

(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
2019年1月3日(03.01.2019)



(10) 国際公開番号

WO 2019/004150 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 5/14 (2006.01) *H01L 23/36* (2006.01)
C08K 3/013 (2018.01) *H01L 23/373* (2006.01)
C08K 5/541 (2006.01) *H05K 7/20* (2006.01)
C08L 83/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/024062
- (22) 国際出願日: 2018年6月25日(25.06.2018)
- (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 2017-125104 2017年6月27日(27.06.2017) JP
- (71) 出願人: 積水ポリマテック株式会社(SEKISUI POLYMATECH 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: 工藤 大希(KUDOH, Hiroki); 〒3380837 埼玉県さいたま市桜区田島八丁目10番1号 積水ポリマテック株式会社内 Saitama (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ESビル8階 ダイワ特許事務所 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, 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, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: HEAT-CONDUCTIVE SHEET

(54) 発明の名称: 熱伝導性シート

(57) Abstract: This heat-conductive sheet comprises: a matrix composed of an organopolysiloxane having a cross-linked structure; a heat-conductive filler dispersed in the matrix; and a silicon compound. The silicon compound is at least one selected from alkoxysilane compounds and alkoxysiloxane compounds.

(57) 要約: 熱伝導性シートは、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスと、マトリクス中に分散した熱伝導性充填材と、ケイ素化合物とを含有する。ケイ素化合物は、アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種である。



WO 2019/004150 A1

明 細 書

発明の名称：熱伝導性シート

技術分野

[0001] 本発明は、発熱体と放熱体との間に配置される熱伝導性シートに関する。

背景技術

[0002] コンピュータや自動車部品等の電子機器では、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等の放熱体を用いられている。このような発熱体と放熱体との間には、発熱体から放熱体への熱の伝達効率を高める目的で熱伝導性シートを配置する場合がある。例えば、特許文献1には、マトリクスと熱伝導性充填材とを含有する熱伝導性シートが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2005-146057号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 近年、電子機器の小型化や高性能化が進むことで、発熱体の発熱量は増加する傾向にある。このため、発熱体から放熱体へ熱を伝達する熱伝導性シートについても、より高い熱伝導性を発揮することが求められる。

[0005] 本発明の目的は、より高い熱伝導性を発揮させることのできる熱伝導性シートを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0006] 上記の目的を達成するために、本発明の一態様では、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスと、前記マトリクス中に分散した熱伝導性充填材と、アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種のケイ素化合物と、を含有する。

発明の効果

[0007] 本発明によれば、より高い熱伝導性を発揮させることができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]熱抵抗測定機を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、熱伝導性シートの実施形態について説明する。

熱伝導性シートは、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスと、マトリクス中に分散した熱伝導性充填材と、ケイ素化合物とを含有する。ケイ素化合物は、アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種である。

[0010] <マトリクス>

マトリクスは、熱伝導性充填材を保持し、熱伝導性シートを所定形状に維持する。マトリクスは、マトリクスの前駆体である液状のオルガノポリシロキサンを硬化させることで形成される。液状のオルガノポリシロキサンは、架橋構造を形成可能な反応基を有している。液状のオルガノポリシロキサンとしては、例えば、縮合型のオルガノポリシロキサン、及び付加反応型のオルガノポリシロキサンが挙げられる。液状のオルガノポリシロキサンは、熱伝導性充填材を高充填し易く、また触媒等により硬化温度を容易に調整できることから、付加反応型のオルガノポリシロキサンを含むことが好ましい。付加反応型のオルガノポリシロキサンは、熱伝導性充填材を高充填し易いという観点から、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンとハイドロジェンオルガノポリシロキサンとを含むことが好ましい。なお、本明細書において液状とは、23℃、1気圧下で液体のものをいう。

[0011] 液状のオルガノポリシロキサンの硬化温度 T_1 (℃)は、上記ケイ素化合物の揮発性を考慮して設定されることが好ましい。ケイ素化合物の揮発性は、昇温開始温度25℃、昇温速度10℃/分で昇温する熱重量分析において質量の減少割合が60%となる温度 T_2 (℃)又は5%となる温度 T_3 (℃)で表すことができる。すなわち、温度 T_2 (℃)又は温度 T_3 (℃)が低

いほど、揮発性が高いケイ素化合物と言える。熱重量分析は、窒素雰囲気下で行うことができる。

- [0012] 液状のオルガノポリシロキサンの硬化温度 T_1 (°C) と、ケイ素化合物の上記熱重量分析から得られる温度 T_2 (°C) とは、下記式 (1) を満たすことが好ましい。

$$T_1 \leq T_2 \cdots (1)$$

液状のオルガノポリシロキサンを硬化温度 T_1 (°C) と、ケイ素化合物の上記熱重量分析から得られる温度 T_3 (°C) とは、下記式 (2) を満たすことが好ましい。

- [0013] $T_1 \leq T_3 \cdots (2)$

上記のように液状のオルガノポリシロキサンの硬化温度 T_1 (°C) を設定することで、液状のオルガノポリシロキサンを硬化させる際に、ケイ素化合物の揮発を抑えることができる。また、オルガノポリシロキサン中における気泡の発生を抑えることもできるため、熱伝導性シート中の気泡を要因とした熱伝導性の低下を抑えることができる。

- [0014] <熱伝導性充填材>

熱伝導性充填材の材料としては、例えば、金属、炭素、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、及び金属水酸化物が挙げられる。金属としては、例えば、銅及びアルミニウムが挙げられる。炭素としては、例えば、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、及びグラファイト粉末が挙げられる。

- [0015] 金属酸化物としては、例えば、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化鉄、及び石英が挙げられ、金属窒化物としては、例えば、窒化ホウ素、及び窒化アルミニウムが挙げられる。金属炭化物としては、例えば、炭化ケイ素が挙げられ、金属水酸化物としては、例えば、水酸化アルミニウムが挙げられる。

- [0016] 熱伝導性充填材の形状は、球状であってもよいし、繊維状や板状等の非球状（異方性を有する形状）であってもよい。熱伝導性充填材は、平均粒径の

異なる複数の球状粒子群を含むことが好ましい。この場合、熱伝導性シートを成形する前の原料である熱伝導性組成物の粘度を低減することができる。換言すると、所定粘度において熱伝導性充填材を高充填した熱伝導性組成物が得られるため、熱伝導性組成物の成形性を確保し、かつ熱伝導性シートの熱伝導性を高めることができる。

[0017] また、熱伝導性充填材の中でも、炭素繊維やグラファイト粉末は、形状に異方性を有するため、炭素繊維やグラファイト粉末を用いた場合、液状のオルガノポリシロキサン中で一定方向に配向させることもできる。これにより、熱伝導性充填材が一定方向に配向した熱伝導性シートが得られるため、熱伝導性充填材が配向した方向における熱伝導性を高めることができる。

[0018] 熱伝導性シート中における熱伝導性充填材の含有量は、マトリクス100質量部に対して300～1700質量部であることが好ましく、300～800質量部であることがより好ましい。熱伝導性充填材の含有量が多くなるにつれて、熱伝導性シートの熱伝導性を高めることができる。熱伝導性充填材の含有量が少なくなるにつれて熱伝導性組成物の粘度が低下するため、熱伝導性シートを成形し易くなる。熱伝導性組成物の粘度は、25℃において、500Pa・s以下であることが好ましい。

[0019] <ケイ素化合物>

アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種のケイ素化合物は、熱伝導性シートの熱伝導性を高める。まず、アルコキシシラン化合物について説明する。アルコキシシラン化合物は、ケイ素原子(Si)が持つ4個の結合のうち、1～3個がアルコキシ基と結合し、残余の結合が有機置換基と結合した構造を有する化合物である。アルコキシシラン化合物の有するアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロトキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、及びヘキサトキシ基が挙げられる。アルコキシシラン化合物は、熱伝導性シート中に二量体として含有されていてもよい。

[0020] アルコキシシラン化合物の中でも、入手容易性の観点から、メトキシ基又

はエトキシ基を有するアルコキシシラン化合物が好ましい。アルコキシシラン化合物の有するアルコキシ基の数は、無機物としての熱伝導性充填材との親和性を高めるという観点から、3であることが好ましい。アルコキシシラン化合物は、トリメトキシシラン化合物及びトリエトキシシラン化合物から選ばれる少なくとも一種であることがより好ましい。

[0021] アルコキシシラン化合物の有する有機置換基に含まれる官能基としては、例えば、アクリロイル基、アルキル基、カルボキシル基、ビニル基、メタクリル基、芳香族基、アミノ基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、エポキシ基、ヒドロキシル基、及びメルカプト基が挙げられる。ここで、上記マトリクスの前駆体として、白金触媒を含む付加反応型のオルガノポリシロキサンを用いる場合、オルガノポリシロキサンの硬化反応に影響を与え難いアルコキシシラン化合物を選択して用いることが好ましい。具体的には、白金触媒を含む付加反応型のオルガノポリシロキサンを用いる場合、アルコキシシラン化合物の有機置換基は、アミノ基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、ヒドロキシル基、又はメルカプト基を含まないことが好ましい。

[0022] アルコキシシラン化合物は、熱伝導性充填材の分散性を高めることで、熱伝導性充填材を高充填し易くなることから、ケイ素原子に結合したアルキル基を有するアルキルアルコキシシラン化合物、すなわち、有機置換基としてアルキル基を有するアルコキシシラン化合物を含むことが好ましい。ケイ素原子に結合したアルキル基の炭素数は、4以上であることが好ましい。また、ケイ素原子に結合したアルキル基の炭素数は、アルコキシシラン化合物自体の粘度が比較的低く、熱伝導性組成物の粘度を低く抑えるという観点から、16以下であることが好ましい。

[0023] アルコキシシラン化合物は、一種類又は二種類以上を使用することができる。アルコキシシラン化合物の具体例としては、アルキル基含有アルコキシシラン化合物、ビニル基含有アルコキシシラン化合物、アクリロイル基含有アルコキシシラン化合物、メタクリル基含有アルコキシシラン化合物、芳香族基含有アルコキシシラン化合物、アミノ基含有アルコキシシラン化合物、

イソシアネート基含有アルコキシシラン化合物、イソシアヌレート基含有アルコキシシラン化合物、エポキシ基含有アルコキシシラン化合物、及びメルカプト基含有アルコキシシラン化合物が挙げられる。

[0024] アルキル基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、トリメチルメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、*n*-プロピルトリメトキシシラン、*n*-プロピルトリエトキシシラン、イソブチルトリメトキシシラン、イソブチルトリエトキシシラン、*n*-ヘキシルトリメトキシシラン、*n*-ヘキシルトリエトキシシラン、シクロヘキシルメチルジメトキシシラン、*n*-オクチルトリエトキシシラン、及び*n*-デシルトリメトキシシランが挙げられる。アルキル基含有アルコキシシラン化合物の中でも、イソブチルトリメトキシシラン、イソブチルトリエトキシシラン、*n*-ヘキシルトリメトキシシラン、*n*-ヘキシルトリエトキシシラン、シクロヘキシルメチルジメトキシシラン、*n*-オクチルトリエトキシシラン、及び*n*-デシルトリメトキシシランから選ばれる少なくとも一種が好ましい。

[0025] ビニル基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、及びビニルトリエトキシシランが挙げられる。アクリロイル基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシランが挙げられる。メタクリル基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、3-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、及び3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシランが挙げられる。芳香族基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、フェニルトリメトキシシラン、及びフェニルトリエトキシシランが挙げられる。アミノ基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルト

リエトキシシラン、及びN-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシランが挙げられる。イソシアネート基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシランが挙げられる。イソシアヌレート基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、トリス-（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレートが挙げられる。エポキシ基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、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-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、及び3-グリシドキシプロピルトリエトキシシランが挙げられる。メルカプト基含有アルコキシシラン化合物としては、例えば、3-メルカプトプロピルトリメトキシシランが挙げられる。

[0026] なお、上記アルコキシシラン化合物の具体例は一例であって、これに限定されるものではない。

次に、アルコキシシロキサン化合物について説明する。

[0027] アルコキシシロキサン化合物は、二つ以上のシロキサン結合を有し、少なくとも一つのケイ素原子にアルコキシ基が結合した構造を有する。また、アルコキシシロキサン化合物は、シロキサン結合を構成するケイ素原子のうち、少なくとも一つのケイ素原子に有機置換基が結合した構造を有する。

[0028] アルコキシシロキサン化合物の有するアルコキシ基及び有機置換基としては、上記アルコキシシラン化合物の説明で例示したものを挙げることができる。アルコキシシロキサン化合物は、アルコキシシラン化合物と同様にアルコキシ基を有するため、無機物としての熱伝導性充填材との親和性を高めることができる。また、アルコキシシロキサン化合物は、シロキサン構造を有するため、マトリクスであるオルガノポリシロキサンとの親和性も良好である。

[0029] アルコキシシロキサン化合物の有機置換基は、マトリクスの前駆体である液状のオルガノポリシロキサンとの親和性を高めるという観点から、液状のオルガノポリシロキサンの有する官能基を含むことが好ましい。例えば、ジ

メチルシロキサン骨格を有するオルガノポリシロキサンをマトリクスの前駆体として用いる場合、アルコキシシロキサン化合物の有する有機置換基は、メチル基を含むことが好ましい。また、アルコキシシロキサン化合物の有機置換基は、芳香族基（例えば、フェニル基）を含む場合であっても、液状のオルガノポリシロキサンとの親和性を高めることができる。

[0030] アルコキシシロキサン化合物は、一種類又は二種類以上を使用することができる。アルコキシシロキサン化合物としては、例えば、メチルメトキシシロキサンオリゴマー、メチルフェニルメトキシシロキサンオリゴマー、メチルエポキシメトキシシロキサンオリゴマー、メチルメルカプトメトキシシロキサンオリゴマー、及びメチルアクリロイルメトキシシロキサンオリゴマーが挙げられる。

[0031] ここで、上述したケイ素化合物の揮発性は、昇温開始温度 25℃、昇温速度 10℃/分で昇温した後、100℃で一定に保つ熱重量分析において昇温開始から 60 分経過後における質量の減少割合で表すことができる。熱重量分析は、窒素雰囲気下で行うことができる。

[0032] ケイ素化合物の中でも、熱重量分析における質量の減少割合が 5%以上、60%以下の範囲の化合物（高揮発性化合物）を用いた場合、ケイ素化合物の粘度、すなわち熱伝導性組成物の粘度を低く抑えることができることから、熱伝導性シートの成形が容易となる。

[0033] ケイ素化合物の中でも、熱重量分析における質量の減少割合が 5%未満の化合物（低揮発性化合物）を用いた場合、耐熱性に優れるとともに、長期の使用において物性の変化が小さい熱伝導性シートを得ることができる。また、マトリクスの前駆体の硬化過程におけるケイ素化合物の揮発を抑えることができるため、例えば、ケイ素化合物の使用量を削減することができる。なお、低揮発性化合物における上記減少割合は、0%以上である。

[0034] また、ケイ素化合物の中でも、アルコキシシロキサン化合物の多くは、アルコキシシラン化合物よりも大きい分子量を有する。すなわち、アルコキシシロキサン化合物の多くは、アルコキシシラン化合物よりも揮発性が低いた

め、低揮発性化合物としては、アルコキシシロキサン化合物を好適に用いることができる。換言すると、上述した高揮発性化合物としては、アルコキシシラン化合物を好適に用いることができる。

[0035] アルコキシシロキサン化合物の揮発性は比較的低く、かつ低粘度の傾向があるため、熱伝導性組成物の粘度を低く抑えることが可能となる。このため、低揮発性化合物としてアルコキシシロキサン化合物を用いることで、熱伝導性シートの成形が容易となる。

[0036] ケイ素化合物は、高揮発性化合物及び低揮発性化合物のいずれも含むことが好ましい。この場合、高揮発性化合物によって熱伝導性シートの熱伝導性をより高めることが可能となり、低揮発性化合物によって長期の使用において物性の変化が小さい熱伝導性シートを得ることができる。

[0037] ケイ素化合物が高揮発性化合物と低揮発性化合物とを含む場合、熱伝導性シート中における低揮発性化合物の含有量は、高揮発性化合物の含有量よりも多いことが好ましい。低揮発性化合物の質量割合は、高揮発性化合物と低揮発性化合物との合計質量に対して、70～99質量%の範囲であることがより好ましい。低揮発性化合物の質量割合が、70質量%以上の場合、耐熱性により優れるとともに、長期の使用において物性の変化がより小さい熱伝導性シートを得ることができる。

[0038] ケイ素化合物は、25℃において、1 mPa・s以上、10000 mPa・s以下の範囲の粘度を有する化合物を含むことが好ましい。この場合、熱伝導性組成物の粘度を低く抑えることができることから、熱伝導性シートの成形が容易となる。なお、ケイ素化合物の粘度は、回転粘度計で測定可能であり、測定温度は25℃である。

[0039] マトリクスとケイ素化合物との合計質量に対するケイ素化合物の質量割合は、0.1質量%以上であることが好ましく、より好ましくは0.5質量%以上であり、さらに好ましくは1質量%以上である。ケイ素化合物の質量割合を高めるほど、熱伝導性シートの熱伝導率が高まる傾向となる。

[0040] マトリクスとケイ素化合物との合計質量に対するケイ素化合物の質量割合

は、50質量%以下であることが好ましく、より好ましくは40質量%以下である。ケイ素化合物の質量割合を低くすることで、熱伝導性シート中のマトリクスの割合を相対的に増加することができるため、熱伝導性シートの強度を向上させることができる。これにより、例えば、熱伝導性シートの表面に亀裂が生じ難くなる。

[0041] ケイ素化合物がアルコキシシラン化合物を含む場合、マトリクスとアルコキシシラン化合物との合計質量に対するアルコキシシラン化合物の質量割合は、10質量%以下であることが好ましく、より好ましくは7質量%以下である。アルコキシシラン化合物の質量割合を低くすることで、長期の使用において物性の変化がより小さい熱伝導性シートを得ることができる。なお、マトリクスとアルコキシシラン化合物との合計質量に対するアルコキシシラン化合物の質量割合は、0.1質量%以上であることが好ましい。

[0042] ケイ素化合物がアルコキシシロキサン化合物を含む場合、マトリクスとアルコキシシロキサン化合物との合計質量に対するアルコキシシロキサン化合物の質量割合は、5質量%以上であることが好ましく、より好ましくは10質量%以上である。アルコキシシロキサン化合物の質量割合を高くすることで、熱伝導性シートの柔軟性を高めることが可能となる。なお、マトリクスとアルコキシシロキサン化合物との合計質量に対するアルコキシシロキサン化合物の質量割合は、50質量%以下であることが好ましい。

[0043] <添加剤>

熱伝導性シートには、必要に応じて、熱伝導性組成物や熱伝導性シートの性能を向上させる添加剤をさらに含有させることもできる。添加剤としては、例えば、補強材、着色剤、耐熱向上剤、界面活性剤、分散剤、難燃剤、触媒、硬化遅延剤、劣化防止剤、及び可塑剤が挙げられる。

[0044] <熱伝導性シートの用途及び作用>

熱伝導性シートは、発熱体と放熱体との間に配置して用いられる。熱伝導性シートの厚みは、例えば、0.5mm～10mmの範囲である。熱伝導性シートは、発熱体と放熱体との間で厚み方向に圧縮された状態で配置される

ことが好ましい。発熱体としては、例えば、CPU等の半導体素子や機械部品が挙げられる。放熱体としては、ヒートシンクや筐体が挙げられる。

[0045] 本実施形態の熱伝導性シート中には、上記質量割合でケイ素化合物が含有されている。このように熱伝導性シートに含有するケイ素化合物は、例えば、マトリクス中に熱伝導性充填材とともに分散することで、熱伝導性充填材の機能を十分に発揮させると推測される。これにより、熱伝導性シートは、厚み方向において、例えば、 $14\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の高い熱伝導率を発揮することが可能となる。

[0046] 熱伝導性シートは、JIS K 6253に規定に従ってタイプEデュロメータを用いて測定されるE硬度において、E5～E90の範囲であることが好ましい。熱伝導性シートのE硬度がE5以上の場合、熱伝導性シートのハンドリング性が良好となる。熱伝導性シートのE硬度がE90以下の場合、発熱体や放熱体に対する追従し易く、発熱体や放熱体に対する熱伝導性シートの密着性が確保されることで、発熱体と熱伝導性シート間又は放熱体と熱伝導性シート間の熱抵抗を低減することができる。

[0047] <熱伝導性シートの製造>

熱伝導性シートは、熱伝導性組成物から得ることができる。熱伝導性組成物は、マトリクスの前駆体、熱伝導性充填材、及びケイ素化合物を所定量混合することで得られる。詳述すると、熱伝導性組成物の製造方法は、マトリクスの前駆体に熱伝導性充填材を分散させる分散工程と、ケイ素化合物を配合する配合工程とを備える。ケイ素化合物を配合する配合工程は、分散工程の前、分散工程の後、分散工程と同時のいずれのタイミングで行ってもよい。また、熱伝導性組成物には、必要に応じて上記添加剤を配合してもよい。分散工程及び配合工程には、周知の攪拌機や分散機を用いることができる。熱伝導性シートは、熱伝導性組成物中におけるマトリクスの前駆体を硬化させる硬化工程により得ることができる。

[0048] ここで、熱伝導性組成物に配合したケイ素化合物は、例えば、熱伝導性充填材の表面に結合することで、表面改質された熱伝導性充填材の一部を構成

する場合がある。また、熱伝導性組成物に配合したケイ素化合物は、マトリクスの前駆体を硬化させて熱伝導性シートを得る際に揮発する場合がある。このため、熱伝導性組成物中におけるケイ素化合物の含有量は、熱伝導性シートの製造過程において、ケイ素化合物とその他の化合物との反応により消費される量や揮発により除去される量を考慮して調整すればよい。例えば、ケイ素化合物として、上述した高揮発性化合物を用いる場合では、高揮発性化合物の揮発量等を考慮して熱伝導性シート中における上記質量割合の10倍程度の量を熱伝導性組成物に配合すればよい。

[0049] 熱伝導性組成物中に、ケイ素化合物として、上述した高揮発性化合物と低揮発性化合物を配合した場合、高揮発性化合物の全体を反応させたり揮発させたりすることで、高揮発性化合物を実質的に含有しない熱伝導性シートを得ることができる。また、熱伝導性組成物中に、ケイ素化合物として、上述した高揮発性化合物と低揮発性化合物を配合した場合、高揮発性化合物の一部を反応させたり揮発させたりすることで、高揮発性化合物と、高揮発性化合物よりも高い含有割合の低揮発性化合物とを含有する熱伝導性シートを得ることもできる。なお、熱伝導性シートを加熱する後処理によりケイ素化合物を揮発させることで、熱伝導性シート中におけるケイ素化合物の含有量を調整することもできる。

[0050] 熱伝導性組成物中におけるケイ素化合物の含有量は、マトリクスの前駆体100質量部に対して5質量部以上であることが好ましく、より好ましくは10質量部以上である。熱伝導性組成物中におけるケイ素化合物の含有量は、マトリクスの前駆体100質量部に対して70質量部以下であることが好ましく、より好ましくは50質量部以下である。

[0051] 硬化工程では、熱伝導性組成物を加熱することで、マトリクスの前駆体から、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンを形成する。硬化工程では、熱伝導性組成物を、マトリクスの前駆体である液状のオルガノポリシロキサンの硬化温度 T_1 以上の温度となるように加熱する。また、硬化工程では、熱伝導性組成物に配合したケイ素化合物の少なくとも一部が未反応の状態で

熱伝導性シート中に残留するように熱伝導性組成物を加熱する。

[0052] 硬化工程におけるケイ素化合物の揮発量は、熱伝導性組成物に配合したケイ素化合物の全体に対して、0～91質量%の範囲であることが好ましい。ケイ素化合物が、高揮発性化合物を含む場合、硬化工程における高揮発性化合物の揮発量は、熱伝導性組成物に配合した高揮発性化合物の全体に対して、20～91質量%の範囲であることが好ましい。これにより、熱伝導性シート中の高揮発性化合物の含有量を少なくすることができ、長期の使用において物性の変化が小さい熱伝導性シートを得ることができる。

[0053] また、ケイ素化合物が、低揮発性化合物を含む場合、硬化工程における低揮発性化合物の揮発量は、熱伝導性組成物に配合した低揮発性化合物の全体に対して、0～20質量%の範囲であることが好ましい。このように揮発量が少なければ、気泡の発生を抑えることもできるため、熱伝導性シート中の気泡を要因とした熱伝導性の低下を抑えることができる。

[0054] 硬化工程は、金型に注入した熱伝導性組成物を加熱する工程であってもよいし、樹脂フィルムや金属板等の基材に塗布した熱伝導性組成物を加熱する工程であってもよい。熱伝導性充填材として、異方性を有する形状の熱伝導性充填材を用いる場合、硬化工程前の熱伝導性組成物に対して周知のように磁場を印加することで、熱伝導性シートの厚み方向に熱伝導性充填材を配向させた熱伝導性シートを得ることもできる。なお、熱伝導性シートは、熱伝導性組成物の硬化物を所定の厚みとなるように切断することで形成してもよい。

[0055] なお、ケイ素化合物の揮発は、硬化工程に加えて、所定の加熱工程を実施することで、揮発量を調整することもできる。この場合であっても、ケイ素化合物の揮発量は、熱伝導性組成物に配合したケイ素化合物の全体に対して、0～91質量%の範囲であることが好ましい。

[0056] 以上詳述した実施形態によれば、次のような効果が発揮される。

(1) 熱伝導性シートは、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスと、マトリクス中に分散した熱伝導性充填材と、ケイ

素化合物とを含有する。ケイ素化合物は、アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種である。この構成によれば、より高い熱伝導性を発揮させることができる。

[0057] (2) 熱伝導性シートにおいて、マトリクスとケイ素化合物との合計質量に対するケイ素化合物の質量割合は、0.1質量%以上、50質量%以下であることが好ましい。この場合、熱伝導性シートの熱伝導率をより高めることができるとともに、熱伝導シートの表面に亀裂が生じ難くなる。

[0058] (3) 熱伝導性シートにおいて、ケイ素化合物が、アルコキシシラン化合物を含む場合、マトリクスとアルコキシシラン化合物との合計質量に対するアルコキシシラン化合物の質量割合は、0.1質量%以上、10質量%以下であることが好ましい。この場合、熱伝導性シートの熱伝導率をより高めることができるとともに、長期の使用において物性の変化がより小さい熱伝導性シートを得ることができる。

[0059] (4) 熱伝導性シートにおいて、ケイ素化合物が、アルコキシシロキサン化合物を含む場合、マトリクスとアルコキシシロキサン化合物との合計質量に対するアルコキシシロキサン化合物の質量割合は、5質量%以上、50質量%以下であることが好ましい。この場合、熱伝導性シートの柔軟性を高めることができるとともに、熱伝導シートの表面に亀裂が生じ難くなる。これにより、発熱体や放熱体に対する熱伝導性シートの密着性が高まることで、発熱体と熱伝導性シート間又は放熱体と熱伝導性シート間の熱抵抗を低減することができる。従って、より高い熱伝導性を発揮させることができる。

[0060] (5) 熱伝導性シート中のケイ素化合物が、上述した高揮発性化合物を含む場合、より高い熱伝導性を発揮させることができる。

(6) 熱伝導性シート中のケイ素化合物は、上述した低揮発性化合物を含む場合、耐熱性に優れるとともに、長期の使用において物性の変化が小さい熱伝導性シートを得ることができる。

[0061] (7) 熱伝導性シート中のケイ素化合物は、ケイ素原子に結合したアルキル基を有する化合物を含むことが好ましい。この場合、熱伝導性充填材の分

散性を高めることで、熱伝導性充填材を高充填し易くなるため、より高い熱伝導性を発揮させることができる。

[0062] 上記実施形態から把握できる技術的思想について以下に記載する。

(a) 熱伝導性シートを製造する用途に用いられる熱伝導性組成物であって、架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスを得るための液状の前駆体と、熱伝導性充填材と、アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種のケイ素化合物と、を含有し、前記ケイ素化合物の含有量が、前記前駆体 100 質量部に対して、5 質量部以上である熱伝導性組成物。

[0063] (b) 熱伝導性シートの製造方法であって、上記熱伝導性組成物中の前記前駆体を硬化させる硬化工程を備える熱伝導性シートの製造方法。

実施例

[0064] 次に、実施例及び比較例を説明する。

(実施例 1)

実施例 1 では、マトリクスの前駆体、ケイ素化合物のアルコキシシラン化合物、熱伝導性充填材 (A)、熱伝導性充填材 (B)、熱伝導性充填材 (C)、及び可塑剤を混合することで熱伝導性組成物を調製した。マトリクスの前駆体としては、アルケニル基含有オルガノポリシロキサンとハイドロジェンオルガノポリシロキサンとの混合物を用いた。ケイ素化合物のアルコキシシラン化合物としては、*n*-オクチルトリエトキシシランを用いた。*n*-オクチルトリエトキシシランの熱重量分析における質量の減少割合は、16.6%であり、減少割合が60%となる温度 T_2 は、197℃であり、減少割合が5%となる温度 T_3 は、84℃である。*n*-オクチルトリエトキシシランの粘度 (25℃) は、10 mPa・s である。

[0065] 熱伝導性充填材 (A) は、黒鉛化炭素繊維 (平均繊維長: 150 μm) である。熱伝導性充填材 (B) は、酸化アルミニウム粉末 (球状、平均粒径: 5 μm) である。熱伝導性充填材 (C) は、酸化アルミニウム粉末 (球状、平均粒径: 1 μm) である。可塑剤としては、ジメチルポリシロキサン (粘

度（25℃）：1000 mPa・s）を用いた。

[0066] 熱伝導性組成物に配合した各原料の配合量を表1に示す。表1における配合量の単位は、質量部である。

次に、熱伝導性組成物をシート形状のキャビティを有する金型に注入し、8 Tの磁場を厚み方向に印加することで熱伝導性充填材（A）の黒鉛化炭素繊維を厚み方向に配向させた。その後、熱伝導性組成物を80℃、60分間の条件で加熱し、さらに硬化工程として温度150℃、120分間の条件で加熱することで、マトリクスの前駆体を硬化させた。これにより、実施例1の熱伝導性シートを得た。

[0067] （実施例2～8及び比較例1～3）

表1及び表2に示すように、熱伝導性組成物における配合を変更した以外は、実施例1と同様に熱伝導性シートを得た。表2に示す実施例5～8において、ケイ素化合物のアルコキシシロキサン化合物としては、メチルメトキシシロキサンオリゴマーを用いた。メチルメトキシシロキサンオリゴマーの熱重量分析における質量の減少割合は、0.2％であり、減少割合が60％となる温度T2は、300℃以上であり、減少割合が5％となる温度T3は、205℃である。メチルメトキシシロキサンオリゴマーの粘度（25℃）は、100 mPa・sである。表2における配合量の単位は、質量部である。なお、各例では、マトリクスの前駆体、ケイ素化合物、及び可塑剤の合計量が170質量部となるように配合量を調整した。

[0068] ＜熱伝導性組成物の粘度＞

上記熱伝導性組成物の粘度を粘度計（回転粘度計、BROOK FIELD製、DV-E）で、スピンドルNo. 14の回転子を用いて、回転速度10 rpm、測定温度25℃の条件で測定した。その結果を表1及び表2の“熱伝導性組成物の粘度”欄に示す。

[0069] ＜熱伝導性シート中におけるケイ素化合物の含有量＞

上記熱伝導性シートについて、マトリクスとケイ素化合物との合計質量に対するケイ素化合物の質量割合を以下のように求めた。

[0070] アルコキシシラン化合物を含有する熱伝導性シートについては、硬化前の熱伝導性シートの質量と硬化後の熱伝導性シートの質量との差（減量値）を熱伝導性組成物に配合したアルコキシシラン化合物の配合量から差し引いた量をアルコキシシロキサン化合物の含有量とした。

[0071] アルコキシシロキサン化合物を含有する熱伝導性シートについては、硬化前の熱伝導性シートの質量と硬化後の熱伝導性シートの質量との差（減量値）が略0であったため、熱伝導性組成物に配合したアルコキシシロキサン化合物の配合量をアルコキシシロキサン化合物の含有量とした。

[0072] 次に、熱伝導性組成物に配合したマトリクスの前駆体の配合量を熱伝導性シート中のマトリクスの含有量とし、上記質量割合を求めた。

なお、熱伝導性シート中のケイ素化合物やマトリクスの含有量は、ガスクロマトグラフィー質量分析法（GC/MS）、飛行時間型質量分析法（TOF/MS）、液体クロマトグラフィー/質量分析法（LC/MS）等の周知の定性及び定量分析法によって求めてもよい。

[0073] その結果を表1及び表2の“ケイ素化合物の質量割合”欄に示す。

＜熱伝導性シートの熱伝導率＞

上記熱伝導性シートの熱伝導率を、熱抵抗測定機を用いてASTM D 5470-06に準拠した方法で測定した。

[0074] 図1に示すように、熱抵抗測定機は、側面が断熱材11で覆われた第1の銅製ブロック12及び第2の銅製ブロック13を備えている。第1の銅製ブロック12は、熱抵抗測定機の下部に配置され、第2の銅製ブロック13は、第1の銅製ブロック12の上方に配置されている。第1の銅製ブロック12の上面は、熱伝導性シートの試験片Sが載置される載置面P1であり、この載置面P1の寸法は、25.4mm×25.4mmである。熱抵抗測定機は、第1の銅製ブロック12の下面を加熱するヒーター14と、第2の銅製ブロック13の上面を冷却するファン付きヒートシンク15とをさらに備えている。熱抵抗測定機は、第2の銅製ブロック13に接続されたシリンダ16をさらに備えている。第2の銅製ブロック13は、第1の銅製ブロック1

2の載置面P1に載置された試験片Sをシリンダ16の押圧動作によって圧縮するように構成されている。

[0075] 熱伝導率の測定は、まず、試験片Sを第1の銅製ブロック12と第2の銅製ブロック13の間に配置し、試験片Sを厚み方向の圧縮率が10%となるように圧縮した。次に、第1の銅製ブロック12の載置面P1の温度が80℃となるようにヒーター14を発熱させた。第1の銅製ブロック12の載置面P1の温度（温度 θ_{j1} ）が80℃の定常状態となるように15分間放置した後、第2の銅製ブロック13の下面P2（試験片Sに接触している接触面）の温度（温度 θ_{j0} ）を測定した。さらに、このときのヒーター14の発熱量（発熱量Q）、及び試験片Sの厚み（厚みT）を測定した。下記式（3）から算出した

試験片Sの熱抵抗の値を下記式（4）に代入することで熱伝導率を求めた。

[0076] 熱抵抗 = $(\theta_{j1} - \theta_{j0}) / Q \cdots (3)$

熱伝導率 = $T / \text{熱抵抗} \cdots (4)$

その結果を表1及び表2の“熱伝導率”欄に示す。

[0077] <熱伝導性シートの硬度>

上記熱伝導性シートの硬度をJIS K6253に規定に従ってタイプEデュロメータを用いて測定した。その結果を表1及び表2の“E硬度”欄に示す。

[0078] [表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3
マトリクス前駆体の配合量	100	100	100	100	100	130	170
ケイ素化合物 アルコキシシラン化合物の配合量	5	15	55	70	0	0	0
熱伝導性充填材(A)の配合量	220	220	220	220	220	220	220
熱伝導性充填材(B)の配合量	500	500	500	500	500	500	500
熱伝導性充填材(C)の配合量	10	10	10	10	10	10	10
可塑剤の配合量	65	55	15	0	70	40	0
熱伝導性組成物の粘度[Pa・s]	240	200	100	60	600	500	400
ケイ素化合物の質量割合[質量%]	0.5	1.5	5.2	6.5	0	0	0
熱伝導率[W/m・K]	16	20	27	29	8	11	13
E硬度	28	32	40	50	10	13	30

[0079]

[表2]

	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
マトリクス前駆体の配合量	100	100	100	100
ケイ素化合物	アルコキシシラン化合物の配合量	0	0	15
	アルコキシシロキサン化合物の配合量	15	55	70
熱伝導性充填材(A)の配合量	220	220	220	220
熱伝導性充填材(B)の配合量	500	500	500	500
熱伝導性充填材(C)の配合量	10	10	10	10
可塑剤の配合量	55	15	0	15
熱伝導性組成物の粘度[Pa・s]	220	150	90	200
ケイ素化合物の質量割合[質量%]	13	35.5	41.1	16
熱伝導率[W/m・K]	17	18	18	25
E硬度	20	10	8	15

[0080] 表1及び表2に示すように、各実施例の熱伝導性シートの熱伝導率は、各比較例の熱伝導性シートよりも高い。また、各実施例の熱伝導性シートのE硬度の値は、E50以下であり、各実施例の熱伝導性シートでは、適度な柔軟性が得られることが分かる。また、実施例5～8の熱伝導性シートのE硬度の値は、E20以下であり、実施例5～8の熱伝導性シートでは、柔軟性に優れることが分かる。また、実施例6の熱伝導性シートは、実施例7の熱伝導性シートよりも取扱いに適した強度を有していた。また、実施例8の熱伝導性シートでは、熱伝導率及び柔軟性のいずれも優れていた。

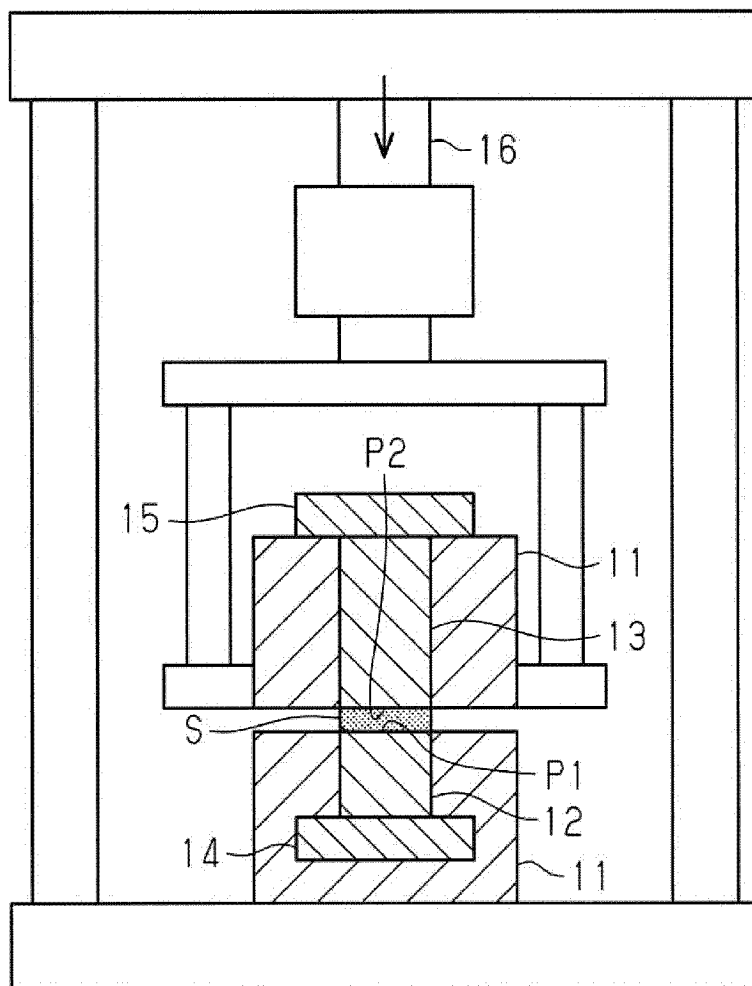
請求の範囲

- [請求項1] 架橋構造を有するオルガノポリシロキサンから構成されるマトリクスと、
 前記マトリクス中に分散した熱伝導性充填材と、
 アルコキシシラン化合物及びアルコキシシロキサン化合物から選ばれる少なくとも一種のケイ素化合物と、を含有することを特徴とする熱伝導性シート。
- [請求項2] 前記マトリクスと前記ケイ素化合物との合計質量に対する前記ケイ素化合物の質量割合が、0.1質量%以上、50質量%以下であることを特徴とする請求項1に記載の熱伝導性シート。
- [請求項3] 前記ケイ素化合物が、前記アルコキシシラン化合物を含み、
 前記マトリクスと前記アルコキシシラン化合物との合計質量に対する前記アルコキシシラン化合物の質量割合が、0.1質量%以上、10質量%以下であることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の熱伝導性シート。
- [請求項4] 前記ケイ素化合物が、前記アルコキシシロキサン化合物を含み、
 前記マトリクスと前記アルコキシシロキサン化合物との合計質量に対する前記アルコキシシロキサン化合物の質量割合が、5質量%以上、50質量%以下であることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれか一項に記載の熱伝導性シート。
- [請求項5] 前記ケイ素化合物が、昇温開始温度25℃、昇温速度10℃/分で100℃まで昇温した後、100℃で一定に保つ熱重量分析において昇温開始から60分経過した時点における質量の減少割合が5%以上、60%以下の範囲である化合物を含むことを特徴とする請求項1から請求項4のいずれか一項に記載の熱伝導性シート。
- [請求項6] 前記ケイ素化合物が、昇温開始温度25℃、昇温速度10℃/分で100℃まで昇温した後、100℃で一定に保つ熱重量分析において昇温開始から60分経過した時点における質量の減少割合が5%未満

である化合物を含むことを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか一項に記載の熱伝導性シート。

[請求項7] 前記ケイ素化合物が、ケイ素原子に結合したアルキル基を有する化合物を含むことを特徴とする請求項 1 から請求項 6 のいずれか一項に記載の熱伝導性シート。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/024062

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C09K5/14 (2006.01) i, C08K3/013 (2018.01) i, C08K5/541 (2006.01) i,
C08L83/04 (2006.01) i, H01L23/36 (2006.01) i, H01L23/373 (2006.01) i,
H05K7/20 (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. C09K5/14, C08K3/013, C08K5/541, C08L83/04, H01L23/36,
H01L23/373, H05K7/20

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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 2009-209165 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 17 September 2009, claims 1-8, paragraphs [0042]-[0052], [0066]-[0071], examples 1-3 & US 2011/0024675 A1, claims 1-8, paragraphs [0075]-[0112], examples 1-3 & WO 2009/107757 A2 & EP 2247681 A1 & KR 10-2010-0126338 A & CN 102037087 A & TW 201002790 A	1-7
X	JP 2015-233104 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 24 December 2015, claims 1-11, paragraphs [0020]-[0025], examples 1-4 & US 2017/0198188 A1, claims 1-11, paragraphs [0021]-[0026], examples 1-4 & WO 2015/190270 A1 & EP 3157052 A1 & TW 201610134 A & CN 106415828 A & KR 10-2017-0016864 A	1-7



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

Date of mailing of the international search report

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/JP2018/024062

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 2014/196347 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 11 December 2014, claims 1-12 & TW 201505852 A	1-7
A	JP 2005-112961 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 28 April 2005, claims 1-8 & US 2005/0084691 A1, claims 1-13 & MY 131748 A	1-7
A	JP 2002-3718 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 09 January 2002, claims 1-7 & US 2002/0014692 A1, claims 1-7 & EP 1167457 A2	1-7
A	JP 8-295737 A (INTERNATIONAL BUSINESS MACHINES CORPORATION) 12 November 1996, claims 1-52 (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C09K5/14(2006.01)i, C08K3/013(2018.01)i, C08K5/541(2006.01)i, C08L83/04(2006.01)i,
H01L23/36(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i, H05K7/20(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. C09K5/14, C08K3/013, C08K5/541, C08L83/04, H01L23/36, H01L23/373, H05K7/20

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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 2009-209165 A (信越化学工業株式会社) 2009.09.17, 請求項 1-8、段落 0042-0052、0066-0071、実施例 1-3 & US 2011/0024675 A1, 請求項 1-8、段落 0075-0112、実施例 1-3 & WO 2009/107757 A2 & EP 2247681 A1 & KR 10-2010-0126338 A & CN 102037087 A & TW 201002790 A	1-7

☒ 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

13.09.2018

国際調査報告の発送日

25.09.2018

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)

中野 孝一

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

4 V

9153

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2015-233104 A (信越化学工業株式会社) 2015. 12. 24, 請求項 1-11、段落 0020-0025、実施例 1-4 & US 2017/0198188 A1, 請求項 1-11、段落 0021-0026、実施例 1-4 & WO 2015/190270 A1 & EP 3157052 A1 & TW 201610134 A & CN 106415828 A & KR 10-2017-0016864 A	1-7
A	WO 2014/196347 A1 (信越化学工業株式会社) 2014. 12. 11, 請求項 1-12 & TW 201505852 A	1-7
A	JP 2005-112961 A (信越化学工業株式会社) 2005. 04. 28, 請求項 1-8 & US 2005/0084691 A1, 請求項 1-13 & MY 131748 A	1-7
A	JP 2002-3718 A (信越化学工業株式会社) 2002. 01. 09, 請求項 1-7 & US 2002/0014692 A1, 請求項 1-7 & EP 1167457 A2	1-7
A	JP 8-295737 A (インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コー ポレイション) 1996. 11. 12, 請求項 1-52 (ファミリーなし)	1-7