル基)14.9gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物6を得た。

化合物6は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0050] (化合物7)

化合物7は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=56$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 はエチル基、 R^5 はメチル基)8.59gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物7を得た。化合物7は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0051] (化合物8)

化合物8は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物($m=56$)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R^2 はn-ブ

チル基、R⁵はメチル基) 10.7 gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物8を得た。化合物8は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0052] (化合物9)

化合物9は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ヘキシル基、R⁵はメチル基)12.81gを白金触媒存在下において90℃で反応させて化合物9を得た。化合物9は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0053] (化合物10)

化合物10は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-オクチル基、R⁵はメチル基)14.92gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物10を得た。化合物10は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0054] (化合物11)

化合物11は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ドデシル基、R⁵はメチル基)19.14gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物11を得た。化合物11は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0055] (化合物12)

化合物 1 2 は以下のとおり製造した。

式 (2) のヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物 ($m = 56$) 5 g と、式 (4) のアルキルメタアクリレート (R^3 は n -オクタデシル基、 R^6 はメチル基) 25.48 g をドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 1 2 を得た。化合物 1 2 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0056] (化合物 1 3)

化合物 1 3 は以下のとおり製造した。

式 (2) で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物 ($m = 56$) 5 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基) 12.81 g をドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 1 3 を得た。化合物 1 3 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0057] (化合物 1 4)

化合物 1 4 は以下のとおり製造した。

式 (2) で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物 ($m = 56$) 5 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ドデシル基、 R^5 はメチル基) 19.14 g をドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 1 4 を得た。化合物 1 4 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0058] (化合物 1 5)

化合物 1 5 は以下のとおり製造した。

式 (2) のオルガノポリシロキサン化合物 ($m = 56$) 2 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基) 5 g と、式 (4) のアルキルメタアクリレート (R^3 は n -オクタデシル基、 R^6 は

メチル基) 0.4 g とをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 15 を得た。化合物 15 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0059] (化合物 16)

化合物 16 は以下のとおり製造した。

式 (2) のオルガノポリシロキサン化合物 ($m=56$) 2 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基) 4.74 g と、式 (4) のアルキルメタクリレート (R^3 は n -オクタデシル基、 R^6 はメチル基) 0.96 g とをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 16 を得た。化合物 16 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0060] (化合物 17)

化合物 17 は以下のとおり製造した。

式 (2) のオルガノポリシロキサン化合物 ($m=56$) 2 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ヘキシル基、 R^5 はメチル基) 4.35 g と、式 (4) のアルキルメタクリレート (R^3 は n -オクタデシル基、 R^6 はメチル基) 1.73 g とをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において 90°C で 12 時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物 17 を得た。化合物 17 は表 1 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0061] (化合物 18)

化合物 18 は以下のとおり製造した。

式 (2) のオルガノポリシロキサン化合物 ($m=56$) 2 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ドデシル基、 R^5 はメチル基) 6.21 g と、式 (4) のアルキルメタクリレート (R^3 は n -オクタデシル基、 R^6 はメチル基) 2.11 g とをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在

下において90℃で12時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物18を得た。化合物18は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0062] (化合物19)

化合物19は以下のとおり製造した。

式(2)のオルガノポリシロキサン化合物(m=56)2gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ドデシル基、R⁵はメチル基)3.9gと、式(4)のアルキルメタクリレート(R³はn-オクタデシル基、R⁶はメチル基)5.38gとをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物19を得た。化合物19は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0063] 化合物20は以下のとおり製造した。

式(2)のオルガノポリシロキサン化合物(m=56)2gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ドデシル基、R⁵はメチル基)2.17gと、式(4)のアルキルメタクリレート(R³はn-オクタデシル基、R⁶はメチル基)7.69gとをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させた。反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物20を得た。化合物20は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

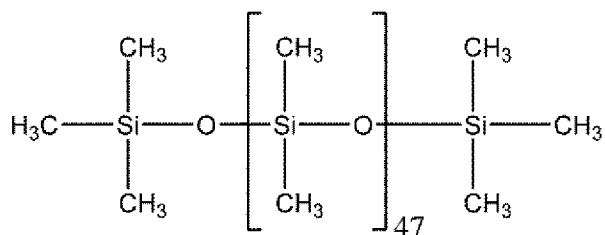
[0064] 化合物21は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-オクチル基、R⁵はメチル基)13gをドライトルエン、窒素雰囲気、白金触媒存在下において90℃で12時間反応させ、反応後エバポレーター及び真空乾燥機で溶媒除去し化合物21を得た。化合物21は表1に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0065] (比較化合物1)

比較化合物 1 としては、以下の構造を有する市販品 1（信越化学社製「KF-96-50 c s t」）を用いた。

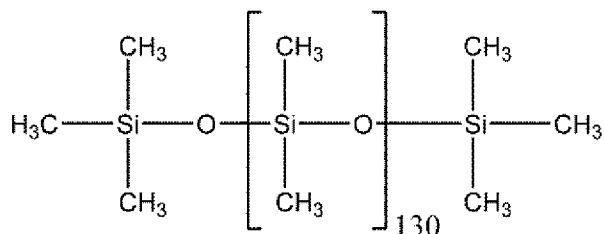
[化6]



[0066]（比較化合物 2）

比較化合物 2 としては、以下の構造を有する市販品 2（信越化学社製「KF-96-200 c s t」）を用いた。

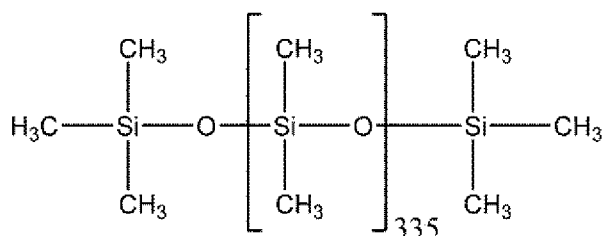
[化7]



[0067]（比較化合物 3）

比較化合物 3 としては、以下の構造を有する市販品 3（信越化学社製「KF-96-1000 c s t」）を用いた。

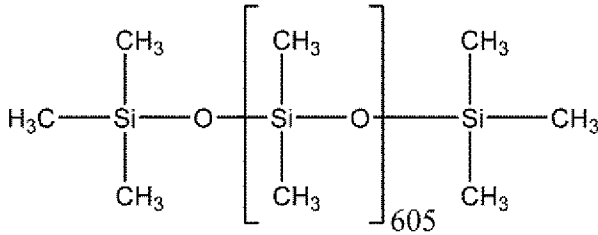
[化8]



[0068]（比較化合物 4）

比較化合物 4 としては、以下の構造を有する市販品 4（信越化学社製「KF-96H-6000 c s t」）を用いた。

[化9]



[0069] (比較化合物5)

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=24)を比較化合物5とした。

[0070] (比較化合物6)

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)を比較化合物6とした。

[0071] (比較化合物7)

比較化合物7は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ヘキシル基、R⁵はメチル基)2.42gを白金触媒存在下において90℃で反応させて比較化合物7を得た。比較化合物7は表2に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0072] (比較化合物8)

比較化合物8は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物(m=56)5gと、式(3)のアルキルメタアクリレート(R²はn-ドデシル基、R⁵はメチル基)5.06gを白金触媒存在下において90℃で反応させて比較化合物8を得た。比較化合物8は表2に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0073] (比較化合物9)

比較化合物9は以下のとおり製造した。

式(2)で表されるヒドロシリル基を有するオルガノポリシロキサン化合物

物 ($m=56$) 5 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ブデシル基、 R^5 はメチル基) 9.03 g を白金触媒存在下において 90°C で反応させて比較化合物 9 を得た。比較化合物 9 は表 2 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0074] (比較化合物 10)

比較化合物 10 は以下のとおり製造した。

式 (2) で表されるヒドロシル基を有するオルガノポリシロキサン化合物 ($m=56$) 5 g と、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^2 は n -ブデシル基、 R^5 はメチル基) 5.4 g を白金触媒存在下において 90°C で反応させた。その後、式 (3) のアルキルメタアクリレート (R^3 の炭素数は 30、 R^6 はメチル基) 10.2 g を白金触媒存在下において 120°C で反応させたのち、比較化合物 10 を得た。比較化合物 10 は表 2 に記載の構造の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂であった。

[0075] [実施例 1]

上記のとおり製造した本発明の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂である化合物 1 を試料として、熱伝導率、初期形状、シリコーンへの溶解性及び経時変化 (ゲル化) に関する各評価を行った。結果を表 3 に示した。

[0076] [実施例 2 ~ 21、比較例 1 ~ 10]

化合物 1 の代わりに表 3 に記載の各化合物を使用した以外は、実施例 1 と同様にして各評価を行った。結果を表 3 に示した。

[0077]

[表1]

化合物	原料		合成物														性状			
	式(2)の化合物	アルキルタグリレート	側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂													重量平均分子量				
		mの値	R ² の炭素数	R ¹ の種類	w	w割合(%)	R ² の種類	R ² の炭素数	x	x割合(%)	R ² の種類	R ² の炭素数	y	y割合(%)	x,y合計割合(%)			R ¹ の種類	z	z割合(%)
化合物1	56	1	H	3	5	直鎖アルキル	1	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	9000	液体
化合物2	24	6	H	1	4	直鎖アルキル	6	23	96	—	—	—	—	—	96	—	—	—	5500	液体
化合物3	35	6	H	2	6	直鎖アルキル	6	33	94	—	—	—	—	—	94	—	—	—	7800	液体
化合物4	56	6	H	3	5	直鎖アルキル	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	12500	液体
化合物5	56	8	H	3	5	分岐アルキル	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	14000	液体
化合物6	56	8	H	3	5	直鎖アルキル	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	14000	液体
化合物7	56	2	H	3	5	直鎖アルキル	2	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	9500	液体
化合物8	56	4	H	5	9	直鎖アルキル	4	51	91	—	—	—	—	—	91	—	—	—	11000	液体
化合物9	56	6	H	3	5	直鎖アルキル	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	12500	液体
化合物10	56	8	H	3	5	直鎖アルキル	8	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	14000	液体
化合物11	56	12	H	3	5	直鎖アルキル	12	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	18000	液体
化合物12	56	18	H	3	5	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	21000	固体
化合物13	56	6	H	3	5	直鎖アルキル	6	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	12000	液体
化合物14	56	12	H	3	5	直鎖アルキル	12	53	95	—	—	—	—	—	95	—	—	—	17000	液体
化合物15	56	6	H	2	4	直鎖アルキル	6	52	93	93	直鎖アルキル	18	2	4	96	—	—	—	13000	液体
化合物16	56	6	H	2	4	直鎖アルキル	6	49	88	88	直鎖アルキル	18	5	9	96	—	—	—	13500	液体
化合物17	56	6	H	2	4	直鎖アルキル	6	45	80	80	直鎖アルキル	18	9	16	96	—	—	—	14000	液体
化合物18	56	12	H	2	4	直鎖アルキル	12	43	77	77	直鎖アルキル	18	11	20	96	—	—	—	18000	液体
化合物19	56	12	H	1	2	直鎖アルキル	12	27	48	48	直鎖アルキル	18	28	50	98	—	—	—	20000	液体
化合物20	56	12	H	1	2	直鎖アルキル	12	15	27	27	直鎖アルキル	18	40	71	98	—	—	—	21000	液体
化合物21	56	8	H	10	18	直鎖アルキル	8	46	82	82	直鎖アルキル	—	—	—	82	—	—	—	12000	液体

表中のw割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するwの割合を意味する。表中のx割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するxの割合を意味する。
 表中のy割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するyの割合を意味する。表中のz割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するzの割合を意味する。
 表中のx、y合計割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するxとyの合計の割合を意味する。

[0078] [表2]

表2

式(2)の化合物mの値	原料		合成物														性状				
	R ² の炭素数	R ¹ の炭素数	側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂																		
			R ² の種類	R ¹ の種類	w	w割合(%)	R ² の種類	R ² の炭素数	x	x割合(%)	R ² の種類	R ² の炭素数	y	y割合(%)	x,y合計割合(%)	R ¹ の種類		z	z割合(%)	重量平均分子量	
比較化合物1	---	---	市販品1														液体				
比較化合物2	---	---	市販品2														液体				
比較化合物3	---	---	市販品3														液体				
比較化合物4	---	---	市販品4														液体				
比較化合物5	24	---	H	24	100	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	1600
比較化合物6	56	---	H	56	100	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	3500
比較化合物7	56	6	H	46	82	直鎖アルキル	6	10	18	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	11000
比較化合物8	56	12	H	42	75	直鎖アルキル	12	14	25	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	12500
比較化合物9	56	12	H	31	55	直鎖アルキル	12	25	45	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	14000
比較化合物10	56	12	H	31	55	直鎖アルキル	12	15	27	直鎖アルキル	30	10	18	45	45	---	---	---	---	---	22000

表中のw割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するwの割合を意味する。表中のx割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するxの割合を意味する。
 表中のy割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するyの割合を意味する。表中のz割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するzの割合を意味する。
 表中のx、y合計割合(%)は、w、x、y、zの合計に対するxとyの合計の割合を意味する。

[0079]

[表3]

表3

	側鎖型アルキル変性 シリコン樹脂	熱伝導率 (W/mK)	熱伝導率 評価	初期形状	シリコンへの 溶解性	経時変化 (ゲル化)
実施例1	化合物1	0.158	B	A	A	A
実施例2	化合物2	0.158	B	A	A	A
実施例3	化合物3	0.158	B	A	A	A
実施例4	化合物4	0.156	B	A	A	A
実施例5	化合物5	0.153	B	A	A	A
実施例6	化合物6	0.159	B	A	A	A
実施例7	化合物7	0.158	B	A	A	A
実施例8	化合物8	0.156	B	A	A	A
実施例9	化合物9	0.156	B	A	A	A
実施例10	化合物10	0.159	B	A	A	A
実施例11	化合物11	0.163	A	A	A	A
実施例12	化合物12	0.492	AA	B	A	A
実施例13	化合物13	0.156	B	A	A	A
実施例14	化合物14	0.163	A	A	A	A
実施例15	化合物15	0.159	B	A	A	A
実施例16	化合物16	0.159	B	A	A	A
実施例17	化合物17	0.160	A	A	A	A
実施例18	化合物18	0.163	A	A	A	A
実施例19	化合物19	0.166	AA	A	A	A
実施例20	化合物20	0.167	AA	A	A	A
実施例21	化合物21	0.158	B	A	A	A
比較例1	比較化合物1	0.145	C	A	A	A
比較例2	比較化合物2	0.147	C	A	A	A
比較例3	比較化合物3	0.148	C	A	A	A
比較例4	比較化合物4	0.149	C	A	A	A
比較例5	比較化合物5	0.132	C	A	A	C
比較例6	比較化合物6	0.134	C	A	A	C
比較例7	比較化合物7	0.140	C	A	A	C
比較例8	比較化合物8	0.150	B	A	A	C
比較例9	比較化合物9	0.159	B	A	A	C
比較例10	比較化合物10	0.2	AA	B	C	C

[0080] 本発明の要件を満足する各実施例の化合物（側鎖型アルキル変性シリコン樹脂）は、熱伝導率が高く、また、シリコンへの溶解性及び経時変化の結果が良好であったことより柔軟性に優れていた。

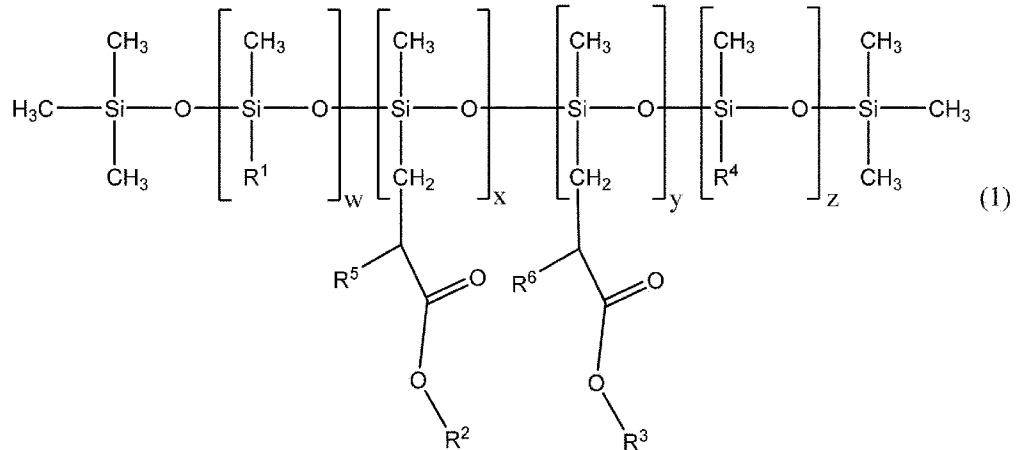
一方、各比較例の化合物は、実施例の化合物よりも熱伝導率が低いか又は

経時変化の結果が悪くなり、高熱伝導性及び柔軟性の両立が難しかった。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（1）で表される側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[化1]



（式（1）において、 R^1 は水素原子又はアルケニル基であり、 R^2 は炭素数1～14のアルキル基Iであり、 R^3 は炭素数15～18のアルキル基IIであり、 R^5 及び R^6 はそれぞれ独立して水素原子又はメチル基であり、 R^4 はエチル基であり、 w 、 x 、 y 、 z はそれぞれの構成単位のユニット数を表し、 w 、 x 、 y 、 z はそれぞれ0であってもよく、 x 、 y は同時に0となることはなく、 w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x と y の合計の割合が80～100%である。）

[請求項2] 前記式（1）において、 w 、 x 、 y 、 z の合計に対する x の割合が20～80%であり、 y の割合が15～75%である、請求項1に記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[請求項3] 前記 R^2 及び R^3 が直鎖状のアルキル基である、請求項1又は2に記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[請求項4] 式（1）において w 、 x 、 y 、 z の合計に対して w の割合が0%を超え20%以下である、請求項1～3のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

[請求項5] 式（1）において w 、 x 、 y 、 z の合計に対して w の割合が0%である、請求項1～3のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。

ン樹脂。

- [請求項6] 式(1)においてw、x、y、zの合計に対してzの割合が0%を超え20%以下である、請求項1～5のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。
- [請求項7] 式(1)においてw、x、y、zの合計に対してzの割合が0%である、請求項1～5のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。
- [請求項8] 重量平均分子量が5,000～20,000である、請求項1～7のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれかに記載の側鎖型アルキル変性シリコーン樹脂と、絶縁性熱伝導フィラーを含有する樹脂コンポジット材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/015685

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C08G 77/38</i> (2006.01)i; <i>C08L 83/04</i> (2006.01)i; <i>C09K 5/10</i> (2006.01)i; <i>C08K 3/013</i> (2018.01)i FI: C08G77/38; C08K3/013; C08L83/04; C09K5/10 E		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08G77/38; C08L83/04; C09K5/10; C08K3/013		
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 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
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 50-105573 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 20 August 1975 (1975-08-20) entire text	1-9
A	JP 10-67910 A (THE BERGQUIST COMPANY) 10 March 1998 (1998-03-10) entire text	1-9
A	WO 2006/043334 A1 (NIPPON KOYU LTD) 27 April 2006 (2006-04-27) entire text	1-9
A	JP 2005-54090 A (SHIN ETSU CHEM CO LTD) 03 March 2005 (2005-03-03) entire text	1-9
A	JP 2004-71401 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD) 04 March 2004 (2004-03-04) entire text	1-9
A	JP 2001-163683 A (SUMITOMO KINZOKU KOZAN SIPOREX KK) 19 June 2001 (2001-06-19) entire text	1-9
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 13 May 2022		Date of mailing of the international search report 24 May 2022
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/JP2022/015685

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	50-105573	A	20 August 1975	US 3885984 A entire text	
				GB 1480931 A	
				DE 2458507 A	
				FR 2254622 A	
JP	10-67910	A	10 March 1998	US 5950066 A entire text	
				EP 813244 A2	
				TW 360906 B	
WO	2006/043334	A1	27 April 2006	US 2008/0139725 A1 entire text	
				EP 1803776 A1	
				CN 101044207 A	
JP	2005-54090	A	03 March 2005	(Family: none)	
JP	2004-71401	A	04 March 2004	(Family: none)	
JP	2001-163683	A	19 June 2001	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 77/38(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i; C09K 5/10(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i FI: C08G77/38; C08K3/013; C08L83/04; C09K5/10 E		
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）） C08G77/38; C08L83/04; C09K5/10; C08K3/013 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 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022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 50-105573 A (ゼネラル・エレクトリック・カンパニー) 20.08.1975 (1975-08-20) 文献全体	1-9
A	JP 10-67910 A (ザ バーグクイスト カンパニー) 10.03.1998 (1998-03-10) 文献全体	1-9
A	WO 2006/043334 A1 (株式会社日本礦油) 27.04.2006 (2006-04-27) 文献全体	1-9
A	JP 2005-54090 A (信越化学工業株式会社) 03.03.2005 (2005-03-03) 文献全体	1-9
A	JP 2004-71401 A (松下電器産業株式会社) 04.03.2004 (2004-03-04) 文献全体	1-9
A	JP 2001-163683 A (住友金属鉱山シボレックス株式会社) 19.06.2001 (2001-06-19) 文献全体	1-9
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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 13.05.2022	国際調査報告の発送日 24.05.2022	
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） 堀 洋樹 4J 3034 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/JP2022/015685

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	50-105573	A	20.08.1975	US	3885984	A	
				文献全体			
				GB	1480931	A	
				DE	2458507	A	
				FR	2254622	A	
JP	10-67910	A	10.03.1998	US	5950066	A	
				文献全体			
				EP	813244	A2	
				TW	360906	B	
WO	2006/043334	A1	27.04.2006	US	2008/0139725	A1	
				文献全体			
				EP	1803776	A1	
				CN	101044207	A	
JP	2005-54090	A	03.03.2005	(ファミリーなし)			
JP	2004-71401	A	04.03.2004	(ファミリーなし)			
JP	2001-163683	A	19.06.2001	(ファミリーなし)			