

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-178694
(P2017-178694A)

(43) 公開日 平成29年10月5日(2017.10.5)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C O 1 B 21/064 (2006.01)	C O 1 B 21/064	M
B 8 2 Y 30/00 (2011.01)	B 8 2 Y 30/00	
B 8 2 Y 40/00 (2011.01)	B 8 2 Y 40/00	

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2016-69056 (P2016-69056)
(22) 出願日 平成28年3月30日 (2016. 3. 30)

(71) 出願人 301021533
国立研究開発法人産業技術総合研究所
東京都千代田区霞が関1-3-1

(74) 代理人 100107766
弁理士 伊東 忠重

(74) 代理人 100070150
弁理士 伊東 忠彦

(72) 発明者 佐藤 公泰
愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ
洞2266番地の98 国立研究開発法人
産業技術総合研究所 中部センター内

(72) 発明者 富永 雄一
愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ
洞2266番地の98 国立研究開発法人
産業技術総合研究所 中部センター内
最終頁に続く

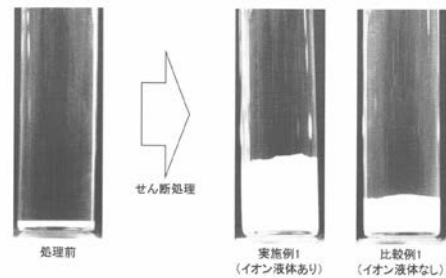
(54) 【発明の名称】 窒化ホウ素ナノシートの製造方法

(57) 【要約】

【課題】シート面積が大きく薄い窒化ホウ素ナノシートを、高効率でかつ大量に、低コストで製造することを可能にする、窒化ホウ素ナノシートの製造方法を提供する。

【解決手段】六方晶系窒化ホウ素粉末を、水系溶媒及び/又は有機溶媒並びにイオン液体に分散させた分散液を得て、せん断力をかけて処理し、前記六方晶系窒化ホウ素粉末における結晶の層間を剥離させることを含み、前記イオン液体の量が、前記水系溶媒及び/又は有機溶媒100重量%に対して0.1重量%以上、50重量%以下であることを特徴とする。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

六方晶系窒化ホウ素粉末を、水系溶媒及び／又は有機溶媒並びにイオン液体に分散させた分散液を得て、せん断力をかけて処理し、前記六方晶系窒化ホウ素粉末における結晶の層間を剥離させることを含み、前記イオン液体の量が、前記水系溶媒及び／又は有機溶媒 100 重量%に対して 0.1 重量%以上、50 重量%以下であることを特徴とする、窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

【請求項 2】

前記せん断処理が湿式ジェットミル、回転ディスクミル、遊星ホモジナイザー、三本ロールミル、高圧ホモジナイザー、高速攪拌からなる群から選択される少なくとも一種の処理法を含むものである、請求項 1 に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

10

【請求項 3】

前記せん断処理における、単一粒子に対する印加工エネルギーが、 1×10^{-9} J 以上、 1×10^{-7} J 以下である、請求項 1 又は 2 に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

【請求項 4】

前記イオン液体が、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-メチル-3-プロピルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-デシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ドデシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、テトラエチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(フルオロスルホニル)イミド、1,3-ジメチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-プロピル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウム(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-プロピルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ヘキシルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-2-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-3-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-4-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-エチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチルピリジニウムテトラフルオロボラート、1-メトキシエチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-イソプロピルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシルピリジニウムテトラフルオロボラート、1-ヘキシルピリジニウムビス(フルオロスルホニル)イミド、1-メチル-1-プロピルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-メトキシメチル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-メトキシエチル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-イソプロピル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミドからなる群から選択される少なくとも一種である、請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

20

30

40

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、窒化ホウ素ナノシートの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

窒化ホウ素には、六方晶系と立方晶系の2つの結晶構造があり、それぞれ黒鉛とダイヤモンドに類似した構造である。六方晶系は、ホウ素原子と窒素原子が交互に正六角形の頂点に位置する層状の六角網面構造を持つ。層間にファンデルワールス力が働き、六角網面が積層した構造をとっている。

10

【0003】

窒化ホウ素は、化学的安定性、耐熱性、中性子吸収性、電氣的絶縁性、熱伝導性に優れた白色の無機化合物である。過酷な環境において使用する固体潤滑剤、電氣的絶縁性及び/又は高熱伝導性フィラー等として用いられている。

【0004】

近年、層状の結晶構造を持つ無機化合物に対して、層間を剥離させナノシート化させることで、新規な機能を付与する試みが多くなされている（非特許文献1）。

【0005】

六方晶系窒化ホウ素についても、ナノシート化の試みがなされている。スコッチテープ（商標）による剥離を繰り返すことで、窒化ホウ素ナノシートを得ることが可能である（非特許文献2）。

20

【0006】

スコッチテープ法は極端に生産性が低いため、機械的解砕処理の手法を用いて窒化ホウ素粒子を剥離させ、ナノシートを得る試みがなされている。機械的解砕処理の手法としては、湿式ジェットミル、回転ディスクミル、遊星ホモジナイザー、三本ロールミル、高圧ホモジナイザー、高速攪拌などが挙げられる（非特許文献3-5、特許文献1）。

【0007】

また、六方晶系窒化ホウ素とイオン液体とを混合処理し、窒化ホウ素の層間を剥離せしめて窒化ホウ素ナノシートを製造することも知られている（特許文献2）。

【先行技術文献】

30

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特開2011-079715号公報

【特許文献2】特開2015-187057号公報

【非特許文献】

【0009】

【非特許文献1】V. Nicolosiほか、Science 340巻、1420頁、2013年

【非特許文献2】D. Pacileほか、Appl. Phys. Lett. 92巻、133107頁、2008年

【非特許文献3】A. Pakdelほか、Mater. Today 15巻、256頁、2012年

【非特許文献4】Y. Tominagaほか、J. Ceram. Soc. Jpn. 123巻、512頁、2015年

40

【非特許文献5】Y. Tominagaほか、Ceram. Int. 41巻、10512頁、2015年

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

窒化ホウ素のナノシート化は、より層数が少なく、薄いシート形態を得ることが目的である。現状最も高効率にナノシートを得られる剥離方法は湿式ジェットミルであるが、それでもシートの平均厚さは50nm程度である。窒化ホウ素ナノシートの材料としての機能を高めるためには、さらに剥離を進行させることが必要である。

【0011】

一方、特許文献2の方法は、高価なイオン液体を大量に必要とするため、実用化は難し

50

い。

【0012】

本発明は、上述した現状に鑑み、六方晶系窒化ホウ素が層状に剥離されている形態の窒化ホウ素ナノシートであって、層数が少なく薄い窒化ホウ素ナノシートを低コストで製造する方法を提供することを目的としてなされたものである。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明の窒化ホウ素ナノシートの製造方法は、六方晶系窒化ホウ素粉末を、水系溶媒及び/又は有機溶媒並びにイオン液体に分散させた分散液を得て、せん断力をかけて処理すること、前記イオン液体の量が、前記水系溶媒及び/又は有機溶媒100重量%に対して0.1重量%以上、50重量%以下であることを特徴とする。

10

【0014】

[1] 六方晶系窒化ホウ素粉末を、水系溶媒及び/又は有機溶媒並びにイオン液体に分散させた分散液を得て、せん断力をかけて処理し、前記六方晶系窒化ホウ素粉末における結晶の層間を剥離させることを含み、前記イオン液体の量が、前記水系溶媒及び/又は有機溶媒100重量%に対して0.1重量%以上、50重量%以下であることを特徴とする、窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

【0015】

[2] 前記せん断処理が湿式ジェットミル、回転ディスクミル、遊星ホモジナイザー、三本ロールミル、高圧ホモジナイザー、高速攪拌からなる群から選択される少なくとも一種の処理法を含むものである、前記[1]に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

20

【0016】

[3] 前記せん断処理における、単一粒子に対する印加工エネルギーが、 1×10^{-9} J以上、 1×10^{-7} J以下である、前記[1]又は[2]に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

【0017】

[4] 前記イオン液体が、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-メチル-3-プロピルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-デシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ドデシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、テトラエチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(フルオロスルホニル)イミド、1,3-ジメチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-プロピル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウム(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-エチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-プロピルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ヘキシルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-2-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-3-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-4-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、1-エチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファ

30

40

50

ート、1-ブチルピリジニウムテトラフロオロボラート、1-メトキシエチルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-イソプロピルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシルピリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-ヘキシルピリジニウムテトラフルオロボラート、1-ヘキシルピリジニウムビス(フルオロスルホニル)イミド、1-メチル-1-プロピルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-メトキシメチル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-メトキシエチル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、1-イソプロピル-1-メチルピロリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミドからなる群から選択される少なくとも一種である、前記[1]~[3]のいずれか1項に記載の窒化ホウ素ナノシートの製造方法。

10

【発明の効果】

【0018】

本発明のナノシートの製造方法は、シートを破壊して微細化することなく、高効率に六方晶系窒化ホウ素粉末を剥離させ、シート面積が大きく薄い窒化ホウ素ナノシートを低コストで得ることができるという、従来の製造方法と比較して有利な効果を奏するものである。

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】実施例1と比較例1において、六方晶系窒化ホウ素粉末の分散液を湿式ジェットミル処理したものを静置し、沈降高さを比較した写真である。

20

【図2】放射光による粉末X線回折測定の結果から見積もった、ナノシートの大きさと厚さの変化を示すチャートである。

【発明を実施するための形態】

【0020】

以下、本発明の窒化ホウ素ナノシートの製造方法を実施するための最良の形態について具体的に説明する。但し、本発明は、六方晶系窒化ホウ素粉末を水系溶媒及び/又は有機溶媒に分散させた分散液にイオン液体分子を添加して、せん断力をかけて処理し、窒化ホウ素結晶の層間を剥離させるという思想に基づく窒化ホウ素ナノシート、スラリー、無機/有機複合材料及びその製造方法を広く包含するものであり、以下に説明する実施形態に限定して解釈されるべきではない。

30

【0021】

[1] 第1工程

本発明の製造方法の第1工程は、六方晶系窒化ホウ素粉末(h-BN)を、水系溶媒及び/又は有機溶媒並びにイオン液体(イオン液体分子)に分散させた分散液を得る工程である。この第1工程は、六方晶系窒化ホウ素粉末を水系溶媒及び/又は有機溶媒に分散させた分散液にイオン液体を添加する工程であってよいし、予め均一に混合した水系溶媒及び/又は有機溶媒とイオン液体とからなる液体に、六方晶系窒化ホウ素粉末を分散させてもよい。また、六方晶系窒化ホウ素粉末と、水系溶媒及び/又は有機溶媒と、イオン液体とを混合して分散液を得てもよい。

40

【0022】

上記の分散の操作においては、自公転ミキサー、超音波ホモジナイザー等の装置を使用することができる。

【0023】

窒化ホウ素粉末を分散させる水系溶媒及び/又は有機溶媒については、イオン液体と相溶性があれば特に制限はないが、前記有機溶媒としては、例えば、水、クロロホルム、ジクロロメタン、四塩化炭素、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル、酢酸ペンチル、酢酸イソペンチル、酢酸アミル、テトラヒドロフラン、N-メチル-2-ピロリドン、ジメチルホルムアルデヒド、ジメチルアセトアミ

50

ド、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、ヘキサノール、オクタノール、ヘキサフルオロイソプロパノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、テトラメチレングリコール、テトラエチレングリコール、ヘキサメチレングリコール、ジエチレングリコール、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、クロロフェノール、フェノール、スルホラン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、 γ -ブチロラクトン、N-ジメチルピロリドン、ペンタン、ヘキサン、ネオペンタン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、イソオクタン、ノナン、デカン、ジエチルエーテル等が挙げられる。中でも、窒化ホウ素粉末との親和性が強い、イオン液体との相溶性が高い等の理由から、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチル-2-ピロリドン、エタノール等の溶媒が好ましい。また、溶媒は1種を単独で用いても2種以上を混合して用いてもよい。

10

【0024】

イオン液体と前記水系溶媒及び/又は有機溶媒との混合比率については、特に制限はないが、イオン液体は、水系溶媒及び/又は有機溶媒100重量%に対して0.01重量%以上を添加することが望ましく、0.1重量%以上を添加することがより望ましい。イオン液体の添加量が0.01重量%以上であれば、窒化ホウ素粉末中の結晶の層間剥離が十分に促進される。

【0025】

また、イオン液体の量は、水系溶媒及び/又は有機溶媒100重量%に対して50重量%以下とすることができる。使用するイオン液体の量を50重量%以下とすることで、窒化ホウ素結晶の層間を剥離させる効果を維持しつつ、製造のコストを削減することができる。

20

【0026】

なお、イオン液体は現状では極めて高価であるので、イオン液体の使用量は少ないことが好ましい。そこで、本発明者らは鋭意検討した結果、使用するイオン液体の量が微量であっても、窒化ホウ素の結晶の層間剥離の効果が十分に得られる製造方法を見出した。つまり、本発明によれば、六方晶系窒化ホウ素粉末を高効率で剥離させ、シート面積が大きく薄い窒化ホウ素ナノシートが得られ、且つ製造コストを抑えることができる。

【0027】

六方晶系窒化ホウ素粉末の粒径については特に制限されないが、100nm~50 μ mが好ましく、1 μ m~20 μ mがより好ましい。粒径100nm未満の粉末は取り扱いが困難であり、また粒径が50 μ mより大きいと溶媒に分散できない。

30

【0028】

イオン液体としては、イミダゾリウムイオン、ピリジウムイオン、ピロリジウムイオンからなる群から選ばれるカチオンと、ヘキサフルオロフォスファート、テトラフルオロボラート、トリフルオロメタンスルホナート、トリフルオロメタンスルホニルイミド、フルオロスルホニルイミドからなる群から選ばれるアニオンとの組合せにより構成されるイオン液体を用いることができる。

【0029】

イオン液体としては、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-メチル-3-プロピルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-デシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-ドデシル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルホナート、テトラエチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド

40

50

、 1 - エチル - 3 - メチルイミダゾリウムビス (フルオロスルホニル) イミド、 1 , 3 - ジメチルイミダゾリウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - エチル - 3 - メチルイミダゾリウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - プロピル - 3 - メチルイミダゾリウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ブチル - 3 - メチルイミダゾリウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ヘキシル - 3 - メチルイミダゾリウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - オクチル - 3 - メチルイミダゾリウム (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - エチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - プロピルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ヘキシルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ブチル - 2 - メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ブチル - 3 - メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ブチル - 4 - メチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - エチルピリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ブチルピリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ブチルピリジニウムヘキサフルオロホスファート、 1 - ブチルピリジニウムテトラフルオロボラート、 1 - メトキシエチルピリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - イソプロピルピリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ヘキシルピリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - ヘキシルピリジニウムテトラフルオロボラート、 1 - ヘキシルピリジニウムビス (フルオロスルホニル) イミド、 1 - メチル - 1 - プロピルピロリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - メトキシメチル - 1 - メチルピロリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - メトキシエチル - 1 - メチルピロリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、 1 - イソプロピル - 1 - メチルピロリジニウムビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミドからなる群から選択される少なくとも一種が挙げられる。

【 0 0 3 0 】

好ましいイオン液体と溶媒との組合せとしては、相溶性が良いことから、N , N - ジメチルホルムアミドと、 1 - ブチル - 3 - メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラートとの組合せが好ましい。

【 0 0 3 1 】

第 1 工程で得られる分散液には、分散液の調整後又は調整中の段階で、六方晶系窒化ホウ素粉末、溶媒及びイオン液体以外の添加剤、例えば、分散助剤、消泡剤等を添加することができる。

【 0 0 3 2 】

[2] 第 2 工程

本発明の製造方法の第 2 工程は、六方晶系窒化ホウ素粉末、溶媒、及びイオン液体を含む分散液にせん断力をかけて処理し (せん断処理を行い)、分散液中の六方晶系窒化ホウ素粉末を剥離・ナノシート化させる工程である。

【 0 0 3 3 】

せん断処理の手法としては、湿式ジェットミル、回転ディスクミル、遊星ホモジナイザー、三本ロールミル、高圧ホモジナイザー、高速攪拌のうち少なくとも一種の処理法を用いる。

【 0 0 3 4 】

せん断処理において、単一粒子に対する印加工エネルギーは、 1×10^{-9} J 以上、 1×10^{-7} J 以下が好ましい。 1×10^{-9} J 以上とすることで、六方晶系窒化ホウ素の層間の剥離をより促進させることができる。一方で、単一粒子に対する印加工エネルギーが 1×10^{-7} J 以下とすることで、層内での破壊の確率を抑え、広いシート面積を保った窒化ホウ素ナノシートを得ることができる。

【 0 0 3 5 】

なお、上記の単一粒子に対する印加工エネルギーは、六方晶系窒化ホウ素の結晶構造内における化学結合力を考慮して算出された値である。

10

20

30

40

50

【0036】

前記せん断処理の結果として、窒化ホウ素ナノシートが水系溶媒及び/又は有機溶媒に分散した状態のスラリーが得られる。このスラリーを前駆体として用い、このスラリーを無機材料、有機材料、又は無機/有機複合材料等に混入することによって、窒化ホウ素ナノシートを含む材料を調整することができる。材料の調整の方法について特に制限はなく、従来公知の方法から適宜選択すればよい。

【0037】

また、得られたスラリーを、遠心分離等によって分離し、窒化ホウ素ナノシートを得ることもできる。スラリーから分離された窒化ホウ素ナノシートを溶液、分散液等の液体、或いは、無機材料、有機材料、又は無機/有機複合材料等の材料に混入し、材料を調整することができる。

10

【0038】

本発明の製造方法によって、イオン液体を含む窒化ホウ素ナノシートを得ることができる。具体的には、窒化ホウ素ナノシートの表面に、イオン液体の残渣が、分子又はイオンの状態で吸着又は結合したシートを得ることができる。そのため、本発明により得られた窒化ホウ素ナノシートを、水系溶媒及び/又は有機溶媒へ再分散させた場合、表面に付着又は結合して残存しているイオン液体によって、良好な再分散が可能となる。

【0039】

なお、窒化ホウ素ナノシートの表面に付着又は結合したイオン液体の残渣は、洗浄等の追加的な処理によって、低減又は除去することもできる。

20

【実施例】

【0040】

以下、実施例及び比較例により、本発明を更に具体的に説明する。但し、以下の実施例は本発明の一部の実施形態を示すものに過ぎないため、本発明をこれらの実施例に限定して解釈するべきではない。

【0041】

(実施例1)

粒径10 μ mの六方晶系窒化ホウ素粉末(昭和電工株式会社製、製品名:ショウビーエヌ(登録商標)UHP-1)0.3gを、N,N-ジメチルホルムアミド(和光純薬工業株式会社製)120mLに分散させ、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラート0.15gを添加した。これにより、六方晶系窒化ホウ素、溶媒、及びイオン液体を含む分散液を得た。

30

【0042】

前記分散液を、湿式ジェットミル(株式会社ジーナス製、製品名:PRE03-20-SP)によってせん断処理した。具体的には、圧力180MPaの条件で5回の湿式ジェットミル処理を行った。当該条件では、六方晶系窒化ホウ素の単一粒子に対する印加エネルギーは 1×10^{-8} J程度である。

【0043】

上記湿式ジェットミル処理後のスラリーに対し、遠心分離器を用いて遠心分離を行い、濾過した後、乾燥を行って、窒化ホウ素ナノシートを得た。

40

【0044】

(比較例1)

前記1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボラートを添加しないことを除いては、実施例1と同様にして窒化ホウ素粉末の分散液を調整し、湿式ジェットミル処理を行った。

【0045】

(評価)

実施例1で作製した、六方晶系窒化ホウ素粉末の分散液を湿式ジェットミル処理したものと、比較例1で作製した、分散液六方晶系窒化ホウ素粉末の分散液を湿式ジェットミル処理したものとを、沈降試験によって比較した。剥離してナノシート化した六方晶系窒化

50

ホウ素は、シートが薄いほど沈降高さが高くなる。図 1 に示す通り、湿式ジェットミルによるせん断処理によって、比較例 1 は沈降高さが処理前の 6 倍程度に、実施例 1 は処理前の 1.3 倍程度に高くなった。比較例 1 に比して、実施例 1 によって得られた窒化ホウ素ナノシートは薄いことが示された。

【 0 0 4 6 】

更に、実施例 1 で作製した窒化ホウ素ナノシートと比較例 1 で作製した窒化ホウ素ナノシートを、放射光による粉末 X 線回折測定に供した。六方晶系窒化ホウ素の 0 0 2 回折ピークと 1 0 0 回折ピークの幅から、窒化ホウ素ナノシートのサイズを見積もった。

【 0 0 4 7 】

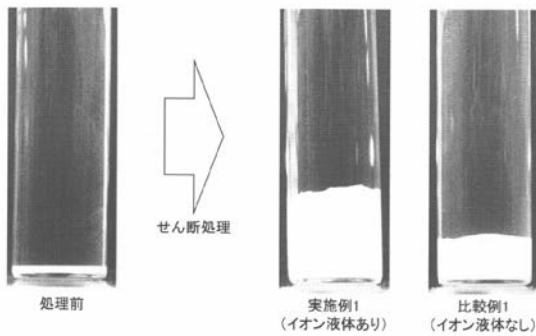
図 2 に、上記見積りに基づくナノシートの大きさと厚さの変化を示すチャートを示す。図 2 では、湿式ジェットミル処理前の六方晶系窒化ホウ素粉末の値を 100% とし、比率で示している。チャートに示す通り、ナノシートの面の大きさ（面積）は湿式ジェットミル処理前、比較例 1、実施例 1 の間に変化はなかった。一方、比較例 1 に比して、実施例 1 によって得られた窒化ホウ素ナノシートはより薄いことが示された。

【 産業上の利用可能性 】

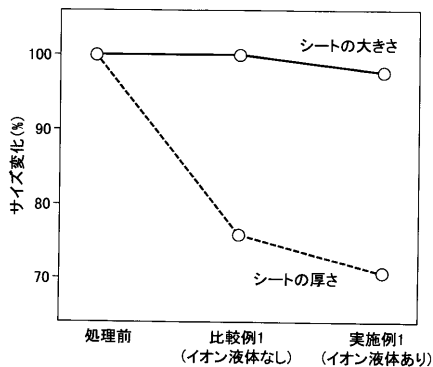
【 0 0 4 8 】

本発明により、シート面積が大きく薄い窒化ホウ素ナノシートを高効率かつ大量に、低コストで製造することが可能となった。窒化ホウ素ナノシートはポリマーと複合化することでポリマーの特性向上に資する。本発明の窒化ホウ素ナノシートをフィラーとして含有したポリマー複合材料は、電気的絶縁性及び/又は高熱伝導性に優れたマイクロエレクトロニクス部材又は LED 封止剤等の光学デバイス素材として利用可能である。

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

(72)発明者 堀田 裕司

愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ洞 2 2 6 6 番地の 9 8 国立研究開発法人産業技術総合
研究所 中部センター内