

(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
2020年12月30日(30.12.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/261958 A1

- (51) 国際特許分類:
C08K 5/541 (2006.01) C08K 3/105 (2018.01)
C08K 7/18 (2006.01) C08K 3/40 (2006.01)
C08L 83/07 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/022510
- (22) 国際出願日: 2020年6月8日(08.06.2020)
- (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 2019-116127 2019年6月24日(24.06.2019) JP
- (71) 出願人: 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 岩田 充弘 (IWATA Mitsuhiro); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内 Gunma (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人英明国際特許事務所 (PATENT PROFESSIONAL CORPORATION EI-MEI PATENT OFFICE); 〒1040061 東京都

中央区銀座二丁目16番12号 銀座大塚ビル2階 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, 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,

(54) Title: HIGHLY THERMALLY-CONDUCTIVE SILICONE COMPOSITION AND CURED PRODUCT THEREOF

(54) 発明の名称: 高熱伝導性シリコン組成物及びその硬化物

(57) Abstract: This highly thermally-conductive silicone composition is obtained by blending, as thermally-conductive fillers at a specific ratio and in specific amounts in (A) a silicone composition containing an organopolysiloxane as a main agent, (B) a spherical magnesium oxide powder having an average sphericity of 0.8 or more, an average particle size of 80-150 μm, and a purity of 98 mass% or more, and (C) (C-I) a spherical aluminum oxide powder which has an average sphericity of 0.8 or more and an average particle size of 7-60 μm, and in which the proportion of rough particles of 96-150μm is 0.1-30 mass% in the entire component (C-I) in a laser diffraction particle size distribution, and (C-II) a spherical or irregularly-shaped aluminum oxide powder having an average particle size of 0.1-4 μm. The thermal conductivity of the composition is 7.0 W/m·K or more, and the viscosity of the composition at 25°C is 30-800 Pa·s. This highly thermally-conductive silicone composition has excellent electrical insulating properties and thermal conductivity.

(57) 要約: (A) オルガノポリシロキサンを主剤とするシリコン組成物に、熱伝導性充填材として、(B) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径80~150μmであり、純度が98質量%以上の球状酸化マグネシウム粉末と、(C) (C-I) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径7~60μmであり、かつレーザー回折型粒度分布で96~150μmの粗粒子の割合が(C-I)成分全体の0.1~30質量%である球状酸化アルミニウム粉末、及び(C-II)平均粒子径0.1~4μmの球状又は不定形状酸化アルミニウム粉末とを、特定比率で、特定量配合した、組成物の熱伝導率が7.0W/m·K以上、組成物の25°Cの粘度が30~800Pa·sである高熱伝導性シリコン組成物は、絶縁性と熱伝導性に優れる。

WO 2020/261958 A1

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：高熱伝導性シリコン組成物及びその硬化物

技術分野

[0001] 本発明は、絶縁性及び熱伝導性に優れたシリコン組成物に関するものであり、特に電子部品用放熱部材として使用した際に、パワーデバイス、トランジスタ、サイリスタ、CPU（中央処理装置）等の発熱性電子部品を損傷させることなく、電子機器に組み込むことができる、絶縁性に優れた高熱伝導性シリコン組成物及びその硬化物に関するものである。

背景技術

[0002] パワーデバイス、トランジスタ、サイリスタ、CPU等の発熱性電子部品においては、使用時に発生する熱を如何に除去するかが重要な問題となっている。従来、このような除熱方法としては、発熱性電子部品を電気絶縁性の放熱シートを介して放熱フィンや金属板に取り付け、熱を逃がすことが一般的に行われており、その放熱シートとしてはシリコン樹脂に熱伝導性フィラーを分散させたものが使用されている。

[0003] 近年、電子部品内の回路の高集積化に伴いその発熱量も大きくなっており、従来にも増して高い熱伝導性を有する材料が求められてきている。熱伝導性材料の熱伝導性を向上させるためには、これまで酸化アルミニウム（アルミナ）粉末、窒化アルミニウム粉末といった高い熱伝導性を示すフィラーをマトリックス樹脂へ含有する手法が一般的であった（特許文献1～4：特開2005-162555号公報、特開2003-342021号公報、特開2002-280498号公報、特開2005-209765号公報）。

[0004] そこで熱伝導率を向上させるために、平均球形度、水酸基量が規定され、平均粒子径が10～50 μ mの球状酸化アルミニウム粉末と平均粒子径が0.3～1 μ mの酸化アルミニウム粉末との配合割合と体積比が規定された高熱伝導性樹脂組成物の手法が開示されているが、球状酸化アルミニウム粉末の平均粒子径が最大で50 μ mでは、熱伝導率的に不十分な問題があった（

特許文献5：特許第5755977号公報）。

[0005] また、平均粒径が0.1～100 μm であるアルミナ粉末を使用した熱伝導性シリコン組成物が提案されているものの、具体的な熱伝導率や粘度の規定はされていない。さらに、平均粒径が5～50 μm （ただし5 μm を含まない）の球状アルミナ粉末と平均粒径が0.1～5 μm の球状もしくは不定形状のアルミナ粉末で規定され、それぞれの酸化アルミニウムの配合割合と重量比が規定された熱伝導性シリコン組成物が開示されているものの、これも特許文献5と同様、平均粒径が大きい球状アルミナの平均球形度や水酸基量の規定がなく、高熱伝導率化させるためには不十分であるという問題があった（特許文献6：国際公開第2002/092693号）

[0006] 酸化アルミニウム以外の熱伝導性充填材としては、例えばアルミニウム、銅、銀、窒化ホウ素、窒化アルミニウムなどが挙げられる。それらは熱性能が高いものの、コストの観点からは不利となる。さらに、アルミニウムや銅、銀などの金属粉末を用いると熱伝導性シリコン組成物及び硬化物の絶縁性が低下してしまうという問題があった。

[0007] 一方、酸化マグネシウムの熱伝導率は42～60W/m \cdot Kであり、アルミナの26～36W/m \cdot Kに比べて高い点で注目に値する。また、酸化マグネシウムのモース硬度は6であり、比重も3.65とアルミナより軽いいため、熱伝導性シリコン組成物及び硬化物の軽量化が可能となる。しかしながら、酸化マグネシウムは吸湿性が高いという欠点をもっており、特定の水酸化マグネシウムを1,100～1,600 $^{\circ}\text{C}$ で焼成して得られる酸化マグネシウムを配合した熱伝導性シリコンゴム組成物が開示されているが、高い吸湿性を有する結果、強いアルカリ性を示す等の理由で、シリコンゴムのクラッキングが生じやすい問題があった（特許文献7：特開平5-239358号公報）。

[0008] そこで、酸化マグネシウムの表面をシラザンで処理することで得られる、耐湿性に優れた熱伝導性シリコン樹脂組成物が開示されている。しかしながら、酸化マグネシウムの粒径が1 μm と非常に小さいため、充填量をあげ

ても熱伝導率の向上が見込めず、また、粒径のより大きい粉を用いた際、この方法が適切な有効性を示すかは検証されていなかった（特許文献8：特開平7-292251号公報）。

[0009] また、球状酸化マグネシウムと粒状アルミナを組み合わせることで成形性を向上させた熱伝導性放熱シートが開示されているが、酸化マグネシウムは熱伝導性充填材の総重量に対して、多くて20質量%程しか使用されておらず、アルミナを多く含有することによる比重の増加、混練時における反応釜の摩耗等の課題は解消されていない（特許文献9：特開平8-88488号公報）。

[0010] ここで、表面処理した酸化マグネシウムとアルミナを併用した系は、上記問題を解決するのに有効であるといえる。また、酸化マグネシウムの表面を疎水化処理することによって耐湿性が改善され、高温下での使用にも適した熱伝導性シリコン樹脂組成物を得ることができる。さらに、酸化マグネシウムとアルミナの総質量のうち、酸化マグネシウムを体積比で50%以上用いることによって、反応釜の磨耗を抑えることができ、さらに熱伝導性充填材としてアルミナのみを用いるよりも、同じ充填量であればアルミナと酸化マグネシウムを併用した場合の方が比重は軽くなるので、熱伝導性シリコン組成物中の熱伝導性充填材の沈降を抑えることができる。

[0011] そこで、前述課題を解決した酸化マグネシウムとアルミナを併用した熱伝導性シリコン組成物が提案されているが、酸化マグネシウムの形状や純度に規定はなく、平均粒径が80 μ m未満の酸化マグネシウムを使用する限り、熱伝導率的にも不十分であった（特許文献10：特許第6075261号公報）。

先行技術文献

特許文献

[0012] 特許文献1：特開2005-162555号公報

特許文献2：特開2003-342021号公報

特許文献3：特開2002-280498号公報

特許文献4：特開2005-209765号公報

特許文献5：特許第5755977号公報

特許文献6：国際公開第2002/092693号

特許文献7：特開平5-239358号公報

特許文献8：特開平7-292251号公報

特許文献9：特開平8-88488号公報

特許文献10：特許第6075261号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0013] 本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、絶縁性と熱伝導性に優れた高熱伝導性シリコン組成物を提供すること、特に電子部品用放熱部材として好適な高熱伝導性シリコン組成物及びその硬化物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討した結果、(A) オルガノポリシロキサンを主剤とするシリコン組成物に、熱伝導性充填材として、(B) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径80~150 μ mであり、純度が98質量%以上の球状酸化マグネシウム粉末と、(C) (C-1) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径7~60 μ mであり、かつレーザー回折型粒度分布で96~150 μ mの粗粒子の割合が(C-1)成分全体の0.1~30質量%である球状酸化アルミニウム粉末、及び(C-1-1)平均粒子径0.1~4 μ mの球状又は不定形状酸化アルミニウム粉末とを、特定比率で、特定量配合することで、上記課題を解決でき、絶縁性と熱伝導性に優れ、取扱い性や作業性が良好となる高熱伝導性シリコン組成物を得ることができるとを見出した。さらに本組成物には、硬化剤を配合して硬化性の組成物とすることもできることを知見し、本発明をなすに至った。

[0015] 従って、本発明は、下記の高熱伝導性シリコン組成物及びその硬化物を提供する。

[1]. (A) オルガノポリシロキサン、
(B) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径80~150 μm であり、純度が98質量%以上の球状酸化マグネシウム粉末、
(C) (C-1) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径7~60 μm であり、かつレーザー回折型粒度分布で96~150 μm の粗粒子の割合が(C-1)成分全体の0.1~30質量%である球状酸化アルミニウム粉末、及び(C-11)平均粒子径0.1~4 μm の球状又は不定形状酸化アルミニウム粉末

を含む高熱伝導性シリコーン組成物であって、

上記(C-1)成分と(C-11)成分の配合割合体積比((C-1):(C-11))が2.0:8.0~8.0:2.0で、上記(B)成分と(C)成分の配合割合体積比((B):(C))が5.0:5.0~9.5:0.5であり、かつ(B)成分と(C)成分との合計量が組成物中80~90体積%であり、組成物の熱伝導率がISO 22007-2準拠のホットディスク法において、7.0W/m \cdot K以上、組成物の25 $^{\circ}\text{C}$ における粘度がスパイラル粘度計による回転数10rpm測定時において、30~800Pa \cdot sである高熱伝導性シリコーン組成物。

[2]. (A)成分を組成物中1~6質量%含む[1]記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

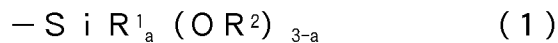
[3]. (A)成分として(A-1)1分子中に平均0.1個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた付加反応硬化型、(A)成分として(A-11)1分子中に少なくとも2個のシラノール基もしくはケイ素原子結合加水分解性基を有するオルガノポリシロキサンを用いた縮合反応硬化型、又は(A)成分として(A-111)1分子中に少なくとも1個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた有機過酸化物硬化型である[1]又は[2]記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[4]. さらに、(D)表面処理剤を含む[1]~[3]のいずれかに記載

の高熱伝導性シリコーン組成物。

[5] . (D) 成分として、(D-1) シランカップリング剤を (B) 成分及び (C) 成分の合計 100 質量部に対して 0.1 ~ 5 質量部含有する [4] 記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[6] . (A) 成分として、(A-1) 1 分子中に平均 0.1 個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサン又は (A-1-1) 1 分子中に少なくとも 1 個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用い、(D) 成分として、(D-1-1) 下記一般式 (1)



(式中、R¹は独立に非置換又は置換の 1 価炭化水素基であり、R²は独立にアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基又はアシル基であり、a は 0、1 又は 2 である。)

で表されるシリル基を 1 分子中に少なくとも 1 個含有し、25℃での粘度が 0.01 ~ 30 Pa · s であるオルガノポリシロキサンを (A-1) 又は (A-1-1) 成分 100 質量部に対して 5 ~ 900 質量部含有する [4] 記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[7] . さらに、(E) 中心粒子径の最大値が 160 μm 以上であり、SiO₂含有量が 50 質量%以上の球状ガラスビーズ又は不定形ガラスを、組成物の全量中 0.01 ~ 10 質量%含む [1] ~ [6] のいずれかに記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[8] . [3] ~ [7] のいずれかに記載の高熱伝導性シリコーン組成物の硬化物。

発明の効果

[0016] 本発明によれば、絶縁性と熱伝導性、さらには耐湿性に優れた高熱伝導性シリコーン組成物を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明について詳細に説明する。なお、「高熱伝導性シリコーン組

成物」を「シリコーン組成物」と略す場合がある。

[0018] [(A)成分]

(A)成分のオルガノポリシロキサンは、本発明のシリコーン組成物の主剤である。このオルガノポリシロキサン中のケイ素原子に結合している基としては、非置換又は置換の、好ましくは炭素数1~20、より好ましくは1~6の1価炭化水素基が好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基、ノナデシル基、エイコシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、tert-ブチル基、イソブチル基、2-メチルウンデシル基、1-ヘキシルヘプチル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロドデシル基等の環状アルキル基；ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、2-(2,4,6-トリメチルフェニル)プロピル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフルオロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が挙げられ、好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、ビニル基、フェニル基である。

[0019] (A)成分のオルガノポリシロキサンの25℃における粘度は限定されないが、20~100,000 mPa·sの範囲内であることが好ましく、50~100,000 mPa·sがより好ましく、50~50,000 mPa·sがさらに好ましく、100~50,000 mPa·sが特に好ましい。粘度が低すぎると、シリコーン組成物の物理的特性が著しく低下するおそれがあり、粘度が高すぎると、シリコーン組成物の取扱作業性が著しく低下するおそれがある。なお、この粘度は、回転粘度計による測定値である（以下同様）。

[0020] (A)成分のオルガノポリシロキサンの分子構造は限定されず、例えば、

直鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、樹枝状（デンドリマー状）が挙げられ、好ましくは、直鎖状、一部分岐を有する直鎖状である。このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、これらの分子構造を有する単一の重合体、これらの分子構造からなる共重合体、又はこれらの重合体の混合物が挙げられる。

[0021] このような（A）成分のオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端メチルフェニルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチル（3，3，3-トリフルオロプロピル）ポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{CH}_3\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノシロキサンコポリマーが挙げられる。なお、縮合反応硬化型の組成物とする場合、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端トリメトキシシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメトキシシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端メチルジメトキシシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリエトキシシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメトキシシリルエチル基封鎖ジメチルポリシロキサンを用いることもできる。これらは

1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。

[0022] シリコーン組成物がヒドロシリル化反応により硬化する場合には、(A)成分の中でも、(A-1)1分子中に平均0.1個以上20個以下のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることが好ましく、1分子中に平均0.5個以上20個以下のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることがさらに好ましく、1分子中に平均0.8個以上20個以下のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることがより好ましい。これは、1分子中のケイ素原子結合アルケニル基の平均値が上記範囲の下限未満であると、得られるシリコーン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからである。このオルガノポリシロキサン中のケイ素原子結合アルケニル基としては、前記と同様のアルケニル基が例示され、好ましくはビニル基である。また、このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示され、好ましくは、アルキル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、フェニル基である。

[0023] シリコーン組成物が縮合反応により硬化する場合には、(A)成分の中でも、(A-11)1分子中に少なくとも2個のシラノール基もしくはケイ素原子結合加水分解性基を有するオルガノポリシロキサンを用いることが好ましい。このオルガノポリシロキサン中のケイ素原子結合加水分解性基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基等のアルコキシ基；ビニロキシ基、プロペノキシ基、イソプロペノキシ基、1-エチル-2-メチルビニルオキシ基等のアルケノキシ基；メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、メトキシプロポキシ基等のアルコキシアルコキシ基；アセトキシ基、オクタノイルオキシ基等のアシロキシ基；ジメチルケトオキシム基、メチルエチルケトオキシム基等のケトオキシム基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ブチルアミノ基等のアミノ基；ジメチルアミノキシ基、ジエチル

アミノキシ基等のアミノキシ基；N-メチルアセトアミド基、N-エチルアセトアミド基等のアミド基が挙げられる。また、このオルガノポリシロキサン中のシラノール基及びケイ素原子結合加水分解性基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示される。

[0024] シリコン組成物が有機過酸化物によるフリーラジカル反応により硬化する場合には、(A)成分のオルガノポリシロキサンは限定されないが、中でも、(A-111)1分子中に少なくとも1個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることが好ましい。このオルガノポリシロキサン中のケイ素原子結合アルケニル基としては、前記と同様のアルケニル基が例示され、好ましくはビニル基である。また、このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示され、アルキル基、アリール基が好ましく、メチル基、フェニル基がより好ましい。

[0025] (A)成分の配合量は、シリコン組成物中1~6質量%が好ましく、1~5.8質量%がより好ましい。(A)成分が少なすぎると得られる本組成物が高粘度となりすぎて取り扱いが困難になる場合があり、多すぎると本組成物の高熱伝導率化が困難な場合がある。

[0026] [(B)成分]

(B)成分は、平均球形度0.8以上で、平均粒子径80~150 μm であり、純度が98質量%以上の球状酸化マグネシウム粉末である。上記範囲を満たすのであれば、平均粒子径が異なる2種類以上の複数種を併用してもよい。

[0027] 酸化マグネシウム粉末の平均球形度は0.8以上であり、0.9以上であることが好ましい。平均球形度が0.8未満であると流動性が低下する場合があり、また、粒子同士の接触箇所が著しく多くなり、シート表面の凹凸が

大きくなって界面熱抵抗が増大し、熱伝導率が悪くなる傾向にある。

[0028] 本発明における平均球形度は、走査型電子顕微鏡にて撮影した粒子像を画像解析装置、例えば日本電子（株）製商品名「JSM-7500F」に取り込み、次のようにして測定することができる。すなわち、写真から粒子の投影面積（ X ）と周囲長（ Z ）を測定する。周囲長（ Z ）に対応する真円の面積を（ Y ）とすると、その粒子の球形度は X/Y として表示できる。そこで、試料粒子の周囲長（ Z ）と同一の周囲長をもつ真円を想定すると、 $Z = 2\pi r$ 、 $Y = \pi r^2$ であるから、 $Y = \pi \times (Z/2\pi)^2$ となり、個々の粒子の球形度は、球形度 $= X/Y = X \times 4\pi / Z^2$ として算出することができる。このようにして得られた任意の粒子100個の球形度を求め、その平均値を平均球形度とした（以下、同じ）。

[0029] 酸化マグネシウム粉末の平均粒子径は80～150 μm であり、好ましくは80～130 μm である。平均粒子径が小さすぎると本発明の高熱伝導率化の達成が困難になる傾向があり、大きすぎるとシート表面の凹凸が大きくなって界面熱抵抗が増大し熱伝導率が悪くなる場合がある。

[0030] 本発明における平均粒子径は、例えば（株）島津製作所製「レーザー回折式粒度分布測定装置SALD-2300」を用いて測定することができる体積基準の平均粒子径である。評価サンプルは、ガラスビーカーに50ccの純水と測定する熱伝導性粉末を5g添加して、スパチュラを用いて攪拌し、その後超音波洗浄機で10分間、分散処理を行う。分散処理を行った熱伝導性材料の粉末の溶液をスポイトにて、装置のサンプル部に一滴ずつ添加して、吸光度が測定可能になるまで安定するのを待つ。このようにして吸光度が安定になった時点で測定を行う。レーザー回折式粒度分布測定装置では、センサで検出した粒子による回折／散乱光の光強度分布のデータから粒度分布を計算する。平均粒子径は測定される粒子径の値に相対粒子量（差分％）を掛けて、相対粒子量の合計（100％）で割って求められる。なお、平均粒子径は粒子の平均直径である（以下、同じ）。

[0031] 酸化マグネシウム粉末の結晶構造は立方晶（塩化ナトリウム型構造）であ

り、また比重は3.4以上が望ましい。比重が3.4未満であると、粒子内部に存在する空孔と低結晶相の割合が多くなるため、熱伝導率を高めることが困難となる場合がある。酸化マグネシウム粉末の粒度調整は、分級・混合操作によって行うことができる。

[0032] 酸化マグネシウム粉末としての純度は98質量%以上であり、より好ましくは99質量%以上である。酸化マグネシウム粉末としての純度が98質量%を下回ると、得られる熱伝導率が悪くなる傾向にある。なお、酸化マグネシウムの不純物としては酸化カルシウム、二酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化鉄等が挙げられる。

本発明における純度は、ICP発光分析法により測定することができる（以下、同じ）。

[0033] また、後述する（D）成分の表面処理剤により（B）成分の球状酸化マグネシウム粉末表面を処理することが好ましく、これにより本発明の高熱伝導性シリコン組成物の耐湿性はさらに向上する。

[0034] （B）成分の配合量は、（A）成分100質量部に対して3,400~6,200質量部であることが好ましく、3,400~6,000質量部であることがより好ましい。（B）成分が多すぎると本発明の組成物を混練することが不可となる場合があり、少なすぎると本発明の高熱伝導率化の達成が困難になる場合がある。

[0035] [（C）成分]

（C）成分は酸化アルミニウム粉末であり、下記（C-1）及び（C-1）成分を含有するものである。

[0036] （C-1）成分

（C-1）成分は、平均球形度0.8以上で、平均粒子径7~60 μ mであり、かつレーザー回折型粒度分布で96~150 μ mの粗粒子の割合が（C-1）成分全体の0.1~30質量%である球状酸化アルミニウム粉末である。本発明を損なわない範囲で、1種単独でも、平均粒子径が異なる2種類以上の複数種を併用してもよい。

[0037] (C-1)成分の平均球形度は0.8以上であり、0.9以上であることが好ましい。平均球形度が0.8未満であると流動性が低下する場合があります、また、粒子同士の接触箇所が著しく多くなり、シート表面の凹凸が大きくなって界面熱抵抗が増大し、熱伝導率が悪くなる場合がある。

[0038] (C-1)成分の平均粒子径は7~60 μm であり、好ましくは9~50 μm である。平均粒子径が7 μm 未満では、後述する(C-11)成分の平均粒子径と重なることから、粒子同士の接触箇所が少なくなり、粒子間接触熱抵抗の増大により熱伝導率が悪くなる傾向にあり、(C-1)成分を添加する効果を見出すことができない。また、平均粒子径が60 μm を超えると、粒子同士の接触箇所が著しく多くなり界面熱抵抗が増大し熱伝導率が悪くなる傾向にある。

[0039] (C-1)成分のレーザー回折型粒度分布による96~150 μm の粗粒子の割合は、(C-1)成分全体の0.1~30質量%であり、好ましくは0.1~20質量%である。粗粒子の割合が多すぎると粒子同士の接触箇所が著しく多くなって界面熱抵抗が増大し、熱伝導率が悪くなる場合があり、少なすぎると本発明の高熱伝導率化の達成が困難になる場合がある。

[0040] (C-1)成分の配合量は、(A)成分100質量部に対して380~2,700質量部であることが好ましく、380~2,500質量部であることがより好ましい。(C-1)成分が多すぎると本組成物の流動性が低下する場合があります、少なすぎると本発明の高熱伝導率化の達成が困難になる場合がある。

[0041] (C-11)成分

(C-11)成分は、平均粒子径0.1~4 μm の酸化アルミニウム粉末であり、球状でも不定形状でもよい。なお、球状以外のものが不定形状である。本発明を損なわない範囲で、1種単独でも、平均粒子径が異なる2種類以上の複数種を併用してもよい。

[0042] (C-11)成分の平均粒子径は0.1~4 μm であり、好ましくは0.5~2 μm である。平均粒子径が0.1 μm 未満では、粒子同士の接触箇所

が少なくなり、粒子間接触熱抵抗の増大により熱伝導率が悪くなる傾向にある。また、平均粒子径が4 μm 超であると、前述の(C-1)成分の平均粒子径と重なることから、(C-11)成分を添加する効果を見出すことができない。なお、(C-11)成分が球状の場合、(B)成分と同様、平均球形度は0.8以上であることが好ましい。

[0043] (C-11)成分の配合量は、(A)成分100質量部に対して380~2,700質量部であることが好ましく、380~2,500質量部であることがより好ましい。(C-11)成分が多すぎると本組成物の流動性が低下する場合があります、少なすぎると本組成物の流動性が低下する場合があります。

[0044] (C)成分である酸化アルミニウム粉末の結晶構造は、単結晶体、多結晶体のいずれでもよいが、結晶相は高熱伝導性の点から α 相が望ましく、また比重は3.7以上が望ましい。比重が3.7未満であると、粒子内部に存在する空孔と低結晶相の割合が多くなるため、熱伝導率を高めることが困難となる。酸化アルミニウム粉末の粒度調整は、分級・混合操作によって行うことができる。

[0045] また、後述する(D)成分の表面処理剤により(C)成分の酸化アルミニウム粉末表面を処理することが好ましく、これにより本発明の高熱伝導性シリコン組成物の粘度は下がる傾向にある。

[0046] (C-1)成分と(C-11)成分の配合割合体積比((C-1):(C-11))は、2.0:8.0~8.0:2.0であり、3:7~7:3であることが好ましく、4:6~6:4であることがより好ましい。(C-1)成分の割合が体積比で2/10より小さくなると、熱伝導性フィラー((B)及び(C)成分である。以下、同じ)の充填性が悪くなる傾向にある。一方、(C-1)成分の割合が体積比で8/10より大きくなると、熱伝導性フィラーが緻密に充填し難くなり、熱伝導率が低下する傾向にある。

[0047] 上記(B)成分と(C)成分の配合割合体積比((B):(C))は、5.0:5.0~9.5:0.5であり、5.0:5.0~9:1であることが好ましく、5.2:4.8~9.0:1.0であることがより好ましい。

(B) 成分の割合が体積比で5 / 10より小さくなると、シリコーン組成物の熱伝導性が不十分となる場合がある。一方、(B) 成分の割合が体積比で9.5 / 10より大きくなると、熱伝導性フィラーの充填が困難となる。

[0048] (B) 成分と(C) 成分との合計配合量は、シリコーン組成物中80~90体積%であり、80~85体積%が好ましい。配合量が80体積%未満では、シリコーン組成物の熱伝導性が不十分となる場合があり、90体積%を超えると、熱伝導性フィラーの充填が困難となる。

[0049] [(D) 成分]

本発明においては、さらに後述する(D) 表面処理剤を含み、(B) 成分及び(C) 成分が(D) 表面処理剤で表面処理されていることが好ましい。

(D) 表面処理剤としては、下記(D-1) 及び/又は(D-11) 成分を用いることが好ましい。

[0050] (D-1) 成分

(D-1) 成分はシランカップリング剤であり、シランカップリング剤としては、ビニル系シランカップリング剤、エポキシ系シランカップリング剤、アクリル系シランカップリング剤、並びに長鎖アルキル系シランカップリング剤等が挙げられ、1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。中でも、長鎖アルキル系シランカップリング剤が好ましく、デシルトリメトキシシランがより好ましい。

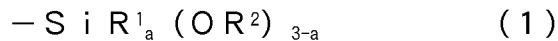
[0051] (D-1) 成分による(B) 成分、(C) 成分の表面処理方法としては、流体ノズルを用いた噴霧方式、せん断力のある攪拌方式、ボールミル、ミキサ等の乾式法、水系又は有機溶剤系等の湿式法を採用することができる。攪拌式は、球状酸化マグネシウム粉末、及び酸化アルミニウム粉末の破壊が起こらない程度にして行う。乾式法における系内温度又は処理後の乾燥温度は、表面処理剤の種類に応じ、表面処理剤の揮発や分解しない領域で適宜決定されるが、80~180℃であることが好ましい。

[0052] (D-1) 成分を配合する場合の使用量は、(B) 成分及び(C) 成分の合計100質量部に対して0.1~5質量部であることが好ましい。0.1

質量部より少ないとその効果は小さく、5質量部より多くても使用量にあった効果は発現しない。

[0053] (D-11) 成分

(D-11) 成分は、下記一般式(1)で表されるシリル基を1分子中に少なくとも1個含有し、25℃での粘度が0.01~30Pa・sであるオルガノポリシロキサンである。

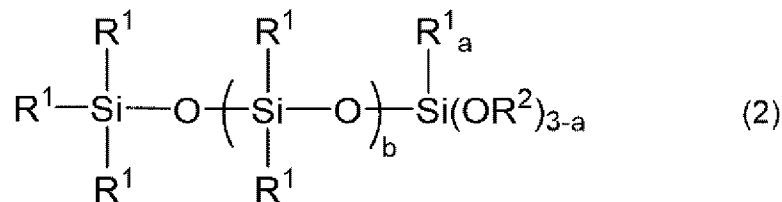


(式中、R¹は独立に非置換又は置換の1価炭化水素基であり、R²は独立にアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基又はアシル基であり、aは0、1又は2である。)

なお、(D-11) 成分は、(A) 成分としてケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた組成物に用いることが好ましく、特には、(A) 成分として上記(A-1) 成分を用いた付加反応硬化型の組成物、又は(A) 成分として(A-111) 1分子中に少なくとも1個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた有機過酸化物硬化型の組成物に用いることが好ましい。

[0054] (D-11) 成分としては、下記一般式(2)で表されるオルガノポリシロキサンが挙げられる。

[化1]



(式中、R¹は独立に非置換又は置換の1価炭化水素基であり、R²は独立にアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基又はアシル基であり、bは2~100の整数であり、aは0、1又は2である。)

[0055] 式(1)、(2)中、R¹は独立に非置換又は置換の、好ましくは炭素数1~10、より好ましくは1~6、さらに好ましくは1~3の1価炭化水素基

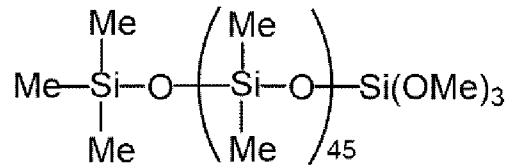
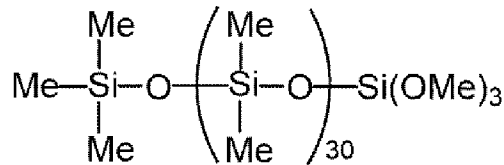
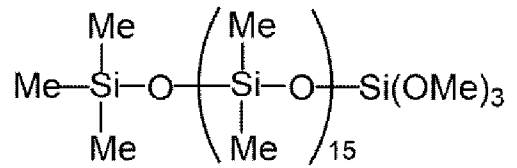
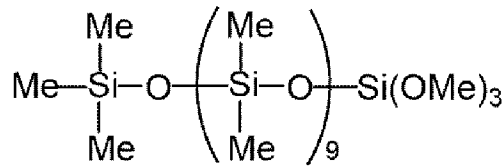
であり、その例としては、直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が挙げられる。直鎖状アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基等が挙げられる。分岐鎖状アルキル基としては、例えば、イソプロピル基、イソブチル基、tert-ブチル基、2-エチルヘキシル基等が挙げられる。環状アルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基等が挙げられる。アリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基等が挙げられる。アラルキル基としては、例えば、2-フェニルエチル基、2-メチル-2-フェニルエチル基等が挙げられる。ハロゲン化アルキル基としては、例えば、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、2-(ノナフルオロブチル)エチル基、2-(ヘプタデカフルオロオクチル)エチル基等が挙げられる。R¹としては、脂肪族不飽和結合を含まないものが好ましく、メチル基、フェニル基がより好ましい。

[0056] 式(1)、(2)中、R²は独立にアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基又はアシル基である。アルキル基としては、例えば、R¹において例示したのと同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基が挙げられる。アルコキシアルキル基としては、例えば、メトキシエチル基、メトキシプロピル基等が挙げられる。アルケニル基としては、例えば、R¹において例示したのと同様のものが挙げられる。アシル基としては、例えば、アセチル基、オクタノイル基等が挙げられる。R²は炭素数1~8のものが好ましく、アルキル基であることがより好ましく、特にメチル基、エチル基であることが好ましい。

bは2~100の整数であり、好ましくは5~50である。aは0、1又は2であり、好ましくは0である。

[0057] (D-11)成分のオルガノポリシロキサンの好適な具体例としては、下記のを挙げる事ができる。

[化2]



(式中、Meはメチル基である。)

[0058] (D-I)成分のオルガノポリシロキサンは、25℃における粘度は、通常、0.01~30 Pa・sであり、0.01~10 Pa・sが好ましい。粘度が0.01 Pa・sより低いと、シリコーン組成物からオイルブリードが発生しやすくなってしまい、また垂れやすくなってしまふおそれがある。粘度が30 Pa・sより大きいと、得られるシリコーン組成物の流動性が著しく乏しくなり、塗布作業性が悪化してしまふおそれがある。

[0059] (D-I)成分による(B)成分、(C)成分の表面処理方法としては、流体ノズルを用いた噴霧方式、せん断力のある攪拌方式、ボールミル、ミキサー等の乾式法、水系又は有機溶剤系等の湿式法を採用することができる。攪拌式は、球状酸化マグネシウム粉末、及び酸化アルミニウム粉末の破壊が起こらない程度に行う。乾式法における系内温度又は処理後の乾燥温度は、表面処理剤の種類に応じ、表面処理剤の揮発や分解しない領域で適宜決定されるが、80~180℃であることが好ましい。

[0060] (D-I)成分を配合する場合の配合量は、(A)成分100質量部に対して5~900質量部が好ましく、10~900質量部がより好ましく、20~700質量部がさらに好ましい。(D-I)成分が少なすぎると粘度が高くなる方向となり、最悪は混練できない場合があり、多すぎると本組成物からブリードアウトする(D-I)量が多くなる場合がある。

[0061] [(E)成分]

本発明の高熱伝導性シリコーン組成物には、さらに（E）中心粒子径（メジアン径 D_{50} ）の最大値が $160\mu\text{m}$ 以上であり、 SiO_2 含有量が50質量%以上の球状ガラスビーズ又は不定形ガラスを配合することができ、（E）成分を配合することにより、極少量であっても高热伝導性シリコーン組成物を、適度な厚みとすることができる。

[0062] （E）成分の中心粒子径の最大値は、 $160\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $160\sim 300\mu\text{m}$ であり、（B）成分の平均粒子径よりも大きいことが特徴である。中心粒子径の最大値が $160\mu\text{m}$ 未満では所望する厚みを確保できない場合がある。なお、中心粒子径の測定は、レーザー回折法で、例えば、（株）島津製作所製「レーザー回折式粒度分布測定装置SALD-2300」を用いて測定することができる。

[0063] （E）成分の SiO_2 含有量は、50質量%以上であり、好ましくは50～99.99質量%である。 SiO_2 含有量が50質量%未満では脆さに起因して所望する厚みを確保できない場合がある。なお、 SiO_2 含有量は、ICP発光分析法により測定できる。

[0064] （E）成分の材質としては、ソーダ石灰ガラス、ソーダ石灰シリカガラス、又はホウケイ酸ガラスが挙げられる。硬化厚みの均一性の観点から、（E）成分は不定形よりも球状の方が好ましく、（E）成分が球状ガラスビーズの場合、平均球形度は（B）、（C）成分と同様、0.8以上であることが好ましい。

[0065] （E）成分を配合する場合は、本発明を損なわない範囲で少量添加することが好ましく、具体的に高热伝導性シリコーン組成物の熱伝導率を顕著に低下させないためには、シリコーン組成物の全量中0.01～10質量%であることが好ましく、より好ましくは0.01～5質量%である。

[0066] 本発明の高熱伝導性シリコーン組成物はそのままでよいし、さらに硬化剤を配合し、硬化性の組成物とすることもできる。

硬化性高热伝導性シリコーン組成物とする際には、以下の3形態が挙げられ、ベースポリマーであるオルガノポリシロキサン（A）成分として、上記

(A-1) ~ (A-111) 成分のオルガノポリシロキサンを用い、上述した球状酸化マグネシウム粉末 (B) 及び酸化アルミニウム粉末 (C) を配合したものとすることができる。

[0067] [i] 付加反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物

[i i] 縮合反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物

[i i i] 有機過酸化物硬化型高熱伝導性シリコーン組成物

中でも、速やかに硬化し副生成物が発生しないことから、[i] 付加反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物であることが好ましい。以下に、それぞれの組成物について具体的に示す。

[0068] [i] 付加反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物

シリコーン組成物がヒドロシリル化反応により硬化する付加反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物である場合には、上記 (A) 成分として上記に示す (A-1) 成分を用い、さらに、下記成分を含むものであり、硬化剤は下記 (F) 及び (G) 成分である。

(F) ケイ素原子に直接結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(G) 白金族金属系硬化触媒、
必要に応じて、

(H) 付加反応制御剤

[0069] [(F) 成分]

(F) ケイ素原子に直接結合した水素原子を少なくとも 2 個有する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成分である。

[0070] オルガノハイドロジェンポリシロキサンのケイ素原子に結合している水素原子以外の基としては、前記 (A) 成分と同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示され、好ましくは、アルキル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、フェニル基である。

[0071] (F) 成分の 25℃における粘度は限定されないが、1~100,000

mPa・sの範囲が好ましく、1～5, 000mPa・sの範囲がより好ましい。

[0072] (F)成分の分子構造は限定されず、例えば、直鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、環状、樹枝状（ dendリマー状）が挙げられる。また、(F)成分において、ケイ素原子に直接結合した水素原子は分子中に少なくとも2個、好ましくは2～50個有するが、これは分子鎖末端にあっても、分子鎖の途中にあっても、その両方にあってもよい。このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、これらの分子構造を有する単一重合体、これらの分子構造からなる共重合体、又はこれらの混合物が挙げられる。

[0073] (F)成分としては、例えば、分子鎖両末端ジメチルヒドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルヒドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{SiO}_{4/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノシロキサンコポリマーが挙げられ、1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。

なお、(F)成分のオルガノヒドロジェンポリシロキサンは、(A-1)ケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサン成分とは相違するものであり、また、加水分解性基を含まない点で(D-11)成分と相違するものである。

[0074] (F)成分の配合量は、シリコーン組成物の硬化に必要な量であり、具体的には、(A-1)成分中のケイ素原子結合アルケニル基1モルに対して、(F)成分中のケイ素原子結合水素原子が0.1～10モルの範囲内となる量であることが好ましく、さらに0.1～5モルの範囲内となる量であることが好ましく、特に0.1～3モルの範囲内となる量であることが好ましい。これは本成分の含有量が上記範囲の下限未満となる量であると、得られる

シリコン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られるシリコン硬化物が非常に硬質となり、表面に多数のクラックを生じたりする場合がある。

[0075] [(G) 成分]

(G) 白金族金属系硬化触媒は、シリコン組成物の硬化を促進するための触媒であり、例えば、塩化白金酸、塩化白金酸のアルコール溶液、白金のオレフィン錯体、白金のアルケニルシロキサン錯体、白金のカルボニル錯体が挙げられる。

[0076] (G) 成分の配合量は、シリコン組成物の硬化に必要な量であり、具体的には、(A-1) 成分に対して (G) 成分中の白金金属が質量単位で 0.01~1, 000 ppm の範囲内となる量であることが好ましく、特に 0.1~500 ppm の範囲内となる量であることが好ましい。これは、(G) 成分の配合量が上記範囲の下限未満であると、得られるシリコン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があり、一方、上記範囲の上限を超える量を配合しても得られるシリコン組成物の硬化速度は顕著に向上しない。

[0077] [(H) 成分]

(H) 付加反応制御剤（硬化反応抑制剤）は、シリコン組成物の硬化速度を調節し、取扱作業性を向上させるために、配合することができる。硬化反応抑制剤としては、2-メチル-3-ブチン-2-オール、2-フェニル-3-ブチン-2-オール、1-エチニル-1-シクロヘキサノール等のアセチレン系化合物；3-メチル-3-ペンテン-1-イン、3,5-ジメチル-3-ヘキセン-1-イン等のエン-イン化合物；その他、ヒドラジン系化合物、フォスフィン系化合物、メルカプタン系化合物等が挙げられ、1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。

[0078] (H) 成分を配合する場合の配合量は特に限定されないが、シリコン組成物中 0.0001~1 質量% が好ましい。上記範囲とすることで、シリコン組成物の作業性や、硬化速度がより好適となる。

[0079] [i i] 縮合反応硬化型高熱伝導性シリコン組成物

シリコーン組成物が縮合反応硬化型高熱伝導性シリコーン組成物である場合には、上記（A）成分として上記に示す（A-11）成分を用い、さらに下記成分を含むものであり、硬化剤は下記（I）成分である。

（I） 1分子中に少なくとも3個のケイ素原子結合加水分解性基を有するシランもしくはその部分加水分解物、

必要に応じて、

（J）縮合反应用触媒

[0080] [（I）成分]

（I） 1分子中に少なくとも3個のケイ素原子結合加水分解性基を有するシランもしくはその部分加水分解物は、硬化剤として作用する成分である。該シラン中のケイ素原子結合加水分解性基としては、前記と同様のアルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アシロキシ基、ケトオキシム基、アルケノキシ基、アミノ基、アミノキシ基、アミド基が例示される。また、このシランのケイ素原子には上記の加水分解性基以外に、例えば、前記（A）成分と同様の直鎖状アルキル基、分岐鎖状アルキル基、環状アルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基を結合していてもよい。

このようなシランもしくはその部分加水分解物としては、例えば、メチルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、エチルオルソシリケート等が挙げられる。

[0081] （I）成分の配合量は、シリコーン組成物の硬化に必要な量であり、具体的には、（A-11）成分100質量部に対して0.01～20質量部の範囲内であることが好ましく、特に0.1～10質量部の範囲内であることが好ましい。このシランもしくはその部分加水分解物の含有量が上記範囲の下限未満の量であると、得られるシリコーン組成物の貯蔵安定性が低下するおそれがあり、一方、上記範囲の上限を超える量であると、得られるシリコーン組成物の硬化が著しく遅くなったりするおそれがある。

[0082] [（J）成分]

(J) 縮合反応用触媒は任意の成分であり、例えば、アミノキシ基、アミノ基、ケトオキシム基等の加水分解性基を有するシランを硬化剤として用いる場合には必須ではない。

このような縮合反応用触媒としては、例えば、テトラブチルチタネート、テトライソプロピルチタネート等の有機チタン酸エステル；ジイソプロポキシビス（アセチルアセテート）チタン、ジイソプロポキシビス（エチルアセトアセテート）チタン等の有機チタンキレート化合物；アルミニウムトリス（アセチルアセトネート）、アルミニウムトリス（エチルアセトアセテート）等の有機アルミニウム化合物；ジルコニウムテトラ（アセチルアセトネート）、ジルコニウムテトラブチレート等の有機アルミニウム化合物；ジブチルスズジオクトエート、ジブチルスズジラウレート、ブチルスズ-2-エチルヘキソエート等の有機スズ化合物；ナフテン酸スズ、オレイン酸スズ、ブチル酸スズ、ナフテン酸コバルト、ステアリン酸亜鉛等の有機カルボン酸の金属塩；ヘキシルアミン、燐酸ドデシルアミン等のアミン化合物、及びその塩；ベンジルトリエチルアンモニウムアセテート等の4級アンモニウム塩；酢酸カリウム、硝酸リチウム等のアルカリ金属の低級脂肪酸塩；ジメチルヒドロキシルアミン、ジエチルヒドロキシルアミン等のジアルキルヒドロキシルアミン；グアニジル基含有有機ケイ素化合物が挙げられる。

[0083] (J) 成分を配合する場合、その配合量はシリコーン組成物の硬化に必要な量であればよく、具体的には、(A) 成分100質量部に対して0.01~20質量部の範囲内であることが好ましく、特に0.1~10質量部の範囲内であることが好ましい。(J) 成分を用いる場合、この触媒の含有量が上記範囲の下限未満の量であると、得られるシリコーン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られるシリコーン組成物の貯蔵安定性が低下する傾向があるからである。

[0084] [i i i] 有機過酸化物硬化型高熱伝導性シリコーン組成物

シリコーン組成物が有機過酸化物硬化型高熱伝導性シリコーン組成物である場合には、上記(A)成分として上記に示す(A-111)成分を用い、

さらに、下記成分を含むものであり、硬化剤は下記（K）成分である。

（K）有機過酸化物

[0085] [（K）成分]

（K）有機過酸化物としては、例えば、ベンゾイルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、2，5-ジメチルビス（2，5-tert-ブチルパーオキシ）ヘキサン、ジ-tert-ブチルパーオキシド、tert-ブチルパーベンゾエートが挙げられる。

[0086] （K）成分の配合量は、シリコーン組成物の硬化に必要な量であり、具体的には、上記（A-111）成分のオルガノポリシロキサン100質量部に対して0.1～5質量部の範囲が好ましい。（K）成分の配合量が上記範囲の下限未満であると、得られるシリコーン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があり、一方、上記範囲の上限を超える量を配合しても得られるシリコーン組成物の硬化速度は顕著に向上せず、寧ろボイドの原因となるおそれがある。

[0087] さらに、本発明のシリコーン組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、例えば、ヒュームドシリカ、沈降性シリカ、ヒュームド酸化チタン等の充填材、この充填材の表面を有機ケイ素化合物により疎水化処理した充填材；3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等の接着付与剤；その他、顔料、染料、蛍光染料、耐熱添加剤、トリアゾール系化合物等の難燃性付与剤、可塑剤を含有してもよい。なお、本発明の効果を損なわない範囲において、（B）、（C）成分以外の熱伝導性充填材を配合してもよく、例えば、アルミニウム粉末、銅粉末、銀粉末、ニッケル粉末、金粉末、酸化亜鉛粉末、窒化ホウ素粉末、窒化アルミニウム粉末、ダイヤモンド粉末、カーボン粉末等が挙げられる。

[0088] 本発明のシリコーン組成物は、上記各成分の所定量を均一に混合することにより調製できる。例えば、1液組成物の場合、（A）、（B）、（C）成分を混合して混合物を得る方法（製造方法1）、（A）、（B）、（C）成

分を混合して混合物を得た後、該混合物に（D）成分を混合させる方法（製造方法2）、（A）、（B）、（C）、（D）成分を同時に混合させる方法（製造方法3）により製造することができる。混合は公知の方法で行うことができる。また、（B）、（C）成分の表面を（A）、（D）成分により処理する際、その処理を促進するために、例えば150℃で加熱処理をしてもよい。

（E）成分の添加方法は特に制限されないが、（A）、（B）、（C）、（D）成分を添加して混合させた後、（E）成分を添加して混合するのが好ましく、混合は公知の方法が挙げられる。さらに、任意成分を混合する工程を含んでいてもよい。

[0089] [高熱伝導性シリコーン組成物]

高熱伝導性シリコーン組成物の熱伝導率は、ISO 22007-2 準拠のホットディスク法において、 $7.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上であり、 $8.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上であることがより好ましい。上限は特に限定されず、高くてもよいが、 $12.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以下とすることができる。熱伝導率が $7.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 未満では本発明の目的とする熱伝導性に優れた高熱伝導性シリコーン組成物が得られない。測定温度は25℃である。

なお、本発明の高熱伝導性シリコーン組成物の熱伝導率を $7.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上とするには、上述した（A）～（C）成分を特定の配合割合で用い、特には（B）成分と（C）成分の体積比を $5.0 : 5.0 \sim 9.5 : 0.5$ とするとともに、（B）成分と（C）成分との合計量を組成物中の80～90体積%とすることで、上記熱伝導率とすることができる。

[0090] また、高熱伝導性シリコーン組成物の25℃における粘度は、スパイラル粘度計による回転数10rpm測定時において、 $30 \sim 800 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であり、 $30 \sim 600 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であることが好ましい。粘度が低すぎると本組成物が所定の形状を保持できない場合があり、粘度が高すぎると本組成物が塗布し辛くなる傾向にある。

なお、本発明の高熱伝導性シリコーン組成物の粘度を上記範囲とするには

、上述した（A）～（C）成分を特定の配合割合で用い、更に（A）成分の配合量及び粘度を調整することで、高熱伝導性シリコーン組成物の25℃における粘度を上記範囲とすることができる。

[0091] [硬化物]

シリコーン組成物が硬化性のものである場合、それを硬化させる方法は限定されず、例えば、シリコーン組成物を成形後、常温で放置する方法、シリコーン組成物を成形後、40～200℃に加熱する方法が挙げられる。また、このようにして得られるシリコーンゴム（シリコーンエラストマー成形品）の性状は限定されないが、例えば、ゲル状、低硬度のゴム状、あるいは高硬度のゴム状が挙げられる。なお、得られるシリコーンゴムの硬化厚みは本発明のシリコーン組成物の放熱特性を考慮すると100μm～2mmであることが好ましい。

実施例

[0092] 以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記式において、Meはメチル基である。

実施例及び比較例に用いられている成分を下記に示す。

[0093] (A) 成分

A-1：25℃における粘度が400mPa・sであり、両末端がジメチルビニルシロキシ基で封鎖され、ビニル（Vi）基量が0.018mol/100gであるジメチルポリシロキサン〔（A-1）成分〕

A-2：信越化学工業（株）製KF-54、比重（25℃）が1.07であり、動粘度（25℃）が400mPa・sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・ジフェニルシロキサンコポリマー

A-3：信越化学工業（株）製KF-50-1、000cs、比重（25℃）が1.00であり、動粘度（25℃）が1,000mPa・sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・ジフェニルシロキサンコポリマー

[0094] (B) 成分

下記表 1 に示す性質を有する球状酸化マグネシウム

[表1]

	平均球形度	平均粒子径 (μm)	純度(質量%)	比重
B-1	0.90	84	99.1	3.5
B-2	0.90	122	98.9	3.5
B-3 (比較品)	0.90	68	99.2	3.5
B-4 (比較品)	0.70	96	98.7	3.5

[0095] (C) 成分

下記表 2 に示す性質を有する球状又は不定形状酸化アルミニウム

[表2]

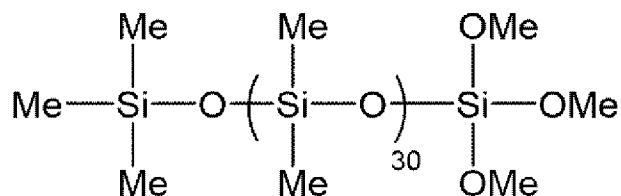
	平均球形度	平均粒子径 (μm)	粗粒子の割合* ¹ (質量%)	形状	比重
C-1 [(C-I)成分]	0.90	9.3	0.2	球状	4.0
C-2 [(C-II)成分]	—	1.0	—	不定形状	4.0
C-3 (比較品) [(C-I)成分]	0.90	5.9	0.1	球状	4.0
C-4 (比較品) [(C-II)成分]	—	0.01	—	不定形状	4.0

* 1 : レーザー回折型粒度分布で $96 \sim 150 \mu\text{m}$ の粗粒子の割合

[0096] (D) 成分

D-1 : 下記式で表され、 25°C での粘度が $30 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ である片末端トリメトキシシロキシ基封鎖メチルポリシロキサン [(D-11)成分]

[化3]



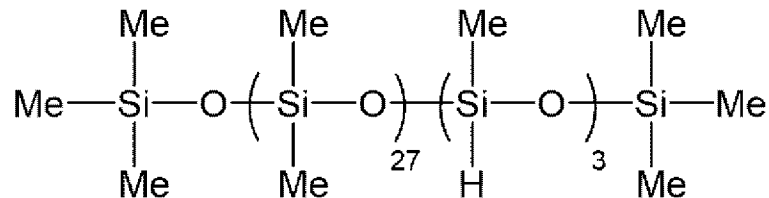
[0097] (E) 成分

E-1：ポッターズ・バロティーニ製MIL粒度シリーズM-9（中心粒子径の最大値が180 μ m）、SiO₂含有量が99.4質量%の球状ガラスビーズ（材質：ソーダ石灰ガラス）

[0098] (F) 成分

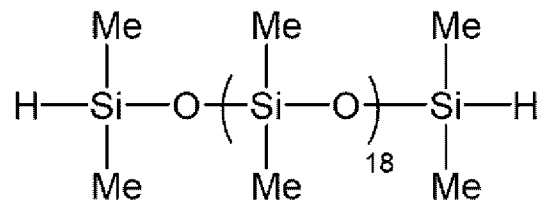
F-1：下記式で表され、25℃での粘度が28mPa・sであるメチルハイドロジェンポリシロキサン

[化4]



F-2：下記式で表され、25℃での粘度が17mPa・sであるメチルハイドロジェンポリシロキサン

[化5]



[0099] (G) 成分

G-1：白金濃度が1質量%である塩化白金酸-1，3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体

[0100] (H) 成分

H-1：1-エチル-1-シクロヘキサノールの50質量%トルエン溶液

[0101] [実施例1～7、比較例1～7]

上記成分を表3、4に示す量で用い、下記に示す方法でシリコーン組成物を調製し、このシリコーン組成物を用いて熱伝導性成型物を得た。これらを用いて下記に示す方法により、初期粘度、硬化後硬度、熱伝導率を評価した。結果を表3、4中に併記する。

[0102] [シリコーン組成物の調製方法]

上記（A）～（H）成分を表3、4に示す配合量で以下のように混合して実施例1～7及び比較例1～7の組成物を得た。即ち、5リットルゲートミキサー（井上製作所（株）製、商品名：5リットルプラネタリミキサー）に、（A）、（B）、（C）、（D）成分を表3、4に示す配合量で取り、150℃で2時間脱気加熱混合した。その後、常温（25℃）になるまで冷却し、（G）成分を加え、均一になるように室温（25℃）にて混合し、続けて（H）成分を加え、均一になるように室温（25℃）にて混合した。更に（F）成分を加え、均一になるように室温（25℃）にて脱気混合した。また、必要に応じて（E）成分を加え、均一になるように室温（25℃）にて脱気混合した。

このようにして得られた組成物について、初期粘度、硬化後硬度、熱伝導率を下記に示す方法により評価した。その結果を表3、4に併記した。

[0103] 〔初期粘度評価〕

シリコン組成物の初期粘度は25℃における値であり、その測定はスパイラル粘度計：マルコム粘度計（タイプPC-10AA、回転数10rpm）を用いた。

[0104] 〔硬化後硬度評価〕

シリコン組成物を6mm硬化厚みとなるような成型型に流し込み、100℃で1時間硬化させた。次に6mm厚みの硬化物を2枚重ねてアスカ-C硬度計で硬さを測定した。

[0105] 〔熱伝導率評価〕

京都電子工業（株）製ホットディスク法熱物性測定装置TPS 2500Sを用いて25℃におけるシリコン組成物の硬化前の熱伝導率を測定した（ISO 22007-2準拠のホットディスク法）。

[0106]

[表3]

配合量 (質量部)		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7
(A)	A-1	20	20	20	20	20	20	20
	A-2	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25
	A-3	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25
(B)	B-1	790	800		435			
	B-2			800	435	800	800	1,350
	B-3							
	B-4							
(C)	C-1	395	400	400	435	240	560	86
	C-2	395	400	400	435	560	240	86
	C-3							
	C-4							
(D)	D-1	80	80	80	80	80	80	80
(E)	E-1	10						
(F)	F-1	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	F-2	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
(G)	G-1	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
(H)	H-1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
(B)及び(C)成分 配合量(体積%)		80.2	80.2	80.2	81.5	80.2	80.2	80.2
(B)/(C)体積比		5.32/4.68	5.32/4.68	5.32/4.68	5.32/4.68	5.32/4.68	5.32/4.68	8.99/1.01
C-1/C-2 体積比		5/5	5/5	5/5	5/5	3/7	7/3	5/5
(A) 100 質量部に対する (D)質量部		356	356	356	356	356	356	356
(A)質量%		1.3	1.3	1.3	1.2	1.3	1.3	1.4
(E)質量%		0.6						
(H)質量%		0.006	0.006	0.006	0.005	0.006	0.006	0.006
粘度(Pa·s)		253	229	198	171	512	382	591
硬さ(アスカ-C)		32	31	30	34	34	31	27
熱伝導率(W/m·K)		7.2	7.2	7.7	8.2	7.2	7.1	8.8

[0107]

[表4]

配合量 (質量部)		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)	A-1	20	20	20	20	20	20	20
	A-2	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25
	A-3	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25	1.25
(B)	B-1							
	B-2			740	800	1,434	800	800
	B-3	800						
	B-4		800					
(C)	C-1	400	400	432		37	144	656
	C-2	400	400	432		37	656	144
	C-3				400			
	C-4				400			
(D)	D-1	80	80	80	80	80	80	80
(E)	E-1							
(F)	F-1	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	F-2	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
(G)	G-1	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
(H)	H-1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
(B)及び(C)成分 配合量(体積%)		80.2	80.2	80.2	80.2	80.2	80.2	80.2
(B)/(C)体積比		5.32/4.68	5.32/4.68	4.93/5.07	5.32/4.68	9.57/0.43	5.32/4.68	5.32/4.68
C-1/C-2又はC-3/C-4 体積比		5/5	5/5	5/5	5/5	5/5	1.8/8.2	8.2/1.8
(A) 100 質量部に対する (D)質量部		356	356	356	356	356	356	356
(A)質量%		1.3	1.3	1.3	1.3	1.4	1.3	1.3
(E)質量%								
(H)質量%		0.006	0.006	0.006	0.006	0.006	0.006	0.006
粘度(Pa・s)		321	435	374				591
硬さ(アスカ-C)		33	31	32	※	※	※	27
熱伝導率(W/m・K)		6.0	6.4	6.8				6.7

※：混練不可能により測定できず

請求の範囲

[請求項1]

(A) オルガノポリシロキサン、
(B) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径80~150 μ mであり、純度が98質量%以上の球状酸化マグネシウム粉末、
(C) (C-1) 平均球形度0.8以上で、平均粒子径7~60 μ mであり、かつレーザー回折型粒度分布で96~150 μ mの粗粒子の割合が(C-1)成分全体の0.1~30質量%である球状酸化アルミニウム粉末、及び
(C-11) 平均粒子径0.1~4 μ mの球状又は不定形状酸化アルミニウム粉末
を含む高熱伝導性シリコーン組成物であって、
上記(C-1)成分と(C-11)成分の配合割合体積比((C-1):(C-11))が2.0:8.0~8.0:2.0で、上記(B)成分と(C)成分の配合割合体積比((B):(C))が5.0:5.0~9.5:0.5であり、かつ(B)成分と(C)成分との合計量が組成物中80~90体積%であり、組成物の熱伝導率がISO 22007-2準拠のホットディスク法において、7.0W/m \cdot K以上、組成物の25 $^{\circ}$ Cにおける粘度がスパイラル粘度計による回転数10rpm測定時において、30~800Pa \cdot sである高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項2]

(A) 成分を組成物中1~6質量%含む請求項1記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項3]

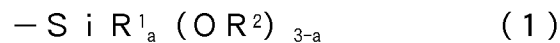
(A) 成分として(A-1)1分子中に平均0.1個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた付加反応硬化型、(A)成分として(A-11)1分子中に少なくとも2個のシラノール基もしくはケイ素原子結合加水分解性基を有するオルガノポリシロキサンを用いた縮合反応硬化型、又は(A)成分として(A-111)1分子中に少なくとも1個のケイ素原子結合アルケニ

ル基を有するオルガノポリシロキサンを用いた有機過氧化物硬化型である請求項1又は2記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項4] さらに、(D) 表面処理剤を含む請求項1～3のいずれか1項記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項5] (D) 成分として、(D-1) シランカップリング剤を(B)成分及び(C)成分の合計100質量部に対して0.1～5質量部含有する請求項4記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項6] (A) 成分として、(A-1) 1分子中に平均0.1個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサン又は(A-1-1) 1分子中に少なくとも1個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンを用い、(D) 成分として、(D-1) 下記一般式(1)



(式中、R¹は独立に非置換又は置換の1価炭化水素基であり、R²は独立にアルキル基、アルコキシアルキル基、アルケニル基又はアシル基であり、aは0、1又は2である。)

で表されるシリル基を1分子中に少なくとも1個含有し、25℃での粘度が0.01～30Pa・sであるオルガノポリシロキサンを(A-1)又は(A-1-1)成分100質量部に対して5～900質量部含有する請求項4記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項7] さらに、(E) 中心粒子径の最大値が160μm以上であり、SiO₂含有量が50質量%以上の球状ガラスビーズ又は不定形ガラスを、組成物の全量中0.01～10質量%含む請求項1～6のいずれか1項記載の高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項8] 請求項3～7のいずれか1項記載の高熱伝導性シリコーン組成物の硬化物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/022510

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08K 5/541(2006.01)i; C08K 7/18(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C08K 3/105(2018.01)i; C08K 3/40(2006.01)i FI: C08L83/07; C08K7/18; C08K3/105; C08K5/541; C08K3/40 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) C08K5/541; C08K7/18; C08L83/07; C08K3/105; C08K3/40		
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	1971-2020	
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020	
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020	
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.
Y	WO 2018/088416 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 17.05.2018 (2018-05-17) claims 1-10, paragraph [0007], example 1	1-8
Y	JP 2016-88838 A (SAKAI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 23.05.2016 (2016-05-23) claims 1, 6, paragraphs [0005], [0006], [0011], [0073]	1-8
Y	JP 8-88488 A (TOKAI RUBBER INDUSTRIES, LTD.) 02.04.1996 (1996-04-02) claims 1-4, paragraphs [0005], [0007], [0012], example 2	1-8
<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		"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date		"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
"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)		"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
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 24 June 2020 (24.06.2020)	Date of mailing of the international search report 07 July 2020 (07.07.2020)	
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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/022510

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2018/088416 A1	17 May 2018	TW 201825599 A	
JP 2016-88838 A	23 May 2016	(Family: none)	
JP 8-88488 A	02 Apr. 1996	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08K 5/541(2006.01)i; C08K 7/18(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C08K 3/105(2018.01)i; C08K 3/40(2006.01)i FI: C08L83/07; C08K7/18; C08K3/105; C08K5/541; C08K3/40		
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）） C08K5/541; C08K7/18; C08L83/07; C08K3/105; C08K3/40 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 - 2020年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2020年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2020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
Y	WO 2018/088416 A1 (信越化学工業株式会社) 17.05.2018 (2018 - 05 - 17) [請求項1]-[請求項10], 段落[0007], 実施例1	1-8
Y	JP 2016-88838 A (堺化学工業株式会社) 23.05.2016 (2016 - 05 - 23) [請求項1], [請求項6], 段落[0005], [0006], [0011], [0073]	1-8
Y	JP 8-88488 A (東海ゴム工業株式会社) 02.04.1996 (1996 - 04 - 02) [請求項1]-[請求項4], 段落[0005], [0007], [0012], 実施例2	1-8
<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 24.06.2020	国際調査報告の発送日 07.07.2020	
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） 小森 勇 4J 4770 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/JP2020/022510

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2018/088416 A1	17.05.2018	TW 201825599 A	
JP 2016-88838 A	23.05.2016	(ファミリーなし)	
JP 8-88488 A	02.04.1996	(ファミリーなし)	