

(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  
2021年11月25日(25.11.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/235214 A1

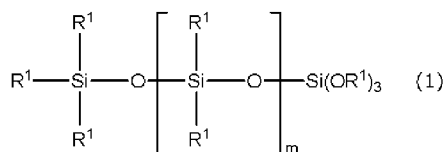
- (51) 国際特許分類:  
*C08L 83/05* (2006.01)    *C08K 3/013* (2018.01)  
*C08L 83/07* (2006.01)    *C08K 3/08* (2006.01)  
*C09K 5/14* (2006.01)
- (21) 国際出願番号:                    PCT/JP2021/017129
- (22) 国際出願日:                    2021年4月29日(29.04.2021)
- (25) 国際出願の言語:                    日本語
- (26) 国際公開の言語:                    日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2020-089709    2020年5月22日(22.05.2020) 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: 細田 也実 (HOSODA Narimi); 〒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). 高橋 瞳子 (TAKAHASHI Toko); 〒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: 好宮 幹夫, 外 (YOSHIMIYA Mikio et al.); 〒1100005 東京都台東区上野7丁目6番11号 第一下谷ビル8F Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, 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, 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))

(54) Title: HIGHLY THERMALLY-CONDUCTIVE SILICONE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 高熱伝導性シリコン組成物



(57) Abstract: The present invention is a highly thermally conductive silicone composition which contains: (A) an organopolysiloxane that has at least two aliphatic unsaturated hydrocarbon groups per molecule and has a kinematic viscosity at 25 ° C of 100-100,000 mm<sup>2</sup>/s; (B) an aluminum powder having an average particle diameter of 50 μm or more; (C) a thermally conductive filler having an average particle diameter of less than 0.1-50 μm; (D) an organohydrogenpolysiloxane having two or more silicon atom-bonded hydrogen atoms (Si-H groups) per molecule; (E) a hydrolyzable organopolysiloxane represented by general formula (1); and (F) an effective amount of a platinum group metal catalyst. According to this configuration, provided is a highly thermally-conductive silicone composition which can follow warpage of a substrate at a high material thickness, and can maintain heat-dissipating performance due to having high thermal conductivity.



WO 2021/235214 A1

---

(57) 要約：本発明は高熱伝導性シリコーン組成物であって、(A) 1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を有し、25℃での動粘度が100~100,000 mm<sup>2</sup>/sのオルガノポリシロキサン、(B) 平均粒径が50μm以上であるアルミニウム粉末、(C) 平均粒径が0.1~50μm未満である熱伝導性充填材、(D) 1分子中に2個以上のケイ素原子に結合した水素原子(Si-H基)を有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン、(E) 下記一般式(1)で表される加水分解性オルガノポリシロキサン、(F) 白金族金属触媒：有効量を含有する高熱伝導性シリコーン組成物である。これにより材料厚みが厚いことで基材の反りに追従することが可能となり、さらに高熱伝導率を有するため放熱性能を維持することができる高熱伝導性シリコーン組成物が提供される。

## 明 細 書

発明の名称：高熱伝導性シリコーン組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、高い放熱性能を維持できる高熱伝導性シリコーン組成物に関する。

### 背景技術

[0002] LSIやICチップ等の電子部品は使用中の発熱及びそれに伴う性能の低下が広く知られており、これを解決するための手段として様々な放熱技術が用いられている。例えば、発熱部の付近にヒートシンクなどの冷却用途の部材を配置し、両者を密接させることで冷却部材へと効率的な伝熱を促して冷却部材を冷却することにより発熱部の放熱を効率的に行うことが知られている。その際、発熱部材と冷却部材との間に隙間があると、熱伝導性の低い空気が介在することにより伝熱が効率的でなくなり、発熱部材の温度が十分に下がらなくなってしまう。

[0003] このような現象を防止するために発熱部材と冷却部材の間の空気の介在を防ぐ目的として、熱伝導率が良く、部材の表面に追従性のある放熱材料として放熱シートや放熱グリースが用いられる（特許文献1～3）。その中でも放熱グリースは実装時の厚みを薄くして使用することができるために熱抵抗の観点から高い性能を発揮する。放熱グリースの中には部材間に挟まれたのちに、加熱硬化して使用するタイプもある。

[0004] 放熱グリースは熱伝導性を向上させるために多量のフィラーを配合しているが、その結果として加熱硬化後の伸びが低下してしまう。伸びが低下することにより材料に柔軟性がなくなってしまう、稼働時の反りに追従できなくなってしまう点が懸念される。追従できなくなると、部材と放熱グリースの間に空隙が発生し、放熱性能が悪化する。その問題を解決するため、分子鎖末端にアルケニル基を含有する成分と、分子鎖側鎖及び／又は末端にアルケニル基を含有する成分を配合することで、硬化後の伸びが高く稼働時の反り

に追従可能な熱伝導性シリコン組成物が提案されている。しかし、近年パッケージサイズの拡大に伴い、基材の反りが大きくなる傾向にあり、従来材料では材料厚みが薄く、反りへの追従が困難になることがあった。一方で、大きい粒径の熱伝導性充填剤を使用した場合には充填性が悪く、また材料厚みが厚くなるため高熱抵抗となり、十分な放熱性能を発揮できない問題があった。

## 先行技術文献

### 特許文献

- [0005] 特許文献1：特許第2938428号公報  
特許文献2：特許第2938429号公報  
特許文献3：特許第3952184号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

- [0006] 本発明は上記事情に鑑みなされたもので、材料厚みが厚いことで基材の反りに追従することが可能となり、さらに高熱伝導率を有するため放熱性能を維持することができる高熱伝導性シリコン組成物を提供することを目的とする。

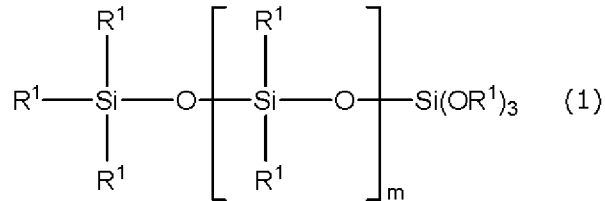
### 課題を解決するための手段

- [0007] 上記課題を解決するために、本発明では、高熱伝導性シリコン組成物であって、
- (A) 1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を有し、25℃での動粘度が100～100,000mm<sup>2</sup>/sのオルガノポリシロキサン、
  - (B) 平均粒径が50μm以上であるアルミニウム粉末、
  - (C) 平均粒径が0.1～50μm未満である熱伝導性充填材、
  - (D) 1分子中に2個以上のケイ素原子に結合した水素原子(Si-H基)を有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン：{前記(D)成分のSi-H基の個数} / {前記(A)成分中のアルケニル基の個数}が0.5～1

． 5 となる量、

(E) 下記一般式 (1) で表される加水分解性オルガノポリシロキサン：組成物全体に対し 0.1～10 質量%、

[化1]



(式中、R<sup>1</sup>は置換基を有していてもよい炭素数1～10の1価炭化水素基を表し、それぞれのR<sup>1</sup>は同一であっても異なってもよい。またmは5～100の整数を示す。)

(F) 白金族金属触媒：有効量

を含有する前記 (B) 成分と前記 (C) 成分の合計が組成物全体に対して 90～95 質量%であり、前記高熱伝導性シリコーン組成物の 25℃における熱伝導率が ISO 22007-2 準拠のホットディスク法において、7W/m·K 以上であり、25℃における絶対粘度が 50～1,000 Pa·s である高熱伝導性シリコーン組成物を提供する。

[0008] このような高熱伝導性シリコーン組成物であれば、材料厚みが厚いことで基材の反りに追従することが可能となり、さらに高熱伝導率を有するため放熱性能を維持することができるものとなる。

[0009] また、本発明では、さらに、(G) 前記 (F) 成分の触媒活性を抑制するアセチレン化合物、窒素化合物、有機りん化合物、オキシム化合物、有機クロロ化合物より選択される制御剤：前記 (A) 成分の合計に対して 0.1 質量%～5 質量%となる量

を含む高熱伝導性シリコーン組成物であることが好ましい。

[0010] このような高熱伝導性シリコーン組成物であれば、十分なシェルフライフやポットライフが得られ、硬化速度が向上するものとすることができる。

[0011] また、本発明では、前記高熱伝導性シリコーン組成物を 150℃にて 60

分間加熱硬化して2mm厚シートを作製した後、JIS K6251に記載の2号ダンベルの形状を作製して測定した伸びが30%以上である高熱伝導性シリコン組成物であることが好ましい。

[0012] このような高熱伝導性シリコン組成物であれば、高温保存時に剥離が発生しづらく、熱抵抗が悪化するおそれがないものとすることができる。

### 発明の効果

[0013] 以上のように、本発明において、平均粒径50 $\mu$ m以上であるアルミニウム粉末を配合することにより、材料厚みを厚くすることができ、さらに高熱伝導率を付与することが可能となり熱性能を維持することができる。

### 発明を実施するための形態

[0014] 上述のように、基材の反りに追従することが可能となり、さらに放熱性能を維持することができる高熱伝導性シリコン組成物の開発が求められていた。

[0015] 本発明者は、上記目標を達成するため鋭意検討した結果、材料厚みが厚く、基材の反りに追従可能であり、さらに高熱伝導率を有することで放熱性能を維持することができる高熱伝導性シリコン組成物を開発した。

[0016] 即ち、本発明は、高熱伝導性シリコン組成物であって、

(A) 1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を有し、25 $^{\circ}$ Cでの動粘度が100~100,000 $\text{mm}^2/\text{s}$ のオルガノポリシロキサン、

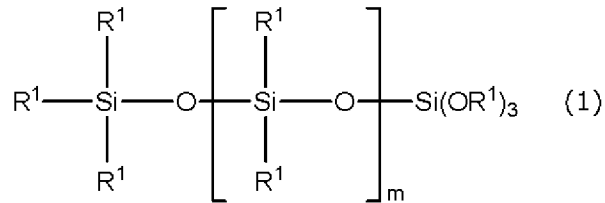
(B) 平均粒径が50 $\mu$ m以上であるアルミニウム粉末、

(C) 平均粒径が0.1~50 $\mu$ m未満である熱伝導性充填材、

(D) 1分子中に2個以上のケイ素原子に結合した水素原子(Si-H基)を有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン：{前記(D)成分のSi-H基の個数} / {前記(A)成分中のアルケニル基の個数}が0.5~1.5となる量、

(E) 下記一般式(1)で表される加水分解性オルガノポリシロキサン：組成物全体に対し0.1~10質量%、

[化2]



(式中、R<sup>1</sup>は置換基を有していてもよい炭素数1～10の1価炭化水素基を表し、それぞれのR<sup>1</sup>は同一であっても異なってもよい。またmは5～100の整数を示す。)

(F) 白金族金属触媒：有効量

を含有する前記(B)成分と前記(C)成分の合計が組成物全体に対して90～95質量%であり、前記高熱伝導性シリコーン組成物の25℃における熱伝導率がISO 22007-2準拠のホットディスク法において、7W/m·K以上であり、25℃における絶対粘度が50～1,000Pa·sである高熱伝導性シリコーン組成物である。

[0017] 以下、本発明について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0018] (A) 成分

(A)成分は、1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を有し、25℃での動粘度が100～100,000mm<sup>2</sup>/sのオルガノポリシロキサンである。(A)成分のオルガノポリシロキサンは、ケイ素原子に直結したアルケニル基を1分子中に2個含有するもので、直鎖状でも分岐状でもよく、またこれら2種以上の異なる粘度の混合物でもよい。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、1-ヘキセニル基等が例示されるが、合成の容易さ、コストの面からビニル基が好ましい。ケイ素原子に結合する残余の有機基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、ドデシル基等のアルキル基、フェニル基等のアリール基、2-フェニルエチル基、2-フェニルプロピル基等のアラルキル基が例示され、さらにクロロメチル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基等の

置換炭化水素基も例として挙げられる。これらのうち、合成の容易さ、コストの面からメチル基が好ましい。ケイ素原子に結合するアルケニル基は、オルガノポリシロキサンの分子鎖の末端に存在することが好ましい。上記オルガノポリシロキサンのウベローデ型オストワルド粘度計により測定した25℃での動粘度は100~100,000mm<sup>2</sup>/sの範囲であり、好ましくは500~100,000mm<sup>2</sup>/sがよい。

[0019] (B) 成分

(B) 成分は、平均粒径が50μm以上のアルミニウム粉末であり、本発明の高熱伝導性シリコン組成物の熱伝導性充填材として機能する。(B) 成分は、1種単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。

[0020] (B) 成分の形状には特に制限はなく、その例としては、球状、樹枝状、りん片状、針状、不規則形状等が挙げられる。(B) 成分を前記高熱伝導性シリコン組成物中に高充填するためには、(B) 成分の粒子形状が、樹枝状、りん片状、針状、不規則形状等のかさ密度の大きい形状であるよりも、球状であることが好ましい。

[0021] (B) 成分の平均粒径は、50μm以上、好ましくは55~100μm、さらに好ましくは55~80μmの範囲内である。該平均粒子径が50μm未満であると、前記高熱伝導性シリコングリースの材料厚みが薄くなり、基材の反りに追従できない恐れがある。なお、本発明において、平均粒径は、体積基準の体積平均径であり、日機装(株)製マイクロトラックMT3300EXにより測定できる。

[0022] (B) 成分の充填量は、組成物全体に対し20~60質量%の範囲が好ましい。充填量が下限以上であれば組成物の熱伝導率が高くなり、上限以下であれば組成物が均一となり、オイル分離が発生する恐れがない。

[0023] (C) 成分

(C) 成分は、平均粒径が0.1~50μm未満の熱伝導性充填材であり、本発明の高熱伝導性シリコン組成物の熱伝導率を向上させるために機能する。(C) 成分が(B) 成分の間隙に入り込むことで、該組成物における

熱伝導性充填材 { (B) 成分および (C) 成分 } 全体の充填性を向上させることができる。係る熱伝導性充填材としてはアルミニウム粉末、銅粉末、ニッケル粉末、金粉末、金属ケイ素粉末、窒化アルミニウム粉末、窒化ホウ素粉末、アルミナ粉末、ダイヤモンド粉末、カーボン粉末、インジウム粉末、ガリウム粉末、酸化亜鉛粉末などがあげられる。(C) 成分は1種単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。

[0024] (C) 成分は熱伝導率、調達性の観点からアルミニウム粉末、アルミナ粉末、酸化亜鉛粉末が好ましく、アルミニウム粉末と酸化亜鉛粉末がより好ましい。

[0025] (C) 成分の平均粒径は0.1~50 $\mu$ m未満、好ましくは0.2~45 $\mu$ m、さらに好ましくは0.2~40 $\mu$ mの範囲内である。前記平均粒子径が0.1 $\mu$ m未満であると、(C) 成分のかさ密度が大きくなりやすいので、組成物の粘度が高くなり、作業性が低下する恐れがある。一方、前記平均粒子径が50 $\mu$ m以上だと、(B) 成分と(C) 成分との組み合わせによる最密充填が難しくなる。

[0026] (C) 成分の充填量は、組成物全体に対し30~70質量%の範囲が好ましく、より好ましくは30~65質量%の範囲がよい。充填量が下限以上であれば(C) 成分の添加による効果を得やすくなる。一方、上限以下であれば得られる組成物の粘度が低くなり、作業性が向上する。

[0027] 該高熱伝導性シリコン組成物中、(B) 成分と(C) 成分の合計が、組成物全体に対して90~95質量%であり、好ましくは91~95質量%、さらに好ましくは92~95質量%の範囲がよい。上記合計量が下限未満であると、組成物の熱伝導率が7W/m $\cdot$ Kを達成することが困難となるおそれがある。一方、上限を超えると組成物が高粘度となり、作業性が低下してしまう。

[0028] (D) 成分

(D) 成分のオルガノヒドロジェンポリシロキサンは、架橋により組成物を網状化するためにケイ素原子に直結した水素原子(Si-H基)を1分子

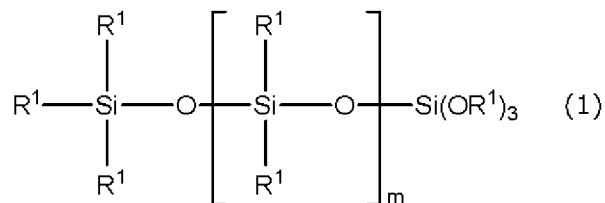
中に2個以上有することが必要であり、直鎖状でも分岐状でもよく、またこれら2種以上の異なる粘度の混合物でもよい。ケイ素原子に結合する残余の有機基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、ドデシル基等のアルキル基、フェニル基等のアリール基、2-フェニルエチル基、2-フェニルプロピル基等のアラルキル基が例示され、さらにクロロメチル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基等の置換炭化水素基も例として挙げられる。これらのうち、合成の容易さ、コストの面からメチル基が好ましい。

[0029] (D)成分の配合量は、{(D)成分のSi-H基の個数} / {(A)成分のアルケニル基の個数}が0.5~1.5となる量であり、0.7~1.3の範囲がより好ましい。(D)成分の配合量が上記下限未満であると組成を十分に網状化できないためグリースが十分に硬化しないし、上記上限を超えると架橋密度が高くなりすぎてしまい伸びが低下するおそれがある。

[0030] (E)成分

(E)成分は、下記一般式(1)で表される加水分解性オルガノポリシロキサンであり、熱伝導性充填材である(B)成分や(C)成分の表面を処理することが可能で、(B)成分や(C)成分をシリコーン成分中に高充填しても、シリコーン組成物の流動性を保ち、組成物に良好な取扱い性を付与することができる。

[化3]



(式中、R<sup>1</sup>は置換基を有していてもよい炭素数1~10の1価炭化水素基を表し、それぞれのR<sup>1</sup>は同一であっても異なってもよい。またmは5~100の整数を示す。)

[0031] 上記式(1)中のR<sup>1</sup>は置換基を有していてもよい炭素数1~10の1価炭

化水素基を表し、それぞれのR<sup>1</sup>は同一であっても異なっていてもよい。R<sup>1</sup>としては、例えばメチル基が挙げられる。mは5～100の整数、好ましくは10～60の整数である。mの値が5より小さいと、シリコン組成物由来のオイルブリードがひどくなり信頼性が悪くなるおそれがある。また、mの値が100より大きいと、充填材の濡れ性が十分でなくなるおそれがある。

[0032] (E)成分の量は、組成物全体に対し0.1～10質量%、好ましくは1～6質量%の範囲である。(E)成分の量が上記下限未満であると十分な濡れ性を発揮できない恐れがあり、上記上限を超えると組成物からのブリードがひどくなるおそれがある。

[0033] (F)成分

(F)成分は、白金族金属触媒であり、(A)成分中の脂肪族不飽和炭化水素基と(D)成分のSi-H基との間の付加反応の促進成分である。白金族金属触媒は、付加反応に用いられる従来公知のものを使用することができる。例えば白金系、パラジウム系、ロジウム系の触媒が挙げられるが、中でも比較的入手しやすい白金または白金化合物が好ましい。例えば、白金の単体、白金黒、塩化白金酸、白金-オレフィン錯体、白金-アルコール錯体、白金配位化合物等が挙げられる。白金系触媒は1種類単独でも2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

[0034] (F)成分の配合量は触媒としての有効量、即ち、付加反応を促進して本発明の組成物を硬化させるために必要な有効量であればよい。(A)成分の質量に対し、白金族金属原子に換算した質量基準で0.1～500ppmが好ましく、より好ましくは1～200ppmである。触媒の量が上記範囲内であれば、触媒としての効果が得られ、経済的であるため好ましい。

[0035] (G)成分

本発明の高熱伝導性シリコン組成物には、室温でのヒドロシリル化反応の進行を抑え(即ち、(F)成分の触媒活性を抑制する)、シェルライフ、ポットライフを延長させるための制御剤として、さらに(G)成分を含有

することができる。制御剤としては、従来公知のものを使用することができる。アセチレン化合物、窒素化合物、有機りん化合物、オキシム化合物、有機クロロ化合物が好ましい。

[0036] (G)成分の配合量は(A)成分に対して0.1質量%以上であれば十分なシェルフライフやポットライフが得られ、5質量%以下であれば硬化速度が維持できるため、0.1～5質量%の範囲が好ましく、0.1～1質量%の範囲がより好ましく、0.1～0.5質量%の範囲がさらに好ましい。これらは高熱伝導性シリコーン組成物への分散性を良くするためにトルエン等で希釈して使用してもよい。

[0037] その他の成分

本発明の高熱伝導性シリコーン組成物には上記した(A)～(G)成分以外に、付加硬化型シリコーン組成物の劣化を防ぐために、2,6-ジ-tert-ブチルー4-メチルフェノール等の、従来公知の酸化防止剤を必要に応じて含有してもよい。さらに、耐熱向上剤、接着助剤、離型剤、染料、顔料、難燃剤、沈降防止剤、又はチクソ性向上剤等を必要に応じて配合することができる。

[0038] 本発明のグリースを製造するには(A)～(G)成分とその他の成分を、例えばトリミックス、ツウィンミックス、プラネタリミキサー(何れも井上製作所(株)製混合機の登録商標)、ウルトラミキサー(みずほ工業(株)製混合機の登録商標)、ハイビスディスパーミックス(特殊機化工業(株)製混合機の登録商標)等の混合機にて混合する。

[0039] また、本発明の高熱伝導性シリコーン組成物は、加熱しながら混合してもよく、加熱条件は特に制限されるものではないが、温度は通常25～220℃、好ましくは40～200℃、より好ましくは50～200℃であり、時間は通常3分～24時間、好ましくは5分～12時間、より好ましくは10分～6時間である。また加熱時に脱気を行ってもよい。

[0040] 本発明の高熱伝導性シリコーン組成物は、25℃にてマルコム粘度計(タイプPC-1TL)を用いて測定される絶対粘度が、50～1,000Pa

・sの範囲であり、好ましくは100～800Pa・s、より好ましくは150～600Pa・sである。絶対粘度が上記範囲の下限未満であると、保存時に経時で熱伝導性充填材が沈降するなど、作業性が悪くなるおそれがある。また上記範囲の上限を超えると、伸展性が乏しくなり、作業性が悪化するおそれがある。

[0041] 本発明の高熱伝導性シリコン組成物は、ISO 22007-2準拠のホットディスク法において、7W/m・K以上の熱伝導率を有する。熱伝導率は高ければ高いほど好ましいので上限値は決められないが、例えば30W/m・K以下とすることができる。熱伝導率は、京都電子工業（株）製のModel QTM-500で測定できる。

[0042] 本発明の高熱伝導性シリコン組成物は、150℃にて60分間加熱硬化して2mm厚シートを作製した後、JIS K6251に記載の2号ダンベルの形状を作製して測定した伸びが30%以上であることが好ましく、35%以上がより好ましく、さらに好ましくは40%以上である。伸びは高ければ高いほど好ましいので上限値は決められないが、例えば200%以下とすることができる。伸び（切断時伸び）が30%以上であれば、高温保存時に剥離が発生しづらく、熱抵抗が悪化するおそれがない。

## 実施例

[0043] 以下、実施例及び比較例を用いて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0044] <組成物の試験>

本発明に関わる効果に関する試験は次のように行った。

[0045] [粘度]

高熱伝導性シリコン組成物の絶対粘度は、マルコム粘度計（タイプPC-1TL）を用いて25℃で測定した。

[0046] [熱伝導率]

各高熱伝導性シリコン組成物を3cm厚の型に流し込みキッチン用ラップをかぶせて、25℃における熱伝導率をISO 22007-2準拠のホ

ットディスク法において、京都電子工業（株）製のModel QTM-500で測定した。

[0047] [熱抵抗測定]

15mm×15mm×1mm tのSiチップと15mm×15mm×1mm tのNiプレートの上に、高熱伝導性シリコン組成物を挟み込み、高熱伝導性シリコン組成物を150℃のオーブンで60分間加熱硬化させ、熱抵抗測定用の試験片を作製した。さらにその後、試験片を150℃で1000時間放置して熱抵抗の変化を観察した。なお、この熱抵抗測定はナノフラッシュ（ニッチェ社製、LFA447）によって行った。

[0048] [切断時伸び]

各高熱伝導性シリコン組成物を150℃にて60分間加熱硬化して2mm厚シートを作製した後、JIS K6251に記載の2号ダンベルの形状を作製して切断時伸びを測定した。なお、この切断時伸びの測定はAGS-X（島津製作所（株）社製）によって行った。

[0049] [硬化物硬度]

高熱伝導性シリコン組成物を150℃のオーブンで60分間加熱硬化させ、硬化物硬度測定用の試験片を作製した。硬化物硬度の測定はJIS S6050：2008規定のAskercによって行った。

[0050] <組成物の調製>

本発明の高熱伝導性シリコン組成物を形成する以下の各成分を用意した。なお、動粘度はウベローデ型オストワルド粘度計による25℃の値を示す。平均粒径は、体積基準の体積平均径であり、日機装（株）製マイクロトラックMT3300EXにより測定した。

[0051] (A) 成分

A-1：両末端がトリビニルシリル基で封鎖され、25℃における動粘度が1,500mm<sup>2</sup>/sのジメチルポリシロキサン

A-2：両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖され、25℃における動粘度が30,000mm<sup>2</sup>/sのジメチルポリシロキサン

## [0052] (B) 成分

B-1 : 平均粒径 60  $\mu\text{m}$  のアルミニウム粉末

B-2 : 平均粒径 45  $\mu\text{m}$  のアルミニウム粉末 (比較例)

## [0053] (C) 成分

C-1 : 平均粒径 10  $\mu\text{m}$  のアルミニウム粉末

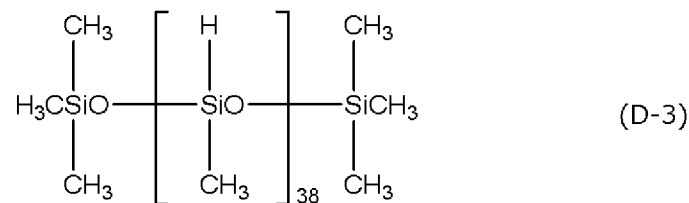
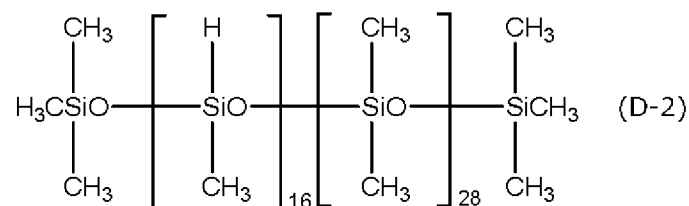
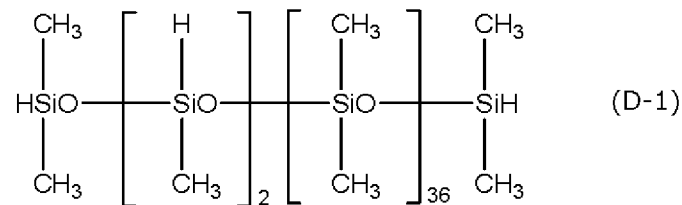
C-2 : 平均粒径 1.5  $\mu\text{m}$  のアルミニウム粉末

C-3 : 平均粒径 1.0  $\mu\text{m}$  の酸化亜鉛粉末

## [0054] (D) 成分

下記式 (D-1) ~ (D-3) で表されるオルガノヒドロジェンポリシロキサン

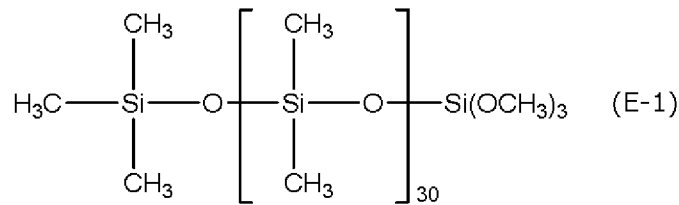
## [化4]



## [0055] (E) 成分

下記式 (E-1) で表される加水分解性オルガノポリシロキサン

[化5]



[0056] (F) 成分

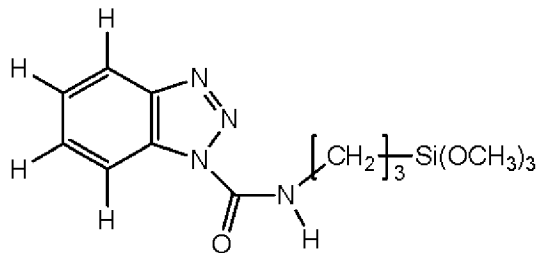
F-1：白金—ジビニルトトラメチルジシロキサン錯体が両末端がジメチルビニルシリル基で封鎖され、25℃における動粘度が600mm<sup>2</sup>/sのジメチルポリシロキサンに溶解された溶液、白金原子として1質量%含有

[0057] (G) 成分

G-1：1-エチル-1-シクロヘキサノール

[0058] 耐熱向上剤：下記式で表される化合物

[化6]



[0059] (A) 成分～(G) 成分及び耐熱向上剤を以下のように配合して実施例1～6及び比較例1～6のシリコーン組成物を得た。

即ち、5リットルプラネタリーミキサー（井上製作所（株）社製）に（A）、（B）、（C）及び（E）成分を加え、170℃で1時間混合した。常温になるまで冷却し、次に（F）、（G）及び（D）成分と耐熱向上剤を加え均一になるように混合し、シリコーン組成物を調製した。

[0060]

[表1]

		実施例					
		1	2	3	4	5	6
(A) 成分	A-1	60	60	50	60	60	50
	A-2	40	40	50	40	40	50
(B) 成分	B-1	4230	5593	5593	8507	8507	8507
	B-2						
(C) 成分	C-1	1890	2499	2499	3801	3801	3801
	C-2	1440	1904	1904	2896	2896	2896
	C-3	1440	1904	1904	2896	2896	2896
(D) 成分	D-1	11.8	11.8	7.14			
	D-2			0.84	3.23	2.58	1.08
	D-3					0.22	0.36
(E) 成分	E-1	500	600	600	900	900	900
(F) 成分	F-1	1.62	1.62	1.62	1.62	1.62	1.62
(G) 成分	G-1	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
耐熱向上剤		0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06
(B)および(C)成分含有量(質量%)		93.6	94.3	94.4	94.7	94.7	94.8
$\frac{\{(D)成分のSi-H\}}{\{(A)成分のSi-Vi\}}$ (個数比)		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
粘度 [Pa·s]		215	280	300	310	315	310
熱伝導率 [W/m·K]		7.5	9.1	9.4	10.1	10.2	10.2
硬化物硬度 (Asker C)		20	14	18	20	21	17
切断時伸び [%]		60	40	38	35	35	40
熱抵抗 [mm <sup>2</sup> K/W]		17	17	18	16	17	17
150°C、1000時間後の熱抵抗 [mm <sup>2</sup> K/W]		16	17	17	17	16	16

[0061]

[表2]

		比較例					
		1	2	3	4	5	6
(A) 成分	A-1	60	60	60	60	60	60
	A-2	40	40	40	40	40	40
(B) 成分	B-1	1645	9400		5593	5593	11900
	B-2			3018			
(C) 成分	C-1	735	4200	2518	2499	2499	
	C-2	560	3200	2009	1904	1904	
	C-3	560	3200	1545	1904	1904	
(D) 成分	D-1	11.8			18.8	5.3	
	D-2		2.58	2.58			2.58
	D-3		0.22	0.22			0.22
(E) 成分	E-1	320	900	600	600	600	600
(F) 成分	F-1	1.08	1.62	1.62	1.62	1.62	1.62
(G) 成分	G-1	0.23	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
耐熱向上剤		0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06
(B) および (C) 成分含有量 (質量%)		89.0	95.2	94.7	94.3	94.4	94.4
$\frac{\{(D) \text{成分の } S_{i-H}\}}{\{(A) \text{成分の } S_{i-Vi}\}}$ (個数比)		1.0	1.0	1.0	1.6	0.45	1.0
粘度 [Pa·s]		250	* 1	310	275	270	* 3
熱伝導率 [W/m·K]		5.1		7.2	9.1	9.3	
硬化物硬度 (Asker C)		20		22	42	* 2	
切断時伸び [%]		75		36	15		
熱抵抗 [mm <sup>2</sup> K/W]		16		9	18		
150℃、1000時間後の熱抵抗 [mm <sup>2</sup> K/W]		17		16	22		

\* 1 ; グリース状にならないため測定不可

\* 2 ; 硬化しないため測定不可

\* 3 ; シリコンオイルが分離し、不均一となるため測定不可

[0062] 表1及び表2の結果より、本発明の要件を満たす実施例1～6の高熱伝導性シリコン組成物では、熱伝導率7W/m·K以上であり、高温保存後の熱抵抗がほとんど変化しない。熱伝導性充填材である(B)成分および(C

）成分の合計量が少ない比較例1では十分な熱伝導率とならず、比較例2では熱伝導性充填材の含有量が多すぎるためグリース状にならない。また、比較例3に関しては、（B）成分として平均粒径50 $\mu$ m未満のアルミニウム粉を含有しており、材料厚みが薄いため、高温保存時の熱抵抗が悪化した。さらに比較例4および5では、 $\{（D）成分のSi-H基の個数\} / \{（A）成分のSi-V基の個数\}$ の比が低すぎると組成物が十分に硬化せず、一方、高すぎると硬くなりすぎてしまい伸びが低くなってしまうため、高温保存後の熱抵抗が悪化した。比較例6では熱伝導性充填材として（B）成分のみを使用したところ、充填性が悪くなり、シリコンオイルが分離し、不均一となった。従って、本発明の高熱伝導性シリコン組成物では、高熱伝導率を有し、高温保存後に熱抵抗が悪化せず放熱性能を維持することが可能である。

[0063] [産業上の利用可能性]

本発明の高熱伝導性シリコン組成物は、材料厚みが厚いため、大きい基材の反りにも追従することが可能であり、さらに、高熱伝導率を有することから材料厚みが厚い場合でも高い熱性能を担保することができる。また、伸びが高いため、高温保存後の熱抵抗が悪化せず、使用中に熱が発生する電子部品からの除熱に使用する高信頼性の放熱グリースとして特に好適に利用することができる。

[0064] なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

## 請求の範囲

[請求項1]

高熱伝導性シリコーン組成物であって、

(A) 1分子中に少なくとも2個の脂肪族不飽和炭化水素基を有し、25℃での動粘度が100～100,000mm<sup>2</sup>/sのオルガノポリシロキサン、

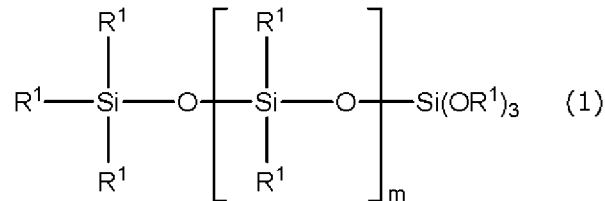
(B) 平均粒径が50μm以上であるアルミニウム粉末、

(C) 平均粒径が0.1～50μm未満である熱伝導性充填材、

(D) 1分子中に2個以上のケイ素原子に結合した水素原子(Si-H基)を有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン：{前記(D)成分のSi-H基の個数} / {前記(A)成分中のアルケニル基の個数}が0.5～1.5となる量、

(E) 下記一般式(1)で表される加水分解性オルガノポリシロキサン：組成物全体に対し0.1～10質量%、

[化1]



(式中、R<sup>1</sup>は置換基を有していてもよい炭素数1～10の1価炭化水素基を表し、それぞれのR<sup>1</sup>は同一であっても異なってもよい。またmは5～100の整数を示す。)

(F) 白金族金属触媒：有効量

を含有する前記(B)成分と前記(C)成分の合計が組成物全体に対して90～95質量%であり、前記高熱伝導性シリコーン組成物の25℃における熱伝導率がISO 22007-2準拠のホットディスク法において、7W/m・K以上であり、25℃における絶対粘度が50～1,000Pa・sである高熱伝導性シリコーン組成物。

[請求項2]

さらに、(G) 前記(F)成分の触媒活性を抑制するアセチレン化

合物、窒素化合物、有機りん化合物、オキシム化合物、有機クロロ化合物より選択される制御剤：前記（A）成分の合計に対して0.1質量%～5質量%となる量

を含む請求項1に記載の高熱伝導性シリコン組成物。

[請求項3]

前記高熱伝導性シリコン組成物を150℃にて60分間加熱硬化して2mm厚シートを作製した後、JIS K6251に記載の2号ダンベルの形状を作製して測定した伸びが30%以上である請求項1又は請求項2に記載の高熱伝導性シリコン組成物。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/017129

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
C08L 83/05(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/08(2006.01)i FI: C08L83/07; C08K3/013; C08K3/08; C08L83/05; C09K5/14 101E According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08L83/05; C08L83/07; C09K5/14; C08K3/013; C08K3/08		
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	1971-2021	
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021	
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021	
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/159252 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 21 September 2017 (2017-09-21) paragraphs [0023], [0029], examples 5, 7 (paragraphs [0052]-[0083], table 1)	1-3
X	JP 2016-11322 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 21 January 2016 (2016-01-21) paragraphs [0045], [0056], example 3 (paragraphs [0067]-[0085], table 1)	1-3
A	WO 2018/230189 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 20 December 2018 (2018-12-20) paragraph [0052]	1-3
A	WO 2014/181657 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 13 November 2014 (2014-11-13)	1-3
<input checked="" 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		"I" 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 14 June 2021 (14.06.2021)	Date of mailing of the international search report 22 June 2021 (22.06.2021)	
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/JP2021/017129

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2000-256558 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 19 September 2000 (2000-09-19)	1-3
A	WO 2014/188667 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 27 November 2014 (2014-11-27)	1-3
A	JP 2016-98337 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 30 May 2016 (2016-05-30)	1-3

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
Information on patent family members

International application No.  
PCT/JP2021/017129

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2017/159252 A1	21 Sep. 2017	US 2019/0002694 A1 paragraphs [0046], [0055], working examples 5, 7 (paragraphs [0089]- [0119], table 1) CN 108603033 A KR 10-2018-0127325 A	
JP 2016-11322 A	21 Jan. 2016	(Family: none)	
WO 2018/230189 A1	20 Dec. 2018	TW 201906934 A	
WO 2014/181657 A1	13 Nov. 2014	US 2016/0096984 A1 EP 2995651 A1 CN 105164208 A KR 10-2016-0006689 A RU 2015152054 A	
JP 2000-256558 A	19 Sep. 2000	US 6306957 B1 TW 444045 B	
WO 2014/188667 A1	27 Nov. 2014	US 2016/0060462 A1 CN 105246977 A KR 10-2016-0012137 A	
JP 2016-98337 A	30 May 2016	US 2017/0260392 A1 US 2020/0071526 A1 EP 3225662 A1 CN 107001802 A KR 10-2017-0090440 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L 83/05(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/08(2006.01)i FI: C08L83/07; C08K3/013; C08K3/08; C08L83/05; C09K5/14 101E</p>																										
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L83/05; C08L83/07; C09K5/14; C08K3/013; C08K3/08</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年																
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																									
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年																									
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年																									
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年																									
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2017/159252 A1 (信越化学工業株式会社) 21.09.2017 (2017-09-21) [0023], [0029], 実施例 5, 7 ([0052]-[0083], [表1])</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2016-11322 A (信越化学工業株式会社) 21.01.2016 (2016-01-21) [0045], [0056], 実施例 3 ([0067]-[0085], [表1])</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2018/230189 A1 (信越化学工業株式会社) 20.12.2018 (2018-12-20) [0052]</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2014/181657 A1 (信越化学工業株式会社) 13.11.2014 (2014-11-13)</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2000-256558 A (信越化学工業株式会社) 19.09.2000 (2000-09-19)</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2014/188667 A1 (信越化学工業株式会社) 27.11.2014 (2014-11-27)</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2016-98337 A (信越化学工業株式会社) 30.05.2016 (2016-05-30)</td> <td>1-3</td> </tr> </tbody> </table>			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	WO 2017/159252 A1 (信越化学工業株式会社) 21.09.2017 (2017-09-21) [0023], [0029], 実施例 5, 7 ([0052]-[0083], [表1])	1-3	X	JP 2016-11322 A (信越化学工業株式会社) 21.01.2016 (2016-01-21) [0045], [0056], 実施例 3 ([0067]-[0085], [表1])	1-3	A	WO 2018/230189 A1 (信越化学工業株式会社) 20.12.2018 (2018-12-20) [0052]	1-3	A	WO 2014/181657 A1 (信越化学工業株式会社) 13.11.2014 (2014-11-13)	1-3	A	JP 2000-256558 A (信越化学工業株式会社) 19.09.2000 (2000-09-19)	1-3	A	WO 2014/188667 A1 (信越化学工業株式会社) 27.11.2014 (2014-11-27)	1-3	A	JP 2016-98337 A (信越化学工業株式会社) 30.05.2016 (2016-05-30)	1-3
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	WO 2017/159252 A1 (信越化学工業株式会社) 21.09.2017 (2017-09-21) [0023], [0029], 実施例 5, 7 ([0052]-[0083], [表1])	1-3																								
X	JP 2016-11322 A (信越化学工業株式会社) 21.01.2016 (2016-01-21) [0045], [0056], 実施例 3 ([0067]-[0085], [表1])	1-3																								
A	WO 2018/230189 A1 (信越化学工業株式会社) 20.12.2018 (2018-12-20) [0052]	1-3																								
A	WO 2014/181657 A1 (信越化学工業株式会社) 13.11.2014 (2014-11-13)	1-3																								
A	JP 2000-256558 A (信越化学工業株式会社) 19.09.2000 (2000-09-19)	1-3																								
A	WO 2014/188667 A1 (信越化学工業株式会社) 27.11.2014 (2014-11-27)	1-3																								
A	JP 2016-98337 A (信越化学工業株式会社) 30.05.2016 (2016-05-30)	1-3																								
<p><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。</p>																										
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&amp;” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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	“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	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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													
* 引用文献のカテゴリー	“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																									
“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	“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																									
“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	“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																									
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献																									
“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																										
<p>国際調査を完了した日</p> <p>14.06.2021</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>22.06.2021</p>																									
<p>名称及びあて先</p> <p>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</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>古妻 泰一 4J 4804</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																									

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/JP2021/017129

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2017/159252	A1	21.09.2017	US	2019/0002694	A1	
					[0046], [0055], Working example 5, 7 ([0089]- [0119], TABLE 1)		
				CN	108603033	A	
				KR	10-2018-0127325	A	
JP	2016-11322	A	21.01.2016	(ファミリーなし)			
WO	2018/230189	A1	20.12.2018	TW	201906934	A	
WO	2014/181657	A1	13.11.2014	US	2016/0096984	A1	
				EP	2995651	A1	
				CN	105164208	A	
				KR	10-2016-0006689	A	
				RU	2015152054	A	
JP	2000-256558	A	19.09.2000	US	6306957	B1	
				TW	444045	B	
WO	2014/188667	A1	27.11.2014	US	2016/0060462	A1	
				CN	105246977	A	
				KR	10-2016-0012137	A	
JP	2016-98337	A	30.05.2016	US	2017/0260392	A1	
				US	2020/0071526	A1	
				EP	3225662	A1	
				CN	107001802	A	
				KR	10-2017-0090440	A	