(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
2025年1月9日(09.01.2025)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2025/009216 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 101/00 (2006.01) *C08K 5/541* (2006.01)
C08J 5/18 (2006.01) *C08K 7/18* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) *C08L 83/04* (2006.01)
C08K 3/28 (2006.01) *C09K 5/14* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/007512

(22) 国際出願日： 2024年2月29日(29.02.2024)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2023-111523 2023年7月6日(06.07.2023) JP

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

(72) 発明者: 加藤貴嗣(**KATO Takatsugu**).

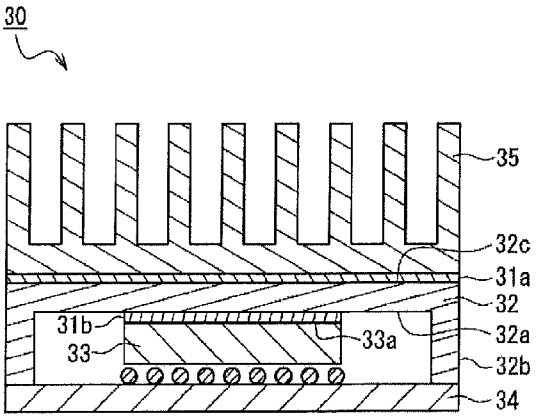
(74) 代理人: 弁理士法人池内アンドパートナーズ (**IKEUCHI & PARTNERS**); 〒5306026 大阪府大阪市北区天満橋１丁目８番３０号ＯＡＰタワー２６階 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG,

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

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



(57) **Abstract:** Provided are: a thermally conductive composition having a high thermal conductivity and a low compressive load and plasticity; a thermally conductive sheet using the thermally conductive composition; and a method for producing the thermally conductive sheet. This thermally conductive composition comprises: a matrix resin (component A) formed of a thermosetting resin; a curing catalyst; and thermally conductive particles (component B), wherein 1500-3000 parts by mass of component B is contained with respect to 100 parts by mass of component A, component B contains component B1, component B2, component B3, and component B4, 10-20 mass % of aluminum nitride having a median diameter (D50) of less than 20 μm (component B1), 3-9 mass % of aluminum nitride having a D50 of at least 20 μm (component B2), 50-60 mass % of alumina having a D50 of 60-80 μm (component B3), and 11-37 mass % of alumina having a D50 of less than 60 μm (component B4) are contained with respect to the entire component B, and the blend ratio (B1)/(B2) of component B1 and component B2 is 1.2-3 in terms of mass ratio.

WO 2025/009216 A1

[続葉有]

ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び可塑度を低く抑えた熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法を提供する。熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子（Ｂ成分）を含む熱伝導性組成物であって、Ａ成分100質量部に対してＢ成分は1500～3000質量部配合されており、Ｂ成分は下記Ｂ１成分、Ｂ２成分、Ｂ３成分、Ｂ４成分を含み、Ｂ成分全体に対し、D50(メジアン径）が20μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ１成分）10～20質量％、D50が20μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ２成分）3～9質量％、D50が60～80μｍのアルミナ（Ｂ３成分）50～60質量％、D50が60μｍ未満のアルミナ（Ｂ４成分）11～37質量％を含み、前記Ｂ１成分とＢ２成分の配合比率（Ｂ１）／（Ｂ２）が質量割合で１．２～３である。

明　細　書

発明の名称 ：

熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートとその製造方法

技術分野

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

背景技術

[0002] 近年のＣＰＵ等の半導体の性能向上はめざましくそれに伴い発熱量も膨大になっている。そのため発熱するような電子部品には放熱体が取り付けられ、半導体と放熱部との密着性を改善する為に熱伝導性シートが使われている。機器の小型化、高性能化、高集積化に伴い熱伝導性シートには柔らかさ、高熱伝導性が求められている。従来、特許第６２４６９８６号公報および特許第７０３９１５７号公報には大粒径の窒化アルミニウム粒子と小粒径の窒化アルミニウム粒子又はアルミナ粒子を含むポリシロキサン組成物が提案されている。特許第７０８２５６３号公報および特許第７２０５５５４号公報には窒化アルミニウム粒子を含む熱伝導性ポリシロキサン組成物が提案されている。

発明の概要

[0003] 本発明は、熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子（Ｂ成分）を含む熱伝導性組成物であって、

前記マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対して前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は１５００～３０００質量部配合されており、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は下記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、Ｂ－３成分、およびＢ－４成分を含み、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～２０質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３～９質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～６０質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１１～３７質量％含み、

前記Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で１．２～３である熱伝導性組成物である。

図面の簡単な説明

[0004] [図1]図１は本発明の一実施形態における熱伝導性シートの使用方法を示す模式的断面図である。

[図2]図２は本発明の一実施形態の球状アルミナ（Ｂ－３、Ｄ５０＝７５μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真である。

[図3]図３は本発明の丸み状ＡＩＮ（Ｂ－１、Ｄ５０＝５μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真である。

[図4]図４は本発明の不定形アルミナ（Ｂ－４、Ｄ５０＝４μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真である。

[図5]図５は本発明の一実施例で使用する圧縮荷重測定装置の模式的側面断面図である。

[図6]図６Ａ－Ｂは本発明の一実施例における試料の熱伝導率の測定方法を示す模式的説明図である。

発明の詳細な説明

[0005] しかし、従来の熱伝導性組成物及びこれを用いた熱伝導性シートは、熱伝導率を高くすると、圧縮荷重及び可塑度が高くなるという問題があった。

本発明は前記従来の問題を解決するため、熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び可塑度を低く抑えた熱伝導性シート、およびその原料である熱伝導性組

成物、及びこれを用いた熱伝導性シートの製造方法を提供する。

[0006] 本発明の熱伝導性組成物は、熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子（Ｂ成分）を含む熱伝導性組成物であって、前記マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対して前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は１５００～３０００質量部配合されており、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は下記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、Ｂ－３成分、およびＢ－４成分を含み、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～２０質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３～９質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～６０質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１１～３７質量％含み、

前記Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で１．２～３である。

[0007] 本発明の熱伝導性シートは、前記の熱伝導性組成物を含み、シートに成形されている。

[0008] 本発明の熱伝導性シートの製造方法は、前記の熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを製造する工程を含む。

[0009] 本発明は、前記組成とすることにより、熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び可塑度を低く抑えた熱伝導性シートおよびその原料である熱伝導性組成物と、熱伝導性シートの製造方法を提供できる。具体的には、前記熱伝導性組成物の硬化前の脱泡後の可塑度が好ましくは６０以下であり、前記熱伝導性組成物の硬化物の直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍの５０％圧縮時の瞬間荷重

値が好ましくは１０００Ｎ以下であり、好ましい熱伝導率は７Ｗ／ｍ・Ｋ以上である。また本発明の熱伝導性シートの製造方法は、本発明の熱伝導性組成物の可塑度が低く、成形加工性が良好であることから、連続シート成形が可能である。

[0010] 本発明は、マトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒（Ｃ成分）と熱伝導性粒子（Ｂ成分）を含む熱伝導性組成物である。

[0011] ＜マトリックス樹脂（Ａ成分）＞

前記マトリックス樹脂は、熱硬化性樹脂からなる。前記熱硬化性樹脂としては、シリコーン樹脂エポキシ樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂、アクリル樹脂、シリコーン樹脂、フッ素樹脂等が挙げられ、シリコーン樹脂が好ましい。熱硬化性樹脂は、ゴム、エラストマー、ゲル、パテ又はグリースなどの形態が挙げられる。前記熱硬化性樹脂は、具体的には、シリコーンゴム、シリコーンゲル、アクリルゴム、フッ素ゴムなどが挙げられる。シリコーン樹脂は過酸化物、付加、縮合等いかなる方法を用いて硬化してもよい。前記熱硬化性樹脂として、シリコーン樹脂は耐熱性が高いことから好ましい。前記マトリックス樹脂は、付加硬化型シリコーンポリマー、過酸化物硬化型シリコーンポリマー及び縮合型シリコーンポリマーから選ばれる少なくとも一つから形成されるのが好ましい。また、周辺への腐食性がないこと、系外に放出される副生成物が少ないこと、深部まで確実に硬化することなどの理由により前記シリコーン樹脂は付加硬化型であることが好ましい。

[0012] 前記マトリックス樹脂は、さらにシランカップリング剤を含むのが好ましく、具体的には、前記マトリックス樹脂１００質量部に対し、シランカップリング剤を好ましくは０．１～１０質量部、より好ましくは０．５～７質量部添加する。シランカップリング剤は、熱伝導性粒子（Ｂ成分）の表面に被覆され（表面処理）、マトリックス樹脂（Ａ成分）に充填されやすくなるとともに（可塑剤機能）、熱伝導性粒子（Ｂ成分）へ硬化触媒（Ｃ成分）が吸着されるのを防ぎ、硬化阻害を防止する効果がある。前記マトリックス樹脂

が、さらにシランカップリング剤を含むと熱伝導性組成物の保存安定性に優れるという利点がある。

[0013] 前記シランカップリング剤は、例えば、式Ｒ（ＣＨ$_3$）$_a$Ｓｉ（ＯＲ’）$_{4-a}$（Ｒは炭素数１～２０の非置換または置換有機基であり、Ｒ’は炭素数１～４のアルキル基であり、ａは０もしくは１である）で示されるシラン化合物、もしくはその部分加水分解物が挙げられる。Ｒ（ＣＨ$_3$）$_a$Ｓｉ（ＯＲ’）$_{4-a}$（Ｒは炭素数１～２０の非置換または置換有機基、Ｒ’は炭素数１～４のアルキル基、ａは０もしくは１）で示されるシラン化合物（以下単に「シラン」という。）は、例えばメチルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ペンチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、デシルトリエトキシシラン、ドデシルトリメトキシシラン、ドデシルトリエトキシシラン、ヘキサデシルトリメトキシシラン、ヘキサデシルトリエトキシシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリエトキシシシラン等のシラン化合物が挙げられる。前記シラン化合物は、一種又は二種以上混合して使用することができる。

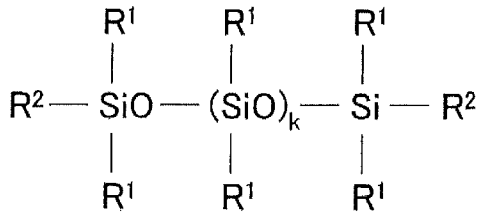
[0014] 前記マトリックス樹脂は、好ましくはベースポリマー成分（Ａ１成分）と架橋成分（Ａ２）とを含む。

（１）ベースポリマー成分（Ａ１成分）

ベースポリマー成分は、例えば、一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を２個以上含有するオルガノポリシロキサンである。前記オルガノポリシロキサンは本発明のマトリックス樹脂における主剤（ベースポリマー成分）である。このオルガノポリシロキサンは、アルケニル基として、ビニル基、アリル基等の炭素原子数２～８、特に２～６の、ケイ素原子に結合したアルケニル基を一分子中に２個以上有する。前記オルガノポリシロキサンの粘度は２５℃で１０～１，０００，０００ｍＰａ・ｓ、特に１００～１００，０００ｍＰａ・ｓであることが作業性、硬化性などから望ましい。

[0015] 具体的には、下記一般式（Ｉ）で表される１分子中に分子鎖両末端のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有するオルガノポリシロキサンを使用することができる。このオルガノポリシロキサンは側鎖がアルキル基で封鎖されている直鎖状オルガノポリシロキサンである。オルガノポリシロキサンとしては、２５℃における粘度は１０～１，０００，０００ｍＰａ・ｓのものが作業性、硬化性などから望ましい。なお、この直鎖状オルガノポリシロキサンは少量の分岐状構造（三官能性シロキサン単位）を分子鎖中に含有するものであってもよい。

[0016] [化1]



（Ｉ）

[0017] 式中、

各R^1は、互いに同一又は異なっていてもよく、脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基であり、

R^2はアルケニル基であり、

ｋは０又は正の整数である。

[0018] 一般式（Ｉ）において、R^1の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換の一価炭化水素基としては、例えば、炭素原子数１～１０、特に１～６の炭化水素基が好ましい。具体的には、脂肪族不飽和結合を有さない非置換の一価炭化水素基としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基；が挙げられる。脂肪族不飽和結合を有さない置換の一価炭化水素基としては、前記非置換の一価炭化水素基の水素原子の一部又は全部を、フッ素、臭

素、塩素等のハロゲン原子；シアノ基等で置換した基、例えばクロロメチル基、クロロプロピル基、ブロモエチル基、トリフロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基；シアノエチル基等が挙げられる。

[0019] 一般式（Ｉ）において、R^2のアルケニル基としては、例えば炭素原子数２～６、特に２～３のアルケニル基が好ましい。前記アルケニル基としては、具体的にはビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、イソブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基等が挙げられ、好ましくはビニル基である。

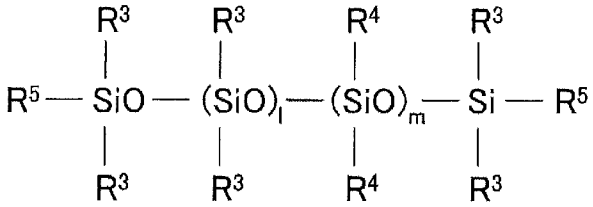
[0020] 一般式（Ｉ）において、ｋは、０又は正の整数であり、好ましくは０≦ｋ≦１０，０００を満足する０又は正の整数、より好ましくは５≦ｋ≦２，０００、さらに好ましくは１０≦ｋ≦１，２００を満足する整数である。

[0021] Ａ１成分のオルガノポリシロキサンとしては一分子中に例えばビニル基、アリル基等の炭素原子数２～８、特に２～６のケイ素原子に結合したアルケニル基を３個以上、通常、３～３０個、好ましくは、３～２０個程度有するオルガノポリシロキサンを併用しても良い。併用するオルガノポリシロキサンの分子構造は、直鎖状、環状、分岐状、三次元網状のいずれの分子構造のものであってもよい。併用するオルガノポリシロキサンは、好ましくは、主鎖がジオルガノシロキサン単位の繰り返しからなり、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖された、２５℃での粘度が１０～１，０００，０００ｍＰａ・ｓ、特に１００～１００，０００ｍＰａ・ｓの直鎖状オルガノポリシロキサンである。

[0022] 一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を２個以上含有するオルガノポリシロキサンにおいて、アルケニル基は分子のいずれかの部分に結合していればよい。例えば、分子鎖末端、あるいは分子鎖非末端（分子鎖途中）のケイ素原子に結合しているものを含んでも良い。なかでも下記一般式（ＩＩ）で表される、分子鎖両末端のケイ素原子上にそれぞれ１～３個のアルケニル基を有する直鎖状オルガノポリシロキサンであって、２５℃における粘度が１０～１，０００，０００ｍＰａ・ｓのものが作業性、硬化性などから

望ましい。但し、この直鎖状オルガノポリシロキサンの分子鎖末端のケイ素原子に結合したアルケニル基が、両末端合計で１個または２個である場合には、分子鎖非末端（分子鎖途中）のケイ素原子に結合したアルケニル基を、例えばジオルガノシロキサン単位中の置換基としてする直鎖状オルガノポリシロキサンが好ましい。なお、この直鎖状オルガノポリシロキサンは少量の分岐状構造（三官能性シロキサン単位）を分子鎖中に含有するものであってもよい。

[0023] [化2]



（ＩＩ）

[0024] 式中、

各Ｒ^{3}は互いに同一又は異なっていてもよく、非置換又は置換一価炭化水素基であって、少なくとも１個がアルケニル基であり、

各Ｒ^{4}は互いに同一又は異なっていてもよく、脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基であり、

Ｒ^{5}はアルケニル基であり、

ｌ、ｍは互いに独立して、０又は正の整数である。

[0025] 一般式（ＩＩ）において、Ｒ^{3}の非置換又は置換の一価炭化水素基としては、例えば、炭素原子数１～１０、特に１～６の炭化水素基が好ましい。具体的には、非置換の一価炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基等のアラルキル基；ビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニ

ル基、ブテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基、オクテニル基等のアルケニル基；が挙げられる。置換の一価炭化水素基としては、前記非置換の一価炭化水素基の基の水素原子の一部又は全部をフッ素、臭素、塩素等のハロゲン原子；シアノ基等で置換した基、例えばクロロメチル基、クロロプロピル基、ブロモエチル基、トリフロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基やシアノエチル基等が挙げられる。

[0026] 一般式（ＩＩ）において、R^4の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基としても、炭素原子数１～１０、特に１～６の炭化水素基が好ましい。R^4の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基としては、上記R^1の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基の具体例と同様のものが例示できるが、但しアルケニル基は含まない。

[0027] 一般式（ＩＩ）において、R^5のアルケニル基としては、例えば炭素数２～６、特に炭素数２～３のアルケニル基が好ましく、具体的には前記式（Ｉ）のR^2のアルケニル基と同様のものが例示され、好ましくはビニル基である。

[0028] 一般式（ＩＩ）において、Ｉおよびｍは、互いに独立して、０又は正の整数であり、好ましくは０＜Ｉ＋ｍ≦１０，０００を満足する０又は正の整数であり、好ましくは５≦Ｉ＋ｍ≦２，０００、より好ましくは１０≦Ｉ＋ｍ≦１，２００を満足し、かつ好ましくは０＜Ｉ／（Ｉ＋ｍ）≦０．２、より好ましくは、０．００１１≦Ｉ／（Ｉ＋ｍ）≦０．１を満足する整数である。

[0029] （２）架橋成分（Ａ２成分）

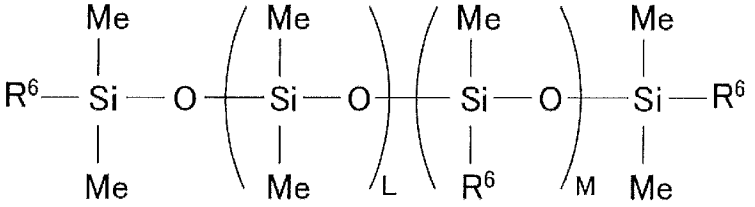
本発明のＡ２成分の架橋成分は、例えば、オルガノハイドロジェンポリシロキサンである。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは架橋剤として作用する。このオルガノハイドロジェンポリシロキサン中のＳｉＨ基とＡ１成分のオルガノポリシロキサン中のアルケニル基とが付加反応（ヒドロシリル化）することにより硬化物を形成する。前記オルガノハイドロジェンポリシロキサンは、一分子中にケイ素原子に結合した水素原子（即ち、ＳｉＨ

基）を２個以上有するものであれば、架橋成分（Ａ２成分）として用いることができる。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの分子構造は、直鎖状、環状、分岐状、または三次元網状構造のいずれであってもよい。また、オルガノハイドロジェンポリシロキサンの一分子中のケイ素原子の数（即ち、重合度）が２～１，０００、特に２～３００程度のものを架橋成分（Ａ２成分）として好ましく使用することができる。

[0030] 前記オルガノハイドロジェンポリシロキサンは、前記のようにＳｉＨ基を含む。前記オルガノハイドロジェンポリシロキサンにおいて、ＳｉＨ基の位置は特に制約はなく、分子鎖の末端でも分子鎖非末端（分子鎖途中）でもよい。また、水素原子以外のケイ素原子に結合した有機基としては、前記一般式（Ｉ）のR^1と同様の脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基が挙げられる。

[0031] Ａ２成分のオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては下記式（ＩＩＩ）のものが例示できる。

[0032] [化3]



（ＩＩＩ）

[0033] 上記の式中、

各R^6は互いに同一又は異なっていてもよく、アルキル基、フェニル基、エポキシ基、アクリロイル基、メタアクリロイル基、アルコキシ基、または水素原子であり、少なくとも２つは水素原子である。

Ｌは０～１，０００の整数、好ましくは０～３００の整数であり、

Ｍは１～２００の整数である。

[0034] ＜硬化触媒（Ｃ成分）＞

Ｃ成分の硬化触媒としてはヒドロシリル化反応に用いられる触媒を用いる

ことができる。前記硬化触媒としては、例えば白金黒、塩化第２白金、塩化白金酸、塩化白金酸と一価アルコールとの反応物、塩化白金酸とオレフィン類やビニルシロキサンとの錯体、白金とビニルジシロキサンとの錯体、白金ビスアセトアセテート等の白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒などの白金族金属触媒が挙げられる。なお、２液硬化型シリコーンポリマーには通常、白金族系金属触媒が含まれているが、本発明の熱伝導性組成物に２液硬化型シリコーンポリマーを含む場合であっても、好ましくは追加の白金族系金属触媒を本発明の熱伝導性組成物に添加する。白金系金属触媒を追加するのは、前記熱伝導性組成物の硬化速度をコントロールするためである。

[0035] 前記硬化触媒は、前記熱伝導性組成物中、マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対して例えば０．０１～１０００質量部、好ましくは０．１～１００質量部、より好ましくは０．５～５０質量部含まれる。

[0036] ＜熱伝導性粒子（Ｂ成分）＞

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は下記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、Ｂ－３成分、およびＢ－４成分を含み、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～２０質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３～９質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～６０質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１１～３７質量％含む。

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、好ましくは

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～１８質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３．５～８．５質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～５８質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１５～３５質量％含む。

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、より好ましくは

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～１６質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を４～８質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５１～５８質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を２０～３３質量％含む。

[0037] 本発明では、熱伝導性粒子（Ｂ成分）は平均粒子径が異なる複数種類の熱伝導性無機粒子を併用する。このようにすると、大きな粒子の間に小さな粒子径の熱伝導性無機粒子が埋まり、最密充填に近い状態で充填でき、熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導性が高くなるからである。また、このようにすると、熱伝導性組成物の硬化物の可塑度は低く、成形加工性が良好な熱伝導性組成物が得られるためである。またこのようにすると、熱伝導性組成物の硬化物は、圧縮荷重が低く、パテ状のものより取り扱い性が良好な放熱シート：ＴＩＭ(Thermal Interface Material)へと成形することができる。

[0038] 前記Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で１．２～３であり、好ましくは１．３～２．９であり、より好ましくは

１．３～２．８である。このような配合比率を用いると、熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び可塑度を低く抑えた熱伝導性組成物の硬化物が得られるからである。

[0039] マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対し、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は１５００～３０００質量部配合されている。マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対する前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）の配合量は、好ましくは１７００～２８００質量部であり、より好ましくは２０００～２５００質量部である。このような配合比を用いると、熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び可塑度を低く抑えた熱伝導性組成物の硬化物が得られるからである。

[0040] 前記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、およびＢ－４成分は丸み状又は不定形破砕状粒子であるのが好ましい。なお、丸み状又は不定形破砕状粒子は入手しやすく好ましい。以下において、不定形破砕状は単に不定形とも表示する。また、前記Ｂ－３成分は球状であるのが好ましい。Ｂ－３成分は球状とすることにより、熱伝導性組成物をコンパウンドしやすくなる。

[0041] なお、熱伝導性粒子（Ｂ成分）において、アルミナ合計質量／窒化アルミニウム合計質量は４～５．５が好ましく、４．１～５．３がより好ましい。アルミナ合計質量を多くすることにより、熱伝導性組成物の製造コストを安くできるからである。図２に本発明で用いた球状アルミナ（Ｂ－３、Ｄ５０＝７５μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真、図３に本発明で用いた丸み状ＡＩＮ（Ｂ－１、Ｄ５０＝５μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真、図４に不定形アルミナ（Ｂ－４、Ｄ５０＝４μｍ）の走査電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真を示す。

[0042] ＜その他添加剤＞

本発明の熱伝導性組成物には、必要に応じて前記以外の成分を配合することができる。例えば前記熱伝導性組成物には、ベンガラ、酸化チタン、酸化セリウムなどの耐熱向上剤、難燃助剤、硬化遅延剤などを添加してもよい。また、前記熱伝導性組成物には、着色、調色の目的で有機或いは無機顔料を

添加しても良い。また、前記熱伝導性組成物には、前記のシランカップリング剤を添加してもよい。

[0043] ＜熱伝導性組成物（コンパウンド）＞

本発明の熱伝導性組成物は、加熱などにより硬化することができる。

前記熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導率は７Ｗ／ｍ・Ｋ以上が好ましく、より好ましくは７～１５Ｗ／ｍ・Ｋ、さらに好ましくは７～１４Ｗ／ｍ・Ｋである。このような熱伝導率を有する硬化物は、放熱シート：ＴＩＭ(Thermal Interface Material)として好適である。

[0044] 前記熱伝導性組成物の硬化物は、ＡＳＴＭ Ｄ５７５-９１:２０１２に準じた測定で、直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍの５０％圧縮時の瞬間荷重値は１０００Ｎ以下が好ましく、より好ましくは９５０Ｎ以下であり、さらに好ましくは９００Ｎ以下である。これにより、前記硬化物はつぶれやすくなり、発熱部と放熱体との間に介在させる際に、発熱部への物理的負荷を軽減できる。また、前記熱伝導性組成物の硬化物は、ＡＳＴＭ Ｄ５７５-９１:２０１２に準じた測定で、直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍの５０％圧縮時の定常荷重値は１０００Ｎ以下が好ましく、より好ましくは９５０Ｎ以下であり、さらに好ましくは９００Ｎ以下である。これにより、前記硬化物はつぶれやすくなり、発熱部と放熱体との間に介在させる際に、発熱部への物理的負荷を軽減できる。

[0045] 前記熱伝導性組成物の硬化前の脱泡後の可塑度は、６０以下が好ましく、より好ましくは１０～６０、さらに好ましくは２０～５５、とくに好ましくは３０～５０である。このような低い可塑度の熱伝導性組成物は、成形加工性が良好である。前記可塑度は、JIS K 6300-3,ISO 2007:1991に従い、ウォーレス可塑度計（Wallace plastometer）を使用し、測定温度２５℃において、２枚の金属プレート間に試料を一定荷重（１００Ｎ）で一定時間（１５秒）の間、圧縮した後の試料の厚さ（ｔ）を圧縮前の試料の厚さ（t_0）で割った値を可塑度（P_0＝ｔ／t_0×１００）で求めることができる。P_0が小さいほど柔軟であることを示す。熱伝導性組成物は脱泡した後にシート成形するこ

とから、硬化前脱泡後可塑度は重要である。

[0046] 本発明の前記熱伝導性組成物はシートに成形されていると汎用性が高く、ＴＩＭとして好適である。前記熱伝導性組成物を含むシート（すなわち熱伝導性シート）の厚みは、０．２～１０ｍｍの範囲が好ましい。

[0047] 本発明の熱伝導性シートの製造方法は、前記熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを得る工程を含む。前記真空脱泡は、前記熱伝導性組成物を－０．０８～－０．１Ｐａの圧力に減圧し、５～１０分間程度置き、脱泡することにより行うことができる。前記圧延はロール圧延加工、プレス加工などが挙げられるが、連続生産が可能であることから、ロール圧延加工が好ましい。

[0048] 前記熱伝導性組成物の絶縁破壊電圧（ＪＩＳ　Ｋ６２４９）は、７～１６ｋＶ／ｍｍであるのが好ましい。これにより、前記熱伝導性組成物を硬化させた際、電気的絶縁性の高い熱伝導性シートとすることができる。

[0049] 前記熱伝導性組成物の体積抵抗率（ＪＩＳ　Ｋ６２４９）は、10^{10}～10^{14}Ω・ｃｍであるのが好ましい。これにより、前記熱伝導性組成物を硬化させた際、電気的絶縁性の高い熱伝導性シートとすることができる。

[0050] 本発明の熱伝導性組成物の一例として、付加反応型シリコーン組成物（未硬化組成物）が好ましく、下記組成のコンパウンドがさらに好ましい。

（Ａ成分）マトリックス樹脂

マトリックス樹脂は、下記（Ａ１）および（Ａ２）を含む。

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

（Ａ２）架橋成分：１分子中に少なくとも２個のＳＨ基を含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、前記Ａ１成分中のケイ素原子結合アルケニル基１モルに対して、１モル未満の量

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

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

（Ｂ成分）硬化触媒及び（Ｃ成分）熱伝導性粒子は前記のとおりである。

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

（Ｄ）その他添加剤：シランカップリング剤、硬化遅延剤、着色剤等を任意量含む。

[0051] 以下図面を用いて説明する。以下の図面において、同一符号は同一物を示す。図１は本発明の一実施形態における熱伝導性シートを放熱構造体３０に組み込んだ模式的断面図である。熱伝導性シート３１ｂは、半導体素子等の電子部品３３の発する熱を放熱するものであり、ヒートスプレッダ３２の電子部品３３と対峙する主面３２ａに固定され、電子部品３３とヒートスプレッダ３２との間に挟持される。また、熱伝導シート３１ａは、ヒートスプレッダ３２とヒートシンク３５との間に挟持される。そして、熱伝導シート３１ａ、３１ｂは、ヒートスプレッダ３２とともに、電子部品３３の熱を放熱する放熱部材を構成する。ヒートスプレッダ３２は、例えば方形板状に形成され、電子部品３３と対峙する主面３２ａと、主面３２ａの外周に沿って立設された側壁３２ｂとを有する。ヒートスプレッダ３２は、側壁３２ｂに囲まれた主面３２ａに熱伝導シート３１ｂが設けられ、また主面３２ａと反対側の他面３２ｃに熱伝導シート３１ａを介してヒートシンク３５が設けられる。電子部品３３は、例えば、ＢＧＡ等の半導体素子であり、配線基板３４に実装されている。

[0052] 本発明は、以下の態様を含む。

[0053] ［項１］ 熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂（Ａ成分）と硬化触媒と熱伝導性粒子（Ｂ成分）を含む熱伝導性組成物であって、

前記マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対して前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は１５００～３０００質量部配合されており、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は下記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、Ｂ－３成分

、およびＢ－４成分を含み、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～２０質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３～９質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～６０質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１１～３７質量％含み、

前記Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で１．２～３である熱伝導性組成物。

[0054] ［項２］ 前記熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導率は７Ｗ／ｍ・Ｋ以上であり、好ましくは７～１５Ｗ／ｍ・Ｋ、より好ましくは７～１５Ｗ／ｍ・Ｋである項１に記載の熱伝導性組成物。

[0055] ［項３］ 前記熱伝導性組成物の硬化物は、ＡＳＴＭ Ｄ５７５-９１:２０１２に準じた測定で、直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍの５０％圧縮時の瞬間荷重値が１０００Ｎ以下であり、好ましくは９５０Ｎ以下であり、より好ましくは９００Ｎ以下である、項１または２に記載の熱伝導性組成物。

[0056] ［項４］ 前記熱伝導性組成物の硬化前の脱泡後の可塑度が６０以下であり、好ましくは１０～６０、より好ましくは２０～５５、さらに好ましくは３０～５０である、項１～３のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0057] ［項５］ 前記熱硬化性樹脂は、シリコーン樹脂エポキシ樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂、アクリル樹脂、シリコーン樹脂、およびフッ素樹脂から選択されるのが好ましく、シリコーン樹脂がより好ましい、項１～４のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0058] ［項６］ 前記マトリックス樹脂は、付加硬化型シリコーンポリマー、過

酸化物硬化型シリコーンポリマー及び縮合型シリコーンポリマーから選ばれる少なくとも一つである項１～５のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0059] ［項７］ 前記マトリックス樹脂は、さらにシランカップリング剤を含むのが好ましく、前記マトリックス樹脂１００質量部に対し、さらにシランカップリング剤が０．１～１０質量部配合されているのがより好ましい、項１～６のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0060] ［項８］ 前記シランカップリング剤が、式$R(CH_3)_aSi(OR')_{4-a}$（Ｒは炭素数１～２０の非置換または置換有機基であり、Ｒ’は炭素数１～４のアルキル基であり、ａは０もしくは１である）で示されるシラン化合物、もしくはその部分加水分解物であり、好ましくはメチルトリメトキシラン、エチルトリメトキシラン，プロピルトリメトキシラン、ブチルトリメトキシラン、ペンチルトリメトキシラン、ヘキシルトリメトキシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、オクチルトリエトキシラン、デシルトリメトキシシラン、デシルトリエトキシシラン、ドデシルトリメトキシシラン、ドデシルトリエトキシシラン、ヘキサデシルトリメトキシシラン、ヘキサデシルトリエトキシシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、またはオクタデシルトリエトキシシシランである、項７に記載の熱伝導性組成物。

[0061] ［項９］ 前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、好ましくは

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～１８質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３．５～８．５質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～５８質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１５～３５質量％含む。

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、より好ましくは

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～１６質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を４～８質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５１～５８質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を２０～３３質量％含む、項１～８のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0062] ［項１０］ Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で、好ましくは１．３～２．９であり、より好ましくは１．３～２．８である、項１～９のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0063] ［項１１］ マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対する前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）の配合量は、好ましくは１７００～２８００質量部であり、より好ましくは２０００～２５００質量部である、項１～１０のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0064] ［項１２］ 前記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、およびＢ－４成分は丸み状又は不定形破砕状粒子であり、前記Ｂ－３成分は球状である、項１～１１のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

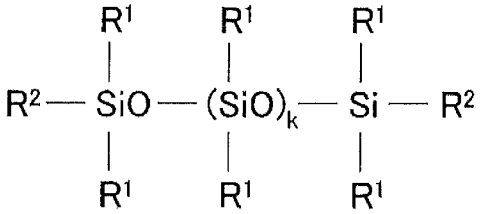
[0065] ［項１３］ 熱伝導性粒子（Ｂ成分）において、アルミナ合計質量／窒化アルミニウム合計質量は４～５．５が好ましく、４．１～５．３がより好ましい、項１～１２のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0066] ［項１４］ 前記マトリックス樹脂は、ベースポリマー成分（Ａ１成分）と架橋成分（Ａ２）とを含む、項１～１３のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0067] ［項１５］ 前記ベースポリマー成分は、一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を２個以上含有するオルガノポリシロキサンであり、好まし

くはアルケニル基として、ビニル基、アリル基等の炭素原子数２～８、特に２～６の、ケイ素原子に結合したアルケニル基を一分子中に２個以上有するオルガノポリシロキサンであり、さらに好ましくは一般式（Ｉ）で表される１分子中に分子鎖両末端のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有するオルガノポリシロキサンまたは一般式（ＩＩ）で表される、分子鎖両末端のケイ素原子上にそれぞれ１～３個のアルケニル基を有する直鎖状オルガノポリシロキサンである、項１～１４のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0068] [化4]



（Ｉ）

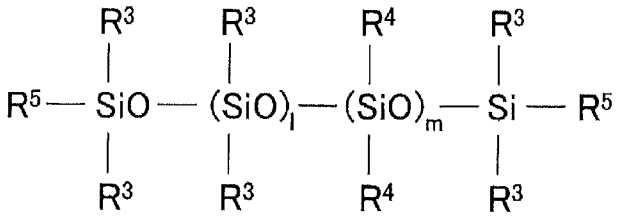
[0069] 式中、

各R^1は、互いに同一又は異なっていてもよく、脂肪族不飽和結合を有さない非置換又は置換一価炭化水素基であり、

R^2はアルケニル基であり、

ｋは０又は正の整数である。

[0070] [化5]



（ＩＩ）

[0071] 式中、

各R^3は互いに同一又は異なっていてもよく、非置換又は置換一価炭化水素基であって、少なくとも１個がアルケニル基であり、

各R^4は互いに同一又は異なっていてもよく、脂肪族不飽和結合を有さない非

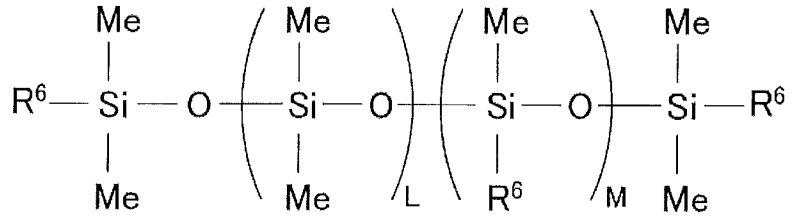
置換又は置換一価炭化水素基であり、

R^5はアルケニル基であり、

ｌ，ｍは互いに独立して、０又は正の整数である。

[0072] ［項１６］ 前記架橋成分は、オルガノハイドロジェンポリシロキサンであり、好ましくは一分子中にケイ素原子に結合した水素原子（即ち、ＳｉＨ基）を２個以上有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンであり、さらに好ましくは一般式（ＩＩＩ）で表されるオルガノハイドロジェンポリシロキサンである、項１～１５のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[化6]



（ＩＩＩ）

[0073] 上記の式中、

各R^6は互いに同一又は異なっていてもよく、アルキル基、フェニル基、エポキシ基、アクリロイル基、メタアクリロイル基、アルコキシ基、または水素原子であり、少なくとも２つは水素原子である。

Ｌは０～１，０００の整数、好ましくは０～３００の整数であり、

Ｍは１～２００の整数である。

[0074] ［項１７］ 前記硬化触媒は、ヒドロシリル化反応に用いられる触媒であり、好ましくは、白金黒、塩化第２白金、塩化白金酸、塩化白金酸と一価アルコールとの反応物、塩化白金酸とオレフィン類やビニルシロキサンとの錯体、白金とビニルジシロキサンとの錯体、白金ビスアセトアセテート等の白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒などの白金族金属触媒である、項１～１６のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[0075] ［項１８］ 前記熱伝導性組成物は、付加反応型シリコーン組成物（未硬化組成物）が好ましく、下記組成のコンパウンドがさらに好ましい。

（Ａ成分）マトリックス樹脂

マトリックス樹脂は、下記（Ａ１）および（Ａ２）を含む。

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

（Ａ２）架橋成分：１分子中に少なくとも２個のＳＨ基を含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、前記Ａ１成分中のケイ素原子結合アルケニル基１モルに対して、１モル未満の量

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

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

（Ｂ成分）硬化触媒及び（Ｃ成分）熱伝導性粒子は項１に記載のとおりである。

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

（Ｄ）その他添加剤：シランカップリング剤、硬化遅延剤、着色剤等を任意量含む。

[0076] ［項１９］ 項１～１８のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物を含み、シートに成形されている熱伝導性シート。

[0077] ［項２０］ 前記熱伝導性シートの厚みは０．２～１０ｍｍの範囲である項１９に記載の熱伝導性シート。

[0078] ［項２１］ 項１～１８のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを製造する工程を含む熱伝導性シートの製造方法。

[0079] ［項２２］ 前記真空脱泡は、前記熱伝導性組成物を－０．０８～－０．１Ｐａの圧力に減圧し、５～１０分間程度置き、脱泡することにより行う、項２１に記載の熱伝導性シートの製造方法。

[0080] ［実施例］

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

[0081] ＜５０％圧縮荷重値＞

圧縮荷重の測定方法はＡＳＴＭ　Ｄ５７５－９１：２０１２に従った。図５は本発明の一実施形態で使用する圧縮荷重測定装置の模式的側面断面図である。この圧縮荷重測定装置１は、試料台２とロードセル６を備え、アルミプレート３と５の間に熱伝導性シート試料４を挟持し、図５のように取り付け、ロードセル６により規定の厚みまで圧縮する。厚みの５０％圧縮時における荷重値の最大荷重値（「５０％圧縮荷重値（瞬間）」）、およびその圧縮を１分間保持後の荷重値「５０％圧縮荷重値（定常）」を記録する。

測定条件

試料：円柱形（直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍ）

圧縮率：５０％

アルミプレートサイズ：円形（直径２８．６ｍｍ）（圧縮面）

圧縮速度：５ｍｍ／ｍｉｎ

圧縮方式：ＴＲＩＧＧＥＲ方式（荷重２Ｎを感知した点を測定開始位置とする方式）

測定装置：アイコーエンジニアリング製、ＭＯＤＥＬ－１３１０ＮＷ（ロードセル　２００ｋｇｆ）

[0082] ＜熱伝導率＞

熱伝導性シートの熱伝導率は、ホットディスク（ＩＳＯ　２２００７－２：２００８準拠）により測定した。この熱伝導率測定装置１１は図６Ａに示すように、ポリイミドフィルム製センサ１２を２個の熱伝導性シート試料１３ａ、１３ｂで挟み、センサ１２に定電力をかけ、一定発熱させてセンサ１２の温度上昇値から熱特性を解析する。センサ１２は先端１４が直径７ｍｍであり、図６Ｂに示すように、電極の２重スパイラル構造となっており、下部に印加電流用電極１５と抵抗値用電極（温度測定用電極）１６が配置され

ている。熱伝導率は以下の式（数１）で算出した。

[0083] [数1]

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

λ ：熱伝導率(W/m・K)

Po ：定電力(W)

r ：センサの半径(m)

τ ：$\sqrt{\alpha \cdot t/r^2}$

α ：試料の熱拡散率(m^2/s)

t ：測定時間(s)

$D(\tau)$ ：無次元化されたτの関数

$\Delta T(\tau)$ ：センサの温度上昇(K)

[0084] ＜可塑度＞

可塑度は、JIS K 6300-3,ISO 2007:1991に従い、ウォーレス可塑度計（Wallace plastometer）を使用し、測定温度２３℃において、２枚の金属プレート間に熱伝導性組成物を一定荷重（１００Ｎ）、一定時間（１５秒）の間圧縮した後の熱伝導性組成物の厚さ（ｔ）を圧縮前の熱伝導性組成物の厚さ（t_0）で割った値を可塑度（P_0＝ｔ／t_0×１００）として求めた。P_0が大きいほど柔軟であることを示す。作成した硬化前脱泡後可塑度は熱伝導性組成物（コンパウンド）を、－０．１Ｐａの減圧状態で５分間脱泡した後の熱伝導性組成物の可塑度である。

[0085] （実施例１～６、比較例１～７）

１．材料成分

（１）マトリックス樹脂（Ａ成分）

市販のポリオルガノシロキサンを含む２液室温付加硬化型シリコーンポリマー（シリコーン成分）を使用した。一方の液（Ａ液）には、ベースポリマー成分（ポリオルガノシロキサン、Ａ成分のうちのＡ１成分）と白金族系金属触媒が含まれており、他方の液（Ｂ液）には、ベースポリマー成分（ポリ

オルガノシロキサン、Ａ成分のうちのＡ１成分）と架橋剤成分（Ａ成分のうちのＡ２成分）であるオルガノハイドロジェンポリシロキサンが含まれる。Ａ液とＢ液の比率は、質量比でＡ：Ｂ＝１００：１００である。この２液室温付加硬化型シリコーンポリマーは、室温で混合することにより付加硬化してシリコーン樹脂になる。

[0086] （２）熱伝導性粒子（Ｂ－１～Ｂ－４成分）

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

・Ｂ－１：丸み状窒化アルミニウム（Ｄ５０＝５μｍ）
・Ｂ－１：不定形窒化アルミニウム（Ｄ５０＝１５μｍ）
・Ｂ－２：丸み状窒化アルミニウム（Ｄ５０＝２０μｍ）
・Ｂ－２：丸み状窒化アルミニウム（Ｄ５０＝３０μｍ）
・Ｂ－２：丸み状窒化アルミニウム（Ｄ５０＝７０μｍ）
・Ｂ－２：丸み状窒化アルミニウム（Ｄ５０＝１００μｍ）
・Ｂ－３：球状アルミナ（Ｄ５０＝７５μｍ）
・Ｂ－４：不定形アルミナ（Ｄ５０＝０．３μｍ）
・Ｂ－４：不定形アルミナ（Ｄ５０＝０．７μｍ）
・Ｂ－４：不定形アルミナ（Ｄ５０＝４．０μｍ）
・Ｂ－４：不定形アルミナ（Ｄ５０＝２．２μｍ）

[0087] （３）硬化触媒（Ｃ成分）

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

[0088] （４）シランカップリング剤

シランカップリング剤としてデシルトリメトキシシランを使用した。

[0089] ２．熱伝導性組成物（コンパウンド）

各材料について前記表１に示す量を計量し、それらを混合装置に入れて熱伝導性組成物とした。この熱伝導性組成物は－０．１Ｐａの減圧状態で５分間脱泡した。

[0090] ３．シート成形加工

離型処理をしたポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルムで前記熱伝導性組成物を挟み込み、等速ロールにて熱伝導性組成物を厚み２．０ｍｍのシート状に圧延成形し、その状態で１００℃、１０分加熱硬化し、熱伝導性シート（熱伝導性シリコーンゴムシート）を得た。成形加工性は前記条件で成形できた場合「可能」、できない場合は「ＮＧ」と判断した。

[0091] 実施例の条件と結果を表１に、比較例の条件と結果を表２に示す。表１および２においては、各材料の量を、マトリックス樹脂（Ａ成分、２液室温硬化型シリコーンポリマー）を１００質量部（１００ｇ）とした場合の量（質量部）で記載している。

なお、マトリックス樹脂（Ａ成分）、シランカップリング剤、白金族系金属触媒の比重はいずれも０．９８、アルミナ（Ｂ－３成分、Ｂ－４成分）の比重は３．９８、窒化アルミニウム（Ｂ－１成分、Ｂ－２成分）の比重は３．３２である。

[0092]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
A:2 液硬化型ｼﾘｺｰﾝﾎﾟ ﾘﾏｰ(g)		100	100	100	100	100	100
シランカップリング剤(g)		4	4	4	4	4	4
白金族系金属触媒(g)		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
B-1:丸み状 AlN,D50=5μm(g)		–	–	–	–	–	230
B-1:不定形 AlN,D50=15μm(g)		250	220	250	250	250	–
B-2:丸み状 AlN,D50=20μm(g)		100	110	–	–	–	–
B-2:丸み状 AlN,D50=30μm(g)		–	–	100	–	–	–
B-2:丸み状 AlN,D50=70μm(g)		–	–	–	100	–	–
B-2:丸み状 AlN,D50=100μm(g)		–	–	–	–	100	150
B-3:球状アルミナ,D50=75μm(g)		1200	1100	1100	1100	1100	1100
B-4:不定形アルミナ,D50=0.3μm(g)		290	290	–	–	–	–
B-4:不定形アルミナ,D50=0.7μm(g)		–	–	290	290	290	–
B-4:不定形アルミナ,D50=4.0μm(g)		280	–	280	280	280	280
B-4:不定形アルミナ,D50=2.2μm(g)		–	280	–	–	–	–
熱伝導性粒子(B 成分)合計質量(B-1+B-2+B-3+B-4) (g)		2120	2000	2020	2020	2020	2050
熱伝導性樹脂組成物合計質量(g)		2224.5	2104.5	2124.5	2124.5	2124.5	2154.5
アルミナ合計質量(B-3+B-4)(g)		1170	1670	1670	1670	1670	1670
AlN 合計質量(B-1+B-2)(g)		350	330	350	350	350	380
A 成分 100 質量部に対する B 成分の質量部		2120	2000	2020	2020	2020	2050
(B-1)/(B-2)質量割合		2.5	2	2.5	2.5	2.5	1.5
熱伝導性粒子(B 成分)合計を 100 質量％としたとき	アルミナ合計質量%(X)	83.5	83.5	82.7	82.7	82.7	81.5
	B-3: アルミナ質量%,D50=60-80μm	56.6	55.0	54.5	54.5	54.5	53.7
	B-4: アルミナ質量%,D50=60μm 未満	26.9	28.5	28.2	28.2	28.2	27.8
	AlN 合計質量%(Y)	16.5	16.5	17.3	17.3	17.3	18.5
	B-1:AlN 質量%, D50=20μm 未満	11.8	11.0	12.4	12.4	12.4	11.2
	B-2:AlN 質量%, D50=20μm 以上	4.7	5.5	5.0	5.0	5.0	7.3
	X/Y	5.1	5.1	4.8	4.8	4.8	4.4
熱伝導率(W/mK)		8.2	8.2	8.2	8.3	8.3	7.4
50%圧縮荷重値(瞬間)(N)		849	802	830	868	886	860
50%圧縮荷重値(定常)(N)		221	192	220	239	252	222
硬化前脱泡後可塑度		45	40	42	43	43	42
成型加工性		可能	可能	可能	可能	可能	可能

[0093] [表2]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
A:2 液硬化型ｼﾘｺｰﾝﾎﾟﾘﾏｰ(g)		100	100	100	100	100	100	100
シランカップリング剤(g)		4	4	4	4	4	4	4
白金族系金属触媒(g)		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
B-1:丸み状 AlN,D50=5μm(g)		–	–	–	–	–	–	–
B-1:不定形 AlN,D50=15μm(g)		370	100	–	–	270	130	150
B-2:丸み状 AlN,D50=20μm(g)		–	250	400	–	100	40	100
B-2:丸み状 AlN,D50=30μm(g)		–	–	–	200	–	–	–
B-2:丸み状 AlN,D50=70μm(g)		–	–	–	200	–	–	–
B-2:丸み状 AlN,D50=100μm(g)		–	–	–	–	–	–	–
B-3:球状アルミナ,D50=75μm(g)		1100	1100	1100	1100	800	1000	1400
B-4:不定形ｱﾙﾐﾅ,D50=0.3μm(g)		290	290	–	290	290	290	290
B-4:不定形ｱﾙﾐﾅ,D50=0.7μm(g)		–	–	300	–	–	–	–
B-4:不定形ｱﾙﾐﾅ,D50=4.0μm(g)		280	–	290	280	280	280	280
B-4:不定形ｱﾙﾐﾅ,D50=2.2μm(g)		–	280	–	–	–	–	–
熱伝導性粒子(B 成分)合計質量(B-1+B-2+B-3+B-4) (g)		2040	2020	2090	2070	1740	1740	2220
熱伝導性樹脂組成物合計質量(g)		2144.5	2124.5	2194.	2174.5	1844.5	1844.5	2324.5
アルミナ(B-3+B-4)合計質量(g)		1670	1670	1690	1670	1370	1570	1970
AlN(B-1+B-2)合計質量(g)		370	350	400	400	370	170	250
A 成分 100 質量部に対する B 成分の質量部		2040	2020	2090	2070	1740	1740	2220
(B-1)/(B-2)質量割合		–	0.4	0	0	2.7	3.3	1.5
熱伝導性粒子(B 成分)合計を 100 質量%としたとき	ｱﾙﾐﾅ合計質量%(X)	81.9	82.7	80.9	80.7	78.7	90.2	88.7
	B-3: ｱﾙﾐﾅ質量%, D50=60-80μm	53.9	54.5	52.6	53.1	46.0	57.5	63.1
	B-4: ｱﾙﾐﾅ質量%, D50=60μm 未満	28.0	28.2	28.3	27.6	32.7	32.7	25.6
	AlN 合計質量%(Y)	18.1	17.3	19.1	19.3	21.3	9.8	11.3
	B-1:AlN 質量%, D50=20μm 未満	18.1	5.0	0	0	15.5	7.5	6.8
	B-2:AlN 質量%, D50=20μm 以上	0	12.4	19.1	19.3	5.7	2.3	4.5
	X/Y	4.5	4.8	4.2	4.2	3.7	9.3	7.8
熱伝導率(W/mK)		7.3	7.5	7.5	*1	6.5	6.4	*1
50%圧縮荷重値(瞬間)(N)		1325	2928	4279	*1	500	668	*1
50%圧縮荷重値(定常)(N)		597	1376	2280	*1	167	259	*1
硬化前脱泡後可塑度		65	99	99	*1	36	35	*1
成型加工性		NG	NG	NG	NG	可能	可能	NG

*1 はコンパウンド化できず、測定不可。

[0094] 表１および２から次のことが分かる。

（１）実施例１～５は比較例１～６に比べて熱伝導性シートの熱伝導率が高く、かつ圧縮荷重及び硬化前脱泡後可塑度が低い。

（２）比較例１（Ｂ－１成分のみ）と比較すると、実施例１、２は粒径の異なる２種の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分、Ｂ－２成分）を組み合わせることで熱伝導性シートの荷重値が下がる。

（３）実施例１、３、４、５では粒径が大きい（Ｂ－２）成分を種々変更しても熱伝導性シートの荷重値には影響がない。

（４）比較例１、３、４に示すように（Ｂ－１）成分または（Ｂ－２）成分のいずれかを含まないか、２種類の（Ｂ－２）成分を含む場合、熱伝導性シートの荷重値が高いか、もしくは熱伝導性組成物への混合が不可となる。

（５）比較例５（（Ｂ－３）成分の含有量が規定の範囲以下）、比較例６（（Ｂ－１）成分の含有量が規定の範囲以下）は熱伝導性シートの熱伝導率および荷重値が共に低くなる。

[0095] 本発明の熱伝導性組成物及び熱伝導性シートは、電気・電子部品等の発熱部と放熱体の間に介在させる放熱シート：ＴＩＭ(Thermal Interface Material)として好適である。

符号の説明

[0096] １　圧縮荷重測定装置

２　試料台

３，５　アルミプレート

４　熱伝導性シート試料

６　ロードセル

１１　熱伝導率測定装置

１２　センサ

１３ａ，１３ｂ　熱伝導性シート試料

１４　センサの先端

１５　印加電流用電極

１６　抵抗値用電極（温度測定用電極）

３０　放熱構造体

３１ａ，３１ｂ　熱伝導性シート

３２　ヒートスプレッダ

３２ｂ　ヒートスプレッダ側壁

３３　電子部品

３４　配線基板

３５　ヒートシンク

請求の範囲

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

前記マトリックス樹脂（Ａ成分）１００質量部に対して前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は１５００～３０００質量部配合されており、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は下記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、Ｂ－３成分、およびＢ－４成分を含み、

前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）は、前記熱伝導性粒子（Ｂ成分）合計を１００質量％としたとき、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ未満の窒化アルミニウム（Ｂ－１成分）を１０～２０質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が２０μｍ以上の窒化アルミニウム（Ｂ－２成分）を３～９質量％、

Ｄ５０（メジアン径）が６０～８０μｍのアルミナ（Ｂ－３成分）を５０～６０質量％、および

Ｄ５０（メジアン径）が６０μｍ未満のアルミナ（Ｂ－４成分）を１１～３７質量％含み、

前記Ｂ－１成分とＢ－２成分の配合比率（Ｂ－１）／（Ｂ－２）が質量割合で１．２～３である熱伝導性組成物。

[請求項2] 前記熱伝導性組成物の硬化物の熱伝導率は７Ｗ／ｍ・Ｋ以上である請求項１に記載の熱伝導性組成物。

[請求項3] 前記熱伝導性組成物の硬化物は、ＡＳＴＭ Ｄ５７５-９１:２０１２に準じた測定で、直径２８．６ｍｍ、厚さ２ｍｍの５０％圧縮時の瞬間荷重値が１０００Ｎ以下である請求項１または２に記載の熱伝導性組成物。

[請求項4] 前記熱伝導性組成物の硬化前の脱泡後の可塑度が６０以下である請求項１～３のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項5] 前記マトリックス樹脂は、付加硬化型シリコーンポリマー、過酸化

物硬化型シリコーンポリマー及び縮合型シリコーンポリマーから選ばれる少なくとも一つである請求項１～４のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項6] 前記マトリックス樹脂１００質量部に対し、さらにシランカップリング剤が０．１～１０質量部配合されている請求項１～５のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

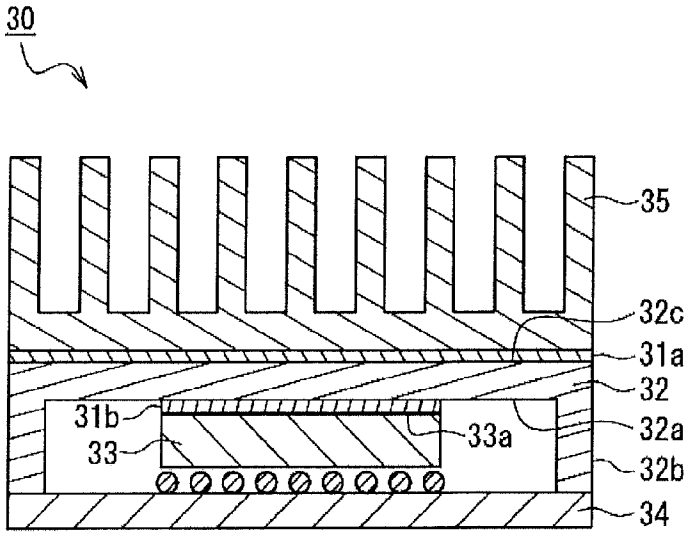
[請求項7] 前記Ｂ－１成分、Ｂ－２成分、およびＢ－４成分は丸み状又は不定形破砕状粒子であり、前記Ｂ－３成分は球状である請求項１～６のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物を含み、シートに成形されている熱伝導性シート。

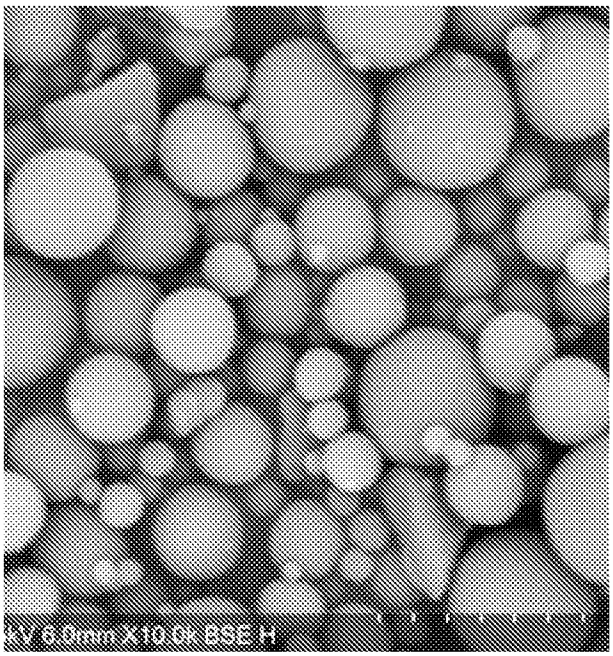
[請求項9] 前記熱伝導性シートの厚みは０．２～１０ｍｍの範囲である請求項８に記載の熱伝導性シート。

[請求項10] 請求項１～７のいずれか一項に記載の熱伝導性組成物を真空脱泡し、圧延し、シート成形した後に加熱硬化させて熱伝導性シートを製造する工程を含む熱伝導性シートの製造方法。

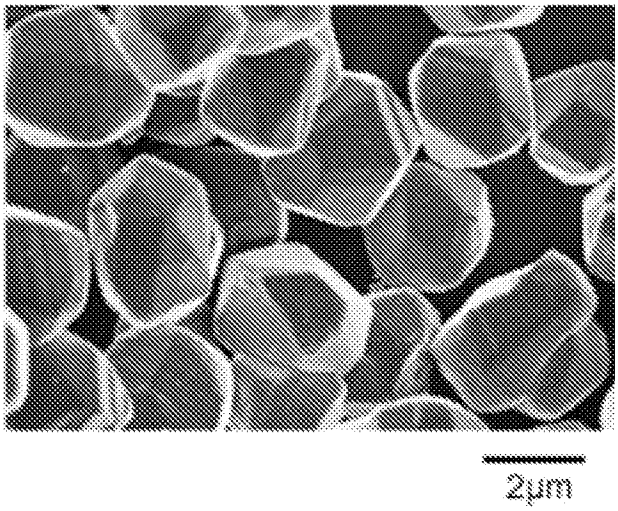
[図1]



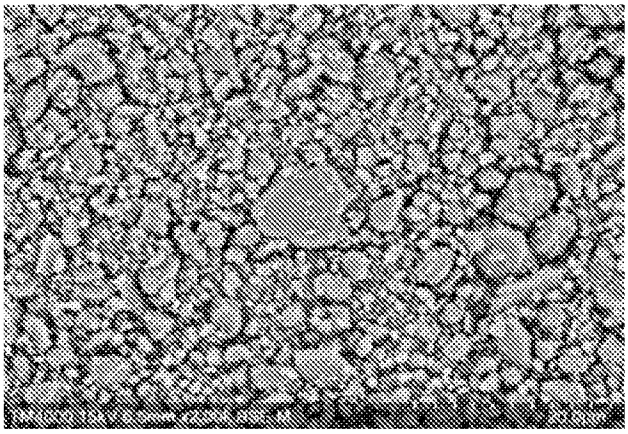
[図2]



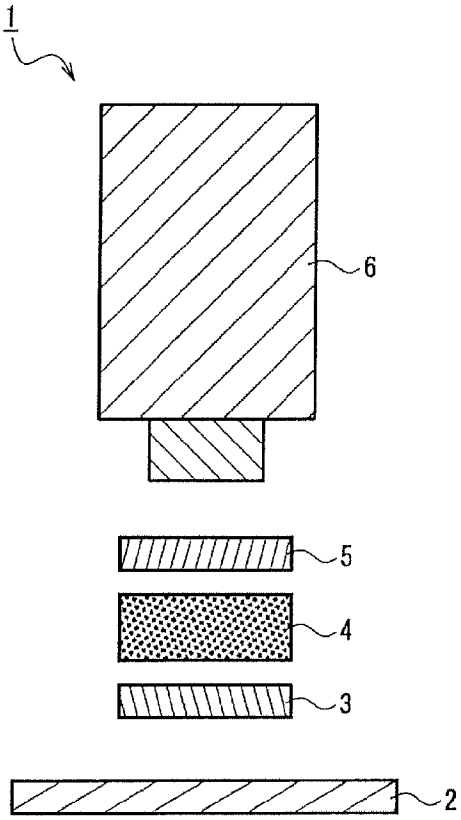
[図3]



[図4]

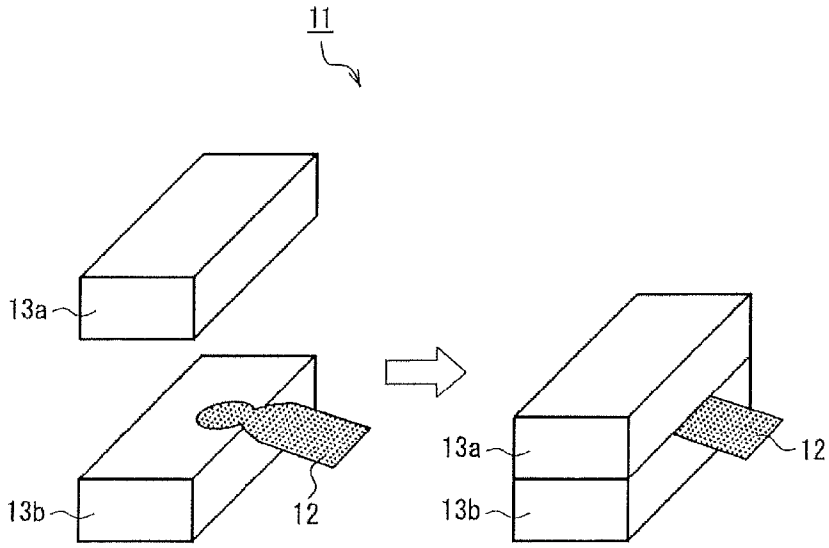


[図5]

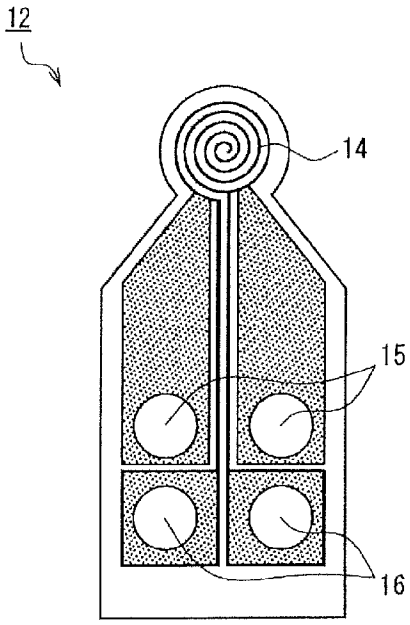


[図6]

A



B



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/007512

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 101/00(2006.01)i; ***C08J 5/18***(2006.01)i; ***C08K 3/22***(2006.01)i; ***C08K 3/28***(2006.01)i; ***C08K 5/541***(2006.01)i; ***C08K 7/18***(2006.01)i; ***C08L 83/04***(2006.01)i; ***C09K 5/14***(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K3/22; C08K3/28; C08L83/04; C08K5/541; C08K7/18; C09K5/14 E; C08J5/18 CFH

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L101/00; C08J5/18; C08K3/22; C08K3/28; C08K5/541; C08K7/18; C08L83/04; C09K5/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2022/215510 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 13 October 2022 (2022-10-13)	1-10
A	WO 2021/256391 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 23 December 2021 (2021-12-23)	1-10
A	JP 2020-090584 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 11 June 2020 (2020-06-11)	1-10
A	JP 2020-073626 A (SHOWA DENKO K.K.) 14 May 2020 (2020-05-14)	1-10
A	WO 2018/074247 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 26 April 2018 (2018-04-26)	1-10
A	WO 2020/116057 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 11 June 2020 (2020-06-11)	1-10
A	WO 2022/249754 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 01 December 2022 (2022-12-01)	1-10

☑ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"D" document cited by the applicant in the international application
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
26 March 2024	**09 April 2024**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/007512

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2017/203924 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 30 November 2017 (2017-11-30)	1-10
A	JP 2023-026805 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 01 March 2023 (2023-03-01)	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/007512

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2022/215510 A1	13 October 2022	CN 117203284 A	
		KR 10-2023-0169195 A	
WO 2021/256391 A1	23 December 2021	US 2023/0227708 A1	
		EP 4169978 A1	
		KR 10-2023-0028320 A	
		CN 115943186 A	
JP 2020-090584 A	11 June 2020	US 2022/0220354 A1	
		EP 3892685 A1	
		CN 113166542 A	
		KR 10-2021-0098991 A	
JP 2020-073626 A	14 May 2020	US 2022/0119619 A1	
		EP 3911697 A1	
		CN 113544214 A	
WO 2018/074247 A1	26 April 2018	US 2019/0256756 A1	
		EP 3530702 A1	
		CN 109844030 A	
		KR 10-2019-0069495 A	
WO 2020/116057 A1	11 June 2020	US 2022/0220354 A1	
		EP 3892685 A1	
		CN 113166542 A	
		KR 10-2021-0098991 A	
WO 2022/249754 A1	01 December 2022	TW 202311489 A	
WO 2017/203924 A1	30 November 2017	US 2019/0292349 A1	
		EP 3467044 A1	
		CN 109312159 A	
		KR 10-2019-0011743 A	
JP 2023-026805 A	01 March 2023	TW 202313856 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/007512

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 101/00(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 3/28(2006.01)i; C08K 5/541(2006.01)i; C08K 7/18(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K3/22; C08K3/28; C08L83/04; C08K5/541; C08K7/18; C09K5/14 E; C08J5/18 CFH

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L101/00; C08J5/18; C08K3/22; C08K3/28; C08K5/541; C08K7/18; C08L83/04; C09K5/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

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	WO 2022/215510 A1 (東レ株式会社) 13.10.2022 (2022-10-13)	1-10
A	WO 2021/256391 A1 (信越化学工業株式会社) 23.12.2021 (2021-12-23)	1-10
A	JP 2020-090584 A (信越化学工業株式会社) 11.06.2020 (2020-06-11)	1-10
A	JP 2020-073626 A (昭和電工株式会社) 14.05.2020 (2020-05-14)	1-10
A	WO 2018/074247 A1 (信越化学工業株式会社) 26.04.2018 (2018-04-26)	1-10
A	WO 2020/116057 A1 (信越化学工業株式会社) 11.06.2020 (2020-06-11)	1-10
A	WO 2022/249754 A1 (信越化学工業株式会社) 01.12.2022 (2022-12-01)	1-10
A	WO 2017/203924 A1 (信越化学工業株式会社) 30.11.2017 (2017-11-30)	1-10
A	JP 2023-026805 A (信越化学工業株式会社) 01.03.2023 (2023-03-01)	1-10

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊ 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
26.03.2024	09.04.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
中落　臣諭 4J 1202

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/007512

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2022/215510 A1	13.10.2022	CN 117203284 A	
		KR 10-2023-0169195 A	
WO 2021/256391 A1	23.12.2021	US 2023/0227708 A1	
		EP 4169978 A1	
		KR 10-2023-0028320 A	
		CN 115943186 A	
JP 2020-090584 A	11.06.2020	US 2022/0220354 A1	
		EP 3892685 A1	
		CN 113166542 A	
		KR 10-2021-0098991 A	
JP 2020-073626 A	14.05.2020	US 2022/0119619 A1	
		EP 3911697 A1	
		CN 113544214 A	
WO 2018/074247 A1	26.04.2018	US 2019/0256756 A1	
		EP 3530702 A1	
		CN 109844030 A	
		KR 10-2019-0069495 A	
WO 2020/116057 A1	11.06.2020	US 2022/0220354 A1	
		EP 3892685 A1	
		CN 113166542 A	
		KR 10-2021-0098991 A	
WO 2022/249754 A1	01.12.2022	TW 202311489 A	
WO 2017/203924 A1	30.11.2017	US 2019/0292349 A1	
		EP 3467044 A1	
		CN 109312159 A	
		KR 10-2019-0011743 A	
JP 2023-026805 A	01.03.2023	TW 202313856 A	