(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9月24日(24.09.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/189644 A1

(51) 国際特許分類:
B01F 17/52 (2006.01)　*C08K 3/04* (2006.01)
C08F 216/38 (2006.01)　*C08K 3/38* (2006.01)
C08L 29/14 (2006.01)　*C09J 7/38* (2018.01)
C08L 101/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2020/011552

(22) 国際出願日：　2020年3月16日(16.03.2020)

(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 2019-050353　2019年3月18日(18.03.2019)　JP

(71) 出願人：積水化学工業株式会社 (**SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.**) [JP/JP]；〒5308565 大阪府大阪市北区西天満２丁目４番４号 Osaka (JP).

(72) 発明者：水野 翔平 (**MIZUNO, Shohei**)；〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 佐々木 拓 (**SASAKI, Taku**)；〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 石田 浩也 (**ISHIDA, Hiroya**)；〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人：田口 昌浩，外 (**TAGUCHI, Masahiro** et al.)；〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル８階 ダイヤ特許事務所 Tokyo (JP).

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

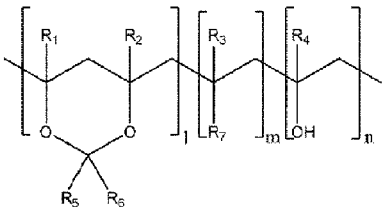
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能)：ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, 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)）

WO 2020/189644 A1

(54) **Title:** DISPERSANT FOR FILLERS AND DISPERSION LIQUID

(54) 発明の名称：充填材用分散剤及び分散液



(1)

(57) **Abstract:** The present invention is a dispersant for fillers, which is composed of a compound (A) that has a structural unit represented by general formula (1). The present invention is able to provide a dispersant for fillers, which is capable of improving the dispersibility of a filler, and which enables the formation of a sheet having good surface properties if the sheet is formed from a dispersion liquid containing the dispersant.

(57) 要約：本発明は、下記一般式（１）で表される構造単位を有する化合物（Ａ）からなる充填材用分散剤である。本発明によれば、充填材の分散性を向上させることができ、かつ分散液からシートを形成する際に、表面性の良好なシートを得ることができる充填材用分散剤を提供することができる。

明　細　書

発明の名称 ： 充填材用分散剤及び分散液

技術分野

[0001] 本発明は、充填材用分散剤及びこれを用いた分散液に関する。

背景技術

[0002] カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブなどの六角網目状構造を有する化合物は、導電性、熱伝導性など優れた特性を有しており、種々の用途に用いられている。例えば、カーボンナノチューブを分散媒（溶媒）に分散させたカーボンナノチューブ分散液を用いて導電性フィルムを製造する技術などが知られている（特許文献１）。また、分散液に樹脂を更に含有させ、これを塗工し、乾燥させることで、樹脂中にカーボンナノチューブが保持されたフィルムを形成させる技術も知られている（特許文献２）。

一般に、六角網目状構造を有する化合物は、表面積が大きいため、凝集が生じやすく、溶液への均一な分散が難しい。そのため、分散剤を用いて、分散性を向上させる試みがなされている。このような観点から、特許文献３には、有機溶剤可溶性樹脂の有機溶剤溶液中に炭素繊維を分散させる際に、分散性を向上させるために添加する特定の構造単位を有する分散剤が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第２０１６／１３６４２８号

特許文献2：国際公開第２０１３／１４７０８７号

特許文献3：特開２００８－２４８４１２号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、従来用いられている分散剤は、カーボンナノチューブ等の充填剤の分散性を十分向上させることが難しく、また、比較的分散性が良好

である場合でも、分散液から溶媒を揮発させるなどしてシート状にする際に、シート表面に凸凹が生じるなどの表面性の悪化が確認され、改善の余地があった。

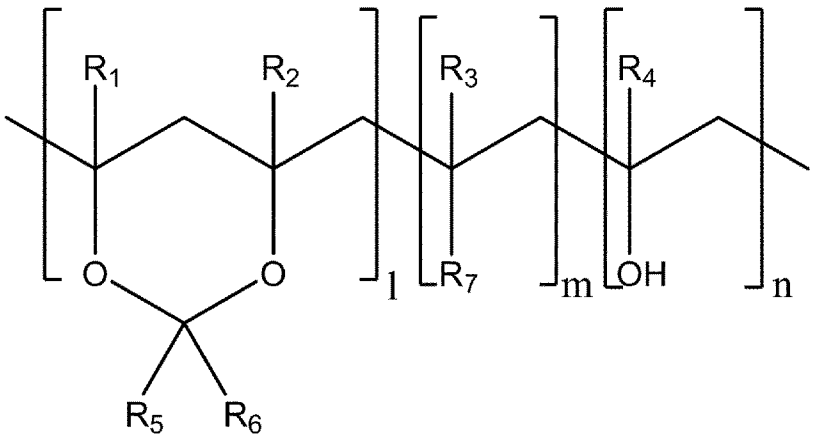
したがって、本発明は、六角網目状構造を有する化合物などの充填材の分散性を向上させることができ、かつ該充填材を含む分散液から溶媒を揮発させるなどしてシートを形成する際に、表面性の良好なシートの得られる充填材用分散剤、及び該充填材用分散剤を含む分散液を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者は、鋭意検討の結果、水酸基を有する構造単位を一定量有する特定の化合物を分散剤として用いることで、上記課題が解決できることを見出し、以下の本発明を完成させた。本発明は、以下の［１］～［１１］を提供する。

［１］下記一般式（１）で表される構造単位を有する化合物（Ａ）からなる充填材用分散剤。

[化1]



(1)

（一般式（１）において、R_1、R_2、R_3およびR_4はそれぞれ独立に水素原子、水酸基、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボキシル基、アシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基、または無置換もし

くは置換の複素環基を表す。R_5およびR_6はそれぞれ独立に水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換の複素環基を表すか、またはR_5とR_6が結合して環を形成してもよい。R_7は水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボニル基、カルボキシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基または無置換もしくは置換の複素環基を表す。ｌ、ｍ、ｎは、それぞれの構成単位の数の百分率を表し、l、ｍ、ｎの合計は１００％であり、ｌは０％より大きく、ｎは３１～８０％である。）

［２］前記一般式（１）において、ｌが３０～６９％であり、ｍが０～２０％であり、ｎが３１～５０％である、上記［１］に記載の充填材用分散剤。

［３］平均重合度が２００以上２０００以下である、上記［１］又は［２］に記載の充填材用分散剤。

［４］六角網目状構造を有する充填材を分散させるために用いる上記［１］～［３］のいずれかに記載の充填材用分散剤。

［５］六角網目状構造を有する充填材が、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種である、上記［４］に記載の充填材用分散剤。

［６］上記［１］～［５］のいずれかに記載の分散剤、充填材、樹脂成分、及び有機溶媒を含有する分散液。

［７］前記有機溶媒が、アルコール系溶媒及びケトン系溶媒から選択される少なくとも一種である、上記［６］に記載の分散液。

［８］上記［１］～［５］のいずれかに記載の分散剤、充填材、及び重合性単量体を含有する分散液。

［９］前記充填材が、六角網目状構造を有する充填材である、上記［６］～

［８］のいずれかに記載の分散液。

［１０］前記六角網目状構造を有する充填材が、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種以上である、上記［６］～［９］のいずれかに記載の分散液。

［１１］上記［６］～［１０］のいずれかに記載の分散液からなる粘着剤を備える、粘着テープ。

発明の効果

[0006] 本発明の充填材用分散剤によれば、充填材の分散性を向上させることができ、かつ該充填材を含む分散液からシートを形成する際に、表面性の良好なシートを得ることができる充填材用分散剤を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]本発明の粘着テープの一実施形態を模式的に示す断面図である。

[図2]本発明の粘着テープの他の実施形態を模式的に示す断面図である。

[図3]本発明の粘着テープの他の実施形態を模式的に示す断面図である。

[図4]本発明の粘着テープの他の実施形態を模式的に示す断面図である。

[図5]本発明の粘着テープの他の実施形態を模式的に示す断面図である。

[図6]本発明の粘着テープの他の実施形態を模式的に示す断面図である。

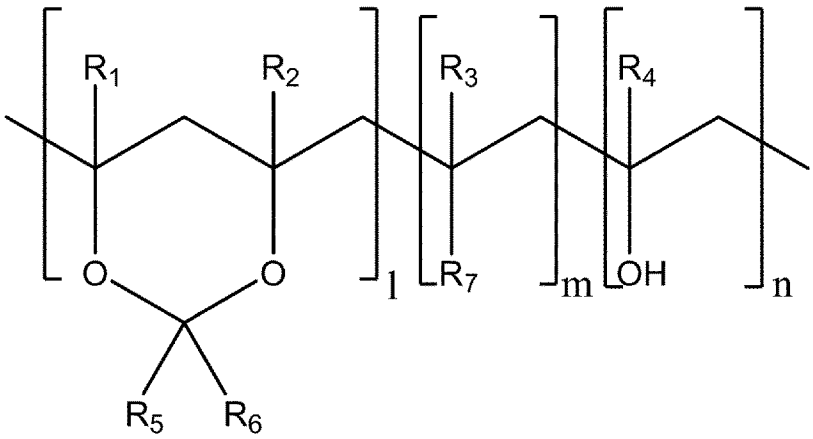
発明を実施するための形態

[0008] 以下、本発明について詳細に説明する。

［充填材用分散剤］

本発明の充填材用分散剤（以下単に分散剤ということもある）は、下記一般式（１）で表される構造単位を有する化合物（Ａ）からなる分散剤である。

[化2]



(1)

（一般式（１）において、Ｒ$_1$、Ｒ$_2$、Ｒ$_3$およびＲ$_4$はそれぞれ独立に水素原子、水酸基、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボキシル基、アシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基、または無置換もしくは置換の複素環基を表す。Ｒ$_5$およびＲ$_6$はそれぞれ独立に水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換の複素環基を表すか、またＲ$_5$とＲ$_6$が結合して環を形成してもよい。Ｒ$_7$は水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボニル基、カルボキシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基または無置換もしくは置換の複素環基を表す。ｌ、ｍ、ｎは、それぞれの構成単位の数の百分率を表し、ｌ、ｍ、ｎの合計は１００％であり、ｌは０％より大きく、ｎは３１～８０％である。）

[0009] 本発明における一般式（１）で表される化合物（Ａ）は、上記のように各構造単位を有しており、構造単位の割合が上記のとおりであればよく、分子鎖内での各構造単位の並び方を限定するものではない。すなわち、分子内に各構造単位がブロック的に存在してしてもよいし、ランダム的に存在してもよい。

[0010] 化合物（Ａ）は、アセタール基を有する構造単位を含んでいる。これにより、充填材、特に、六角網目状構造を有する充填材の分散性が向上する。これは、アセタール基と、充填材の六角網目状構造が相互作用しやすいことで、充填材の凝集を抑制するからと推定される。充填材、特に、六角網目状構造を有する充填材の分散性をより向上させる観点から、化合物（Ａ）は、ブチラール基を有する構造単位を含むことが好ましい。

一般式（１）で表される化合物（Ａ）におけるｎは３１～８０％である。すなわち、化合物中に、水酸基を有する構造単位が一定の数存在している。ｎが３１％未満であると、充填材用分散剤を含む分散液からシートを形成する際に、シートの表面に凹凸が生じやすくなり、表面性が悪化しやすくなる。ｎが８０％を超えると、化合物中のアセタール基を有する構造単位が少なくなり、充填材の分散性が悪くなる。

[0011] これら、充填材の分散性と、シートの表面性をより向上させる観点から、一般式（１）において、好ましくはｌが３０～６９％であり、ｍが０～２０％であり、ｎが３１～５０％であり、より好ましくはｌが４０～６８％であり、ｍが０．１～２０％であり、ｎが３２～４０％である。

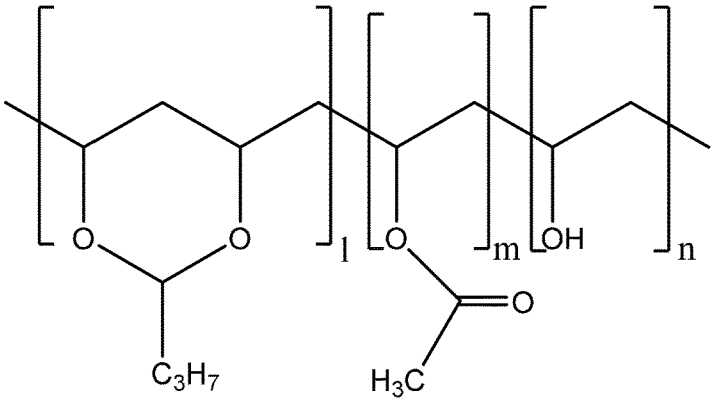
[0012] 一般式（１）で表される化合物（Ａ）におけるR_1～R_7は、充填剤の分散性をより向上させる観点、及びシートの表面性をより向上させる観点から以下のとおりにすることが好ましい。R_1、R_2、R_3およびR_4は、いずれも水素原子であることが好ましい。R_5およびR_6は、それぞれ独立に水素原子、または無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基であることが好ましく、R_5が水素原子であり、R_6が無置換もしくは置換の炭素原子が１～８のアルキル基であることがより好ましく、R_5が水素原子であり、R_6がｎ－プロピル基（$-C_3H_7$）であることがより好ましい。

R_7は、アシルオキシ基が好ましく、アセトキシ基がより好ましい。

[0013] 充填材の分散性をより向上させ、かつ該充填材を含む分散液からシートを形成する際に、表面性のより良好なシートを得る観点から、一般式（１）で表される化合物（Ａ）は、下記一般式（２）で表される化合物（Ａ）である

ことが好ましい。

[化3]



(2)

上記一般式（２）において、ｌ、ｍ、ｎは、それぞれの構成単位の数の百分率を表し、ｌ、ｍ、ｎの合計は１００％であり、ｌは０％より大きく、ｎは３１～８０％である。なお、ｌ、ｍ、ｎの好適な範囲は、上記一般式（１）と同様である。

[0014] 化合物（Ａ）は、本発明の効果を阻害しない範囲で、一般式（１）で表される構造単位以外のその他の構造単位を有してもよい。化合物（Ａ）がその他の構造単位を有する場合、その他の構造単位は、化合物（Ａ）の全構造単位を基準として２モル％以下であることが好ましく、１モル％以下であることがより好ましく、０であることが更に好ましい。

なお、化合物（Ａ）における各構造単位の割合は、核磁気共鳴法（ＮＭＲ）により測定できる。

[0015] 化合物（Ａ）の平均重合度は、好ましくは５０以上３０００以下であり、より好ましくは１００以上２５００以下であり、２００以上であり２０００以下である。平均重合度が５０以上では分子鎖は長く、ナノフィラーとの相互作用が大きくなり、３０００以下では分散媒に溶解し易くなり、ナノフィラーの分散性が向上する。

化合物（Ａ）の平均重合度は、さらに好ましくは２００以上８００以下であり、特に好ましくは２００以上４００以下である。

なお、化合物（Ａ）の平均重合度は、原料となるポリビニルアルコールの

平均重合度によって求めることができる。

[0016] 本発明の化合物（Ａ）からなる充填材用分散剤は、六角網目状構造を有する充填材を分散させるために用いることが好ましい。六角網目状構造を有する充填材は、例えば、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種である。これら充填材の詳細は後述する。

[0017] 本発明における化合物（Ａ）の製造方法は、特に限定されず、例えば、次のような方法で製造できる。

ポリ酢酸ビニルをアルカリ、酸、アンモニア水等によりけん化して、ポリビニルアルコールを得る。このとき、ポリ酢酸ビニルのエステルの全てがけん化させる場合もあるし、一部エステルが残存する場合もある。ポリビニルアルコールのけん化度は一般に、７０～９９．９モル％の範囲内であり、８０～９９．８モル％の範囲ないであることが好ましい。

ポリビニルアルコールの平均重合度は、好ましくは１００以上１５００以下であり、より好ましくは２００以上１３００以下であり、２２０以上であり９００以下である。

ポリビニルアルコールの平均重合度は、ＪＩＳ　Ｋ６７２６「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。

ポリビニルアルコールを得た後、該ポリビニルアルコールの水酸基の一部をｎ－ブチルアルデヒドでアセタール化する。

該製造方法において、けん化の条件、及びアセタール化の条件を調節することにより、化合物（Ａ）におけるｌ、ｍ、ｎを調整することができる。

本発明の化合物（Ａ）の構造を満足する製品は市販されており、例えば、積水化学工業社製のエスレックＢＬ－１、エスレックＢＬ－２、エスレックＢＭ－１、エスレックＢＭ－２、エスレックＢＭ－５、エスレックＢＸ－Ｌ、エスレックＢＨ－３、エスレックＢＸ－１、エスレックＢＸ－５などが挙げられる。

[0018] ［分散液］

本発明の分散剤を使用して、充填材を分散させた分散液を製造することができる。分散液は、該分散液から、樹脂と充填材とを含む複合材からなるシートなどを形成するため、樹脂成分又は重合性単量体を含有することが好ましい。以下、樹脂成分を含む分散液を第１の分散液、重合性単量体を含む分散液を第２の分散液として説明する。

＜第１の分散液＞

本発明の第１の分散液は、分散剤、充填材、樹脂成分、及び有機溶媒を含有する。第１の分散液から、乾燥などにより溶媒を除去することにより、樹脂と充填材とを含む複合材からなるシートなどを得ることができる。

以下、第１の分散液に含まれる個々の成分について説明する。

[0019] （分散剤）

第１の分散液に含有される分散剤としては、上記した化合物（Ａ）からなる充填材用分散剤を使用することができる。該分散剤を用いることで、充填材の分散性を向上させることができ、また、分散液から溶媒を揮発させてシートを形成する際に、表面性の良好なシートを得ることできる。

第１の分散液における分散剤の量は、分散液全量基準で、好ましくは０．１～３０質量％であり、より好ましくは０．５～２０質量％であり、更に好ましくは１～１５質量％である。これら下限値以上であると、充填材の分散性が高まり、これら上限値以下であると添加量に応じて分散性を向上させることができる。

[0020] 第１の分散液における分散剤の量は、充填材１００質量部に対して、５０～１５００質量部であることが好ましく、１００～１０００質量部であることがより好ましく、２００～４００質量部であることが更に好ましい。

[0021] （充填材）

第１の分散液に含有される充填材の種類は特に限定されるものではないが、六角網目状構造を有する充填材が好ましい。六角網目状構造を有する充填材は導電性、熱伝導性など優れた特性を有するものの、一般的には、分散し

にくい充填材として知られている。本発明の分散剤を用いると、六角網目状構造を有する充填材を用いた場合であっても、良好に分散させることができる。

六角網目状構造を有する充填材は、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種であることが好ましい。

[0022] ≪カーボンナノチューブ≫

カーボンナノチューブは、炭素から形成されるチューブ状の材料である。カーボンナノチューブは電気的特性に優れており、樹脂などと複合化すると、導電性の高いシートなどを形成できる。カーボンナノチューブは、六角網目状の炭素原子配列のグラファイトシートが円筒状に巻かれた構造を有する物質であり、一層に巻いたものをシングルウオールカーボンナノチューブ、多層に巻いたものをマルチウオールカーボンナノチューブという。

本発明では、カーボンナノチューブの種類は特に限定されず、シングルウオールカーボンナノチューブ、マルチウオールカーボンナノチューブ、及びこれらを任意の割合で含む混合物のいずれでもよい。また、アーク放電法、レーザー蒸発法、化学気相成長法（ＣＶＤ法）等の各種方法により製造されたカーボンナノチューブを用いることができる。

[0023] カーボンナノチューブの平均直径は好ましくは１～１００ｎｍであり、より好ましくは２～１５ｎｍである。カーボンナノチューブの平均長さは好ましくは０．１～１０００μｍであり、より好ましくは１０～５００μｍである。カーボンナノチューブのアスペクト比は、好ましくは１０～１０００００であり、より好ましくは５００～３００００である。本発明の分散剤は、カーボンナノチューブのアスペクト比の大小に関わらず、分散させることができる。通常は、アスペクト比の大きいカーボンナノチューブは、分散させにくいが、本発明の充填材用分散剤を用いると、アスペクト比の大きいカーボンナノチューブでも分散させることが可能となる。

なお、カーボンナノチューブの直径とは、シングルウオールカーボンナノチューブの場合には外径を示し、マルチウオールカーボンナノチューブの場合には最も外側に位置するチューブの外径を意味する。カーボンナノチューブの直径、及び長さは、例えばＴＥＭ（透過型電子顕微鏡）による観察によって得られた画像において測定すればよく、平均直径、及び平均長さとは、任意の５０個の算術平均により求めるとよい。

[0024] ≪窒化ホウ素ナノチューブ≫

窒化ホウ素ナノチューブは、窒化ホウ素から形成されるチューブ状材料であり、熱伝導性に優れる充填材である。窒化ホウ素ナノチューブは、六角網目の面がチューブ軸に平行となるように管を形成し、一重管もしくは多重管になるものである。窒化ホウ素ナノチューブは、一重管となるものをシングルウォールチューブ、多重管となるものをマルチウォールチューブという。本発明では、窒化ホウ素ナノチューブとして、シングルウォールチューブ及びマルチウォールチューブのいずれを使用してもよいし、両者を併用してもよいが、マルチウォールチューブを用いることが好ましい。

[0025] 窒化ホウ素ナノチューブは、平均直径が好ましくは１ｎｍ以上５０ｎｍ以下であり、平均長さが好ましくは１００ｎｍ以上５０μｍ以下である。平均直径及び平均長さを上記範囲内とすることで、樹脂と混合した際の粘度が低くなり、分散性が向上し、かつ熱伝導率も向上しやすくなる。

窒化ホウ素ナノチューブの平均直径は、好ましくは３ｎｍ以上、より好ましくは４ｎｍ以上である。また、窒化ホウ素ナノチューブの平均直径は、好ましくは１０ｎｍ以下、より好ましくは８ｎｍ以下である。

また、窒化ホウ素ナノチューブの平均長さは、５００ｎｍ以上が好ましく、１μｍ以上がより好ましく、また、２０μｍ以下が好ましく、８μｍ以下がより好ましく、５μｍ以下がさらに好ましい。

[0026] なお、窒化ホウ素ナノチューブの直径とは、シングルウォールチューブの場合には外径を示し、マルチウォールチューブの場合には最も外側に位置するチューブの外径を意味する。窒化ホウ素ナノチューブの直径、及び長さは

、例えばＴＥＭ（透過型電子顕微鏡）による観察によって得られた画像において測定すればよく、平均直径、及び平均長さとは、任意の５０個の算術平均により求めるとよい。

[0027] ≪窒化ホウ素ナノシート≫

窒化ホウ素ナノシートは、超極薄の二次元シート構造を有するものであり、大きな比表面積を有し、熱伝導性に優れる充填材である。窒化ホウ素ナノシートは、例えば、六方晶系窒化ホウ素の層間を剥離することで得られるものであり、六方晶系窒化ホウ素を形成している層が単層、又は複数積層された構造を有する。

六方晶系窒化ホウ素は、ホウ素原子と窒素原子が交互に共有結合した六角網目状の平面同士が、相互にファンデルワールス力で緩く結合して積み重なった構造をしているため、窒化ホウ素ナノシートも同様に、六角網目状の平面構造を有している。

本発明で使用する窒化ホウ素ナノシートは、平均厚さが１０ｎｍ未満であることが好ましい。平均厚さが１０ｎｍ未満であると、樹脂と混合した際の粘度が低くなり、分散性が向上し、かつ熱伝導率も向上しやすくなる。これら観点から、窒化ホウ素ナノシートの平均厚さは、より好ましくは６ｎｍ以下、さらに好ましくは４ｎｍ以下である。また、窒化ホウ素ナノシートの平均厚さの下限は、特に限定されないが、例えば１ｎｍである。

[0028] 窒化ホウ素ナノシートの大きさは、特に限定されないが、平均最長径が例えば２００ｎｍ以上１０μｍ以下、好ましくは５００ｎｍ以上６μｍ以下である。

なお、窒化ホウ素ナノシートの厚さ及び最長径は、例えばＴＥＭ（透過型電子顕微鏡）による観察によって得られた画像において測定でき、各窒化ホウ素ナノシートの平均厚さ、及び平均最長径は、電子顕微鏡の画像中の任意の５０個の算術平均により求めるとよい。

[0029] ≪窒化ホウ素≫

本発明において使用する窒化ホウ素は、上記した窒化ホウ素ナノチューブ

及び窒化ホウ素ナノシート以外の窒化ホウ素である。窒化ホウ素は好ましくは、六方晶窒化ホウ素粒子である。六方晶窒化ホウ素粒子の平均粒径は、特に限定されないが、例えば０．５μｍ以上８０μｍ以下、好ましくは１μｍ以上７０μｍ以下である。

[0030] 六方晶窒化ホウ素粒子の粒径は、例えばＴＥＭ（透過型電子顕微鏡）による観察によって得られた画像において粒子の最大径を測定し、任意の５０個の粒子の最大径の算術平均により平均粒径を求めるとよい。

[0031] ≪グラフェン≫

グラフェンは、六角網目状の平面層を有しており、例えば、六角網目状の平面層がファンデルワールス力により積層された層状構造を有するグラファイトの層間を剥離することにより得られる。グラフェンの平均厚みは、例えば、３ｎｍ以上１００ｎｍ以下、好ましくは７ｎｍ以上５０ｎｍ以下である。平均厚みは、例えばＴＥＭ（透過型電子顕微鏡）による観察によって得られた画像において測定でき、電子顕微鏡の画像中の任意の５０個の算術平均により求めるとよい。

[0032] ≪その他の充填材≫

充填材としては、上記した充填材以外のその他の充填材を用いてもよい。

その他の充填材としては、例えば、炭化物、窒化物、酸化物、水酸化物、金属炭酸塩、などが挙げられる。

[0033] 炭化物としては、例えば、炭化ケイ素、炭化ホウ素、炭化アルミニウム、炭化チタン、炭化タングステンなどが挙げられる。窒化物としては、例えば、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化ガリウム、窒化クロム、窒化タングステン、窒化マグネシウム、窒化モリブデン、窒化リチウムなどが挙げられる。

酸化物としては、例えば、酸化鉄、酸化亜鉛、酸化ケイ素（シリカ）、アルミナ、ベーマイトなどの酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、酸化セリウム、酸化ジルコニウムなどが挙げられる。水酸化物としては、例えば、水酸化アルミニウム、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウムな

どが挙げられる。金属炭酸塩としては、合成マグネサイト、マグネシウム炭酸塩などが挙げられる。

第１の分散液に含まれる充填材は、１種を単独で用いてもよいし、複数を併用してもよい。

[0034] 第１の分散液における充填材の量は、分散液全量基準で、好ましくは０．１～１０質量％であり、より好ましくは０．５～５質量％であり、更に好ましくは１～３質量％である。

これら下限値以上であると、充填材の種類に応じた導電性、熱伝導性などの機能を付与しやすくなり、これら上限値以下であると、充填材の分散性が向上する。本発明の分散剤は、充填材、特に六角網目状構造を有する充填材に対する分散性を向上させやすいため、該充填材の量が上記のとおり比較的高い場合であっても、良好に分散させることができる。

[0035] 第１の分散液における充填材は、樹脂成分１００質量部に対して、２～２０質量部であることが好ましく、５～１５質量部であることがより好ましい。このような範囲であると、分散液を用いてシート等を形成させたとき、充填材が樹脂中に均一に分散しやすくなる。

[0036] （樹脂成分）

第１の分散液に含有される樹脂成分は、分散液から有機溶媒を乾燥などにより除去したのち、充填材を保持する。樹脂成分は、特に限定されないが、硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、エラストマー樹脂などが挙げられる。硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリイミド樹脂、オキセタン樹脂等が挙げられる。

また、熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリ（１－）ブテン樹脂、及びポリペンテン樹脂等のポリオレフィン樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ポリスチレン樹脂、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン（ＡＢＳ）樹脂、エチレン酢酸ビニル共重合体（ＥＶＡ）、（メタ）アクリル系樹脂、ポリアミド樹脂、ポリ塩

化ビニル樹脂（ＰＶＣ）等が挙げられる。

[0037] また、エラストマー樹脂としては、アクリロニトリルブタジエンゴム、エチレン－プロピレン－ジエンゴム、エチレン－プロピレンゴム、天然ゴム、ポリブタジエンゴム、ポリイソプレンゴム等が挙げられる。これらエラストマー樹脂は、室温（２３℃）、常圧（１気圧）で液状となる液状エラストマーであってもよいし、固体状のものであってもよいし、これらの混合物であってもよい。

また、エラストマー樹脂としては、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、スチレン系熱可塑性エラストマーなどの熱可塑性エラストマーも使用できる。

[0038] 樹脂成分としては、シリコーンオイル、プロセスオイルなどの液状樹脂成分でもよい。液状樹脂成分とは、配合時に室温かつ常圧下に液状であり、かつ使用時においても液状ないしゲル状となる成分である。すなわち、液状樹脂成分は、硬化剤などにより硬化されない高分子成分であり、また、硬化されるものであっても硬化後、液状ないしゲル状の高分子成分となるものである。

樹脂成分は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0039] 樹脂成分としては上記した中では、硬化性樹脂が好ましく、熱硬化性樹脂がより好ましい。なお、硬化性樹脂は、一般的に主剤を硬化剤により硬化させることで、硬化する樹脂成分であり、主剤は高分子成分であってもよいし、モノマー成分であってもよい。このような場合、主剤と硬化剤により樹脂成分が構成される。また、硬化性樹脂の中でもエポキシ樹脂、シリコーン樹脂などが好ましい。

[0040] エポキシ樹脂としては、エポキシ基を少なくとも１つ、好ましくは２つ以上有するエポキシ化合物を使用するとよい。エポキシ化合物としては、例えばビスフェノール型、ノボラック型、ナフタレン型、トリフェノールアルカン型、ビフェニル型、環状脂肪族型、これらのハロゲン化物、これらの水素添加物等が挙げられる。

また、エポキシ樹脂としては、エポキシ化合物単独で使用されてもよいが、一般的には、上記エポキシ化合物を主剤とし、さらに硬化剤が加えられたものが使用される。硬化剤としては、重付加型又は触媒型のものが用いられる。重付加型の硬化剤としては、例えば、ポリアミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、ポリフェノール系硬化剤、ポリメルカプタン、ジシアンジアミド等が挙げられる。また、上記触媒型の硬化剤としては、例えば、３級アミン、イミダゾール類、ルイス酸錯体等が例示される。これは１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0041] シリコーン樹脂としては、縮合硬化型シリコーン樹脂、付加反応硬化型シリコーン樹脂などが好ましく、付加反応硬化型シリコーン樹脂がより好ましい。付加反応硬化型シリコーン樹脂は、主剤となるシリコーン化合物と、主剤を硬化させる硬化剤とからなることが好ましい。主剤として使用されるシリコーン化合物は、アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンが好ましい。付加反応硬化型シリコーン樹脂に使用される硬化剤としては、上記した主剤であるシリコーン化合物を硬化できるものであれば、特に限定されないが、ヒドロシリル基（ＳｉＨ）を２つ以上有するオルガノポリシロキサンである、オルガノハイドロジェンポリシロキサンが好ましい。これら、シリコーン化合物と硬化剤とを硬化させる硬化触媒として白金系触媒などを用いることが好ましい。

[0042] 第１の分散液における樹脂成分の量は、分散液全量基準で、好ましくは１０～９８質量％であり、より好ましくは２０～９０質量％であり、さらに好ましくは３０～８０質量％である。

[0043] （有機溶媒）

第１の分散液に含有される有機溶媒の種類は特に限定されず、アルコール系溶媒、ケトン系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、アミド系溶媒、炭化水素系溶媒などが挙げられる。

[0044] アルコール系溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール等が挙げられる。

[0045] ケトン系溶媒としては、例えば、メチルエチルケトン、アセトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどが挙げられる。

[0046] エステル系溶媒としては、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソプロピル、エチレングリコールジアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートなどが挙げられる。

[0047] エーテル系溶媒としては、例えば、ジエチルエーテル、イソプロピルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、アニソール、フェネトールなどが挙げられる。

[0048] アミド系溶媒としては、ジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、Ｎ－メチルピロリドンなどが挙げられる。

[0049] 炭化水素系溶媒としては、例えば、ｎ－ヘキサン、ｎ－ヘプタン、ｎ－オクタン、ｎ－デカン、ｎ－ドデカン、２，３－ジメチルヘキサン、２－メチルヘプタン、２－メチルヘキサン、３－メチルヘキサン、シクロヘキサンなどが挙げられる。

[0050] これらの有機溶媒は１種を単独で使用してもよく、また２種以上を組み合わせてもよい。これらの中でも、アルコール系溶媒及びケトン系溶媒から選択される少なくとも一種が好ましく、アルコール系溶媒がさらに好ましい。アルコール系溶媒、ケトン溶媒を用いた分散液は、分散液から溶媒を揮発させてシートを形成する際に、凹凸の少ない表面性の良好なシートを得やすくなる。この理由は定かではないが、これら溶媒は水酸基、ケトン基を有しており、これが分散剤である上記化合物（Ａ）の水酸基と相互作用しやすいため、溶媒の揮発速度が低減され、その結果、表面性の良好なシートが得られるからと推定される。

[0051] 第１の分散液における有機溶媒の量は、分散液全量基準で、好ましくは１０～９０質量％であり、より好ましくは２０～８０質量％であり、更に好ましくは３０～７０質量％である。

[0052] 第１の分散液は、その他の添加剤として、酸化防止剤、熱安定剤、着色剤、難燃剤、帯電防止剤などを含有してもよい。また、樹脂成分として、熱硬化性樹脂を使用する場合には、反応遅延剤を含有させてもよい。

[0053] 第１の分散液の調製方法は、特に限定されないが、充填材の分散性を高める観点から、最初に、分散剤及び有機溶媒を混合し、その後、充填剤をさらに加えて混合して混合液を得た後、該混合液に樹脂成分を加え混合して、分散液を得ることが好ましい。また、必要に応じてその他の添加剤を混合液又は分散液を調製する際に添加すればよい。

[0054] ＜第２の分散液＞

本発明の第２の分散液は、分散剤、充填材、及び重合性単量体を含有する。第２の分散液中の重合性単量体を重合させることにより、樹脂と充填材とを含む複合材からなるシートなどを得ることができる。

第２の分散液における分散剤、充填材は、上記第１の分散液において説明したものと同種のものを使用でき、その使用量も同等である。

[0055] （重合性単量体）

第２の分散液に含有される重合性単量体は、特に限定されないが、ビニル基、アリル基、（メタ）アクリロイル基などのエチレン性不飽和二重結合を有する単量体が挙げられ、例えば、スチレン系単量体、（メタ）アクリル系単量体などを使用することができる。中でも（メタ）アクリル系単量体が好ましい。

スチレン系単量体としては、例えば、スチレン、ｏ－メチルスチレン、ｍ－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、α－メチルスチレン等が挙げられる。

（メタ）アクリル系単量体としては、例えば、アクリル酸、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸ドデシル、アクリル酸ステアリル、アクリル酸２－エチルヘキシル、アクリル酸テトラヒドロフルフリル、メタクリル酸、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸プロピル、メタクリル酸ｎ－ブチル

、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸ｎ－オクチル、メタクリル酸ドデシル、メタクリル酸２－エチルヘキシル、メタクリル酸ステアリル等が挙げられる。（メタ）アクリル系単量体として上記以外にも、水酸基を有する（メタ）アクリル系単量体や、２以上の（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリル系単量体などを用いてもよい。

これら以外にも、塩化ビニル、酢酸ビニル、アクリロニトリル、アクリルアミド、メタクリルアミド、Ｎ－ビニルピロリドン等が挙げられる。

重合性単量体は、１種単独で用いても、２種以上を併用してもよい。

[0056] 第２の分散液における重合性単量体の量は、分散液全量基準で、好ましくは１０～９８質量％であり、より好ましくは４０～９５質量％である。

[0057] また、重合性単量体は、充填材との量比を一定範囲とすることが好ましい。すなわち、第２の分散液における充填材は、重合性単量体１００質量部に対して、２～２０質量部であることが好ましく、５～１５質量部であることがより好ましい。このような範囲であると、分散液を用いてシート等を形成させたとき、充填材が樹脂中に均一に分散しやすくなる。

[0058]（重合開始剤）

第２の分散液は、重合性単量体を重合するための重合開始剤を含有することが好ましい。重合開始剤としては、光重合開始剤、熱重合開始剤などが挙げられる。

[0059] 光重合開始剤は、例えば、２５０～８００ｎｍの波長の光を照射することにより活性化されるものが挙げられ、例えば、メトキシアセトフェノン等のアセトフェノン誘導体化合物や、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾインエーテル系化合物、ベンジルジメチルケタール、アセトフェノンジエチルケタール等のケタール誘導体化合物、フォスフィンオキシド誘導体化合物、ビス（η５－シクロペンタジエニル）チタノセン誘導体化合物、ベンゾフェノン、ミヒラーケトン、クロロチオキサントン、トデシルチオキサントン、ジメチルチオキサントン、ジエチルチオキサントン、α－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、２－ヒドロキシ

メチルフェニルプロパン、２，２－ジメトキシ－１，２－ジフェニルエタン－１－オン等が挙げられる。

[0060] 熱重合開始剤としては、熱により分解し、重合硬化を開始する活性ラジカルを発生するものが挙げられ、例えば、ジクミルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、ｔ－ブチルパーオキシベンゾエール、ｔ－ブチルハイドロパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、パラメンタンハイドロパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド等が挙げられる。

第２の分散液における重合開始剤量は、分散液全量基準で、好ましくは０．０１～５質量％である。

[0061] 第２の分散液は、有機溶媒を含有してもよい。有機溶媒としては第１の分散液における有機溶媒と同様のものが使用でき、その量も同等である。

[0062] 第２の分散液は、その他の添加剤として、酸化防止剤、熱安定剤、着色剤、難燃剤、帯電防止剤などを含有してもよい。

第２の分散液は、重合性単量体、充填材、分散剤、必要に応じて重合開始剤及びその他の添加剤を混合して調製することができる。

[0063] 本発明の分散液は、化合物（Ａ）からなる分散剤を用いており、充填材の分散性のよい分散液が得られる。そのため、該分散液を用いて作製される、樹脂と充填材とを含む複合材からなるシートにおいても充填材の分散性がよい。

したがって、本発明の分散液を用いて、導電性、熱伝導性などに優れるシート、フィルムなどを形成させることができる。例えば、充填材としてカーボンナノチューブ、グラフェンなどを含む分散液を用いた場合には導電性に優れるシート等を得ることができる。充填材として、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）などを含む分散液を用いた場合は、熱伝導性に優れるシート等を得ることができる。

[0064] また、本発明の分散液を用いて、導電性、熱伝導性に優れる粘着剤を形成

させてもよい。例えば、（メタ）アクリル系単量体などを含有した第２の分散液を用いることで、導電性、熱伝導性に優れる粘着剤を形成することができる。分散液に含有される充填剤の中でも特にカーボンナノチューブが好ましい。カーボンナノチューブを使用する場合、本発明の化合物（Ａ）の添加量はカーボンナノチューブ１００質量部に対して１０～４００質量部であることが好ましく、５０～３００質量部であることがより好ましい。

[0065] 本発明の分散液からなる粘着剤を形成でき、さらに該粘着剤を備える粘着テープを形成することができる。

本発明の粘着テープは、上記した粘着剤層を備えるものである。該粘着テープは、図１に示すように、支持体１３と、該支持体１３の片面に粘着剤層１１が設けられた片面粘着テープ１０であってもよいし、図２に示すように支持体１３と、該支持体１３の両面に粘着剤層１１が設けられた両面粘着テープ２０であってもよい。また、粘着テープは、いわゆる基材レスの両面粘着テープと呼ばれる、粘着剤層１１のみ（すなわち、粘着剤層単体）からなる両面粘着テープ３０であってもよい。中でも、本発明の粘着テープは、粘着剤層のみからなる両面粘着テープが好ましい。

[0066] 片面粘着テープ及び両面粘着テープの支持体としては、不織布、和紙等の紙、天然繊維、合成繊維等からなる織布、ポリエステル、ポリオレフィン、軟質ポリ塩化ビニル、硬質ポリ塩化ビニル、アセテート等からなる樹脂フィルム、フラットヤーンクロスなどが挙げられる。フラットヤーンクロスは、ポリオレフィン樹脂などの合成樹脂製のフラットヤーンを、２軸、３軸、又は４軸などの格子目状に配置させ交点を接着させたものである。

[0067] なお、粘着テープの粘着剤層の表面には、一般的に、剥離シートが貼付されており、その剥離シートを剥離した後に被着体に貼着されるものである。例えば、図４に示すように片面粘着テープ１０の粘着剤層表面、図５に示すように両面粘着テープ２０の両表面、図６に示すように両面粘着テープ３０の両表面にそれぞれ剥離シート１２を設けてもよい。

剥離シートは、例えば、樹脂フィルムなどの基材の少なくとも一方の面を

シリコーン系剥離剤などで剥離処理したものなどが使用される。

実施例

[0068] 以下に本発明の実施例を説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0069] 実施例及び比較例で用いた各成分は以下のとおりである。

［樹脂成分］

・エポキシ樹脂　主剤：三菱ケミカル製「ＪＥＲ８２８」

硬化剤：和光純薬株式会社購入「ＭＸＤＡ」

主剤と硬化剤の配合比は、重量比で、主剤２に対して硬化剤１とした。

［重合性単量体］

・アクリル酸メチル　　三菱ケミカル製

[0070] ［充填材］

・カーボンナノチューブ　　ＪＥＩＯ製　カーボンナノチューブ「Ｊｅｎｏ Ｔｕｂｅ　　８Ａ」平均直径　６～９ｎｍ、平均長さ　１００～２００μｍ

・窒化ホウ素ナノチューブ　　シグマアルドリッチ製

平均直径　３－７ｎｍ

・窒化ホウ素ナノシート

六方晶窒化ホウ素（水島合金鉄社製「ＨＰ－６０」）を硝酸水溶液中で１質量％の濃度で分散し、超音波ホモジナイザー（ＳＭＴ社製：ＵＨ－６００）で超音波を与えて、剥片窒化ホウ素を得た後、これを分離回収することにより、窒化ホウ素ナノシートを得た。

窒化ホウ素ナノシートの平均厚さは７ｎｍであり、平均最長径は５μｍであった。

・六方晶窒化ホウ素粒子

水島合金鉄社「ＨＰ－６０」　平均粒径６０μｍ

・グラフェン「ｉ－Ｇｒａｆｅｎ」　平均厚さ１０ｎｍ

[0071] ［分散剤］

・ポリビニルブチラール樹脂１・・積水化学株式会社製「エスレックＢＸ－Ｌ」

アセタール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　６１

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３以下

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　３７

平均重合度　３１０

・ポリビニルブチラール樹脂２・・積水化学株式会社製「エスレックＢＬ－２」

ブチラール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　６３±３

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３以下

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　３６

平均重合度　４４０

・ポリビニルブチラール樹脂３・・積水化学株式会社製「エスレックＢＭ－２」

ブチラール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　６８±３

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３以下

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　３１

平均重合度　８３０

・ポリビニルブチラール樹脂４・・積水化学株式会社製「エスレックＢＸ－１」

ブチラール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　６６

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３以下

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　３３

平均重合度　１７２０

・ポリビニルブチラール樹脂５・・積水化学株式会社製「エスレックＢＬ－２Ｈ」

ブチラール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　７０±３

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３以下

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　２９

平均重合度　４４０

・ポリビニルブチラール樹脂６・・積水化学株式会社製「エスレックＢＬ－５」

ブチラール基を有する構造単位の割合：ｌ（ｍｏｌ％）　７７以上

アセチル基を有する構造単位の割合：ｍ（ｍｏｌ％）　３～５

水酸基を有する構造単位の割合：ｎ（ｍｏｌ％）　２１

平均重合度　４９０

・Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン・・信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」

[0072] ［有機溶媒］

エタノール　和光純薬株式会社

[0073] ［実施例１］

表１に示す種類及び量の分散剤及び有機溶媒を混合し、次いで表１に示す種類及び量の充填剤を加えて混合し、混合液を得た。該混合液にさらに、表１に示す樹脂成分を添加し、混合して分散液を得た。混合は、室温（２５℃）で、シンキー社製の自転・超音波ナノ分散機「ＰＲ－１」により攪拌速度１２５ｒｐｍで、６０分間行った。

得られた分散液をＰＥＴシート上に厚み５０μｍ塗布して、５０℃で５時間加熱することで、分散液より形成されたシートを得た。

[0074] ［実施例２～１４、比較例１～５］

各成分の種類・量を表１のとおりにした以外は、実施例１と同様にして、混合液、分散液、シートを得た。

[0075] ［実施例１５～１６、比較例６］

表１に示す種類及び量の分散剤、重合性単量体を混合した後、充填剤及び光重合開始剤をさらに加えて混合し分散液を得た。混合は、室温（２５℃）で、シンキー社製の自転・超音波ナノ分散機「ＰＲ－１」により攪拌速度１２５ｒｐｍで、６０分間行った。なお、上記光重合開始剤は、２，２－ジメ

トキシ－１，２－ジフェニルエタン－１－オンを用いた。また、光重合開始剤の配合量は重合性単量体１００質量部に対して０．５質量部とした。

分散液をＰＥＴシート上に厚み１００μｍになるように塗布して塗膜を形成させ、該塗膜に対して光照射（３６５ｎｍ）を１０分間行い、塗膜を硬化させてシートを形成させた。

[0076]（分散性評価）

実施例１～１４、比較例１～５については樹脂を混合する前の混合液の粘度、実施例１５～１６、比較例６については分散液の粘度を測定することで、充填材の分散性を評価した。粘度が低いほど、分散性が良好であることを示している。

粘度の測定は、粘度計（ＢＲＯＯＫＦＩＥＬＤ社製「ＬＶ－ＤＶ－Ｅ」）を用いて、室温℃において行った。

以下の基準で分散性を評価した。

分散性Ｓ・・粘度　　１００ｃｐ以下

分散性Ａ・・粘度　　１００超１５０ｃｐ以下

分散性Ｂ・・粘度　　１５０超２００ｃｐ以下

分散性Ｃ・・粘度　　２００ｃｐ超

[0077]（シート性評価）

シートの表面をレーザー顕微鏡（キーエンス社製「ＶＫ－８７００」）により観察し、算術平均粗さ（Ｒａ）を算出し評価した。

シート性Ａ・・Ｒａ　　３．０μｍ以下

シート性Ｂ・・Ｒａ　　３．０μｍ超５．０μｍ以下

シート性Ｃ・・Ｒａ　　５．０μｍ超

[0078]（導電性評価）

実施例１５～１６、比較例６については塗膜を硬化させたシートの体積抵抗率をロレスターＧＰ（三菱化学アナリテック社製）により評価した。

導電性Ａ・・体積抵抗率　　２Ω・ｃｍ以下

導電性Ｂ・・体積抵抗率　　２Ω・ｃｍ超５Ω・ｃｍ以下

導電性Ｃ・・体積抵抗率　　５Ω・ｃｍ超

[0079]

[表1]

表1

			実施例															比較例					
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	1	2	3	4	5	6
分散液（質量%）	樹脂成分	Eポキシ樹脂（主剤、硬化剤）	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38			38	38	38	38	38	
	重合性単量体	アクリル酸メチル															88	94						88
	充填材	カーボンナノチューブ	3					3					3	3	5	3	3	3	3		3	3	3	3
		窒化ホウ素ナノチューブ		3					3											3				
		窒化ホウ素ナノシート			3					3														
		六方晶窒化ホウ素粒子				3					3													
		グラフェン					3					3												
	分散剤	BX-L（OH基:37%、重合度:310）	9	9	9	9	9									9								
		BL-2（OH基:36%、重合度:440）						9	9	9	9	9	9				9	3						
		BM-2（OH基:31%、重合度:830）												9	9									
		BX-1（OH基:33%、重合度:1720）														9								
		BL-2H（OH基:29%、重合度:440）																	9	9				
		BL-5（OH基:21%、重合度:490）																			9			9
		KBM573																					9	
	有機溶媒	Eタノール	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50			50	50	50	50	50	
評価		分散性	S	S	S	S	S	S	S	S	S	S	S	B	B	B	S	A	A	A	A	C	C	C
		シート性	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	B	B	B	A	A	A	C	C	C	C	C	C
		導電性	—														B	A	—					C

[0080] 表１の各実施例に示すとおり、本発明の特定の分散剤を用いると、充填材の分散性が高く、得られるシートの表面性も良好であった。一方、比較例１～５に示すとおり、本発明の特定の分散剤を用いない場合は、分散性及びシート性の両方が悪いか、又は分散性がよくてもシート性に劣る結果となった。

符号の説明

[0081] １０　片面粘着テープ

１１　粘着剤層

１２　剥離シート

１３　支持体

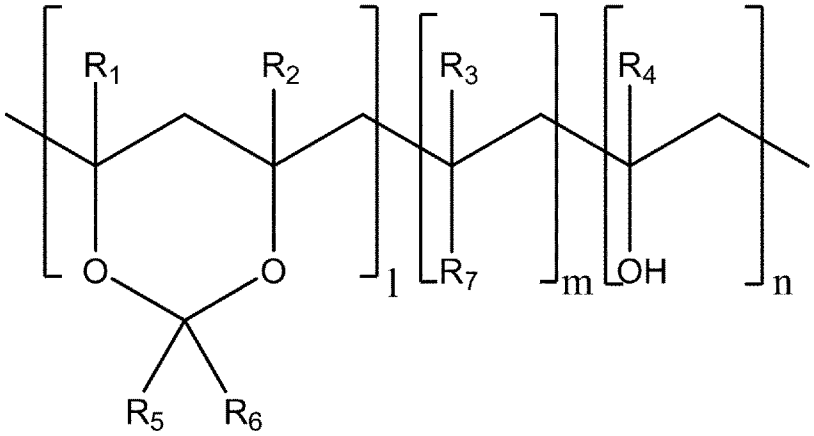
２０　両面粘着テープ

３０　両面粘着テープ

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表される構造単位を有する化合物（Ａ）からなる充填材用分散剤。

[化1]



(1)

（一般式（１）において、R_1、R_2、R_3およびR_4はそれぞれ独立に水素原子、水酸基、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボキシル基、アシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基、または無置換もしくは置換の複素環基を表す。R_5およびR_6はそれぞれ独立に水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換の複素環基を表すか、またはR_5とR_6が結合して環を形成してもよい。R_7は水素原子、無置換もしくは置換の炭素原子が１～３０のアルキル基、無置換もしくは置換のヒドロキシアルキル基、アルキルオキシ基、アシルオキシ基、カルボニル基、カルボキシル基、第１～３級アミノ基、無置換もしくは置換のアリール基、無置換もしくは置換のアリールオキシ基または無置換もしくは置換の複素環基を表す。ｌ、ｍ、ｎは、それぞれの構成単位の数の百分率を表し、ｌ、ｍ、ｎの合計は１００％であり、ｌは０％より大きく、ｎは３

１～８０％である。）

[請求項2] 前記一般式（１）において、ｌが３０～６９％であり、ｍが０～２０％であり、ｎが３１～５０％である、請求項１に記載の充填材用分散剤。

[請求項3] 平均重合度が２００以上２０００以下である、請求項１又は２に記載の充填材用分散剤。

[請求項4] 六角網目状構造を有する充填材を分散させるために用いる請求項１～３のいずれかに記載の充填材用分散剤。

[請求項5] 六角網目状構造を有する充填材が、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種である、請求項４に記載の充填材用分散剤。

[請求項6] 請求項１～５のいずれかに記載の分散剤、充填材、樹脂成分、及び有機溶媒を含有する分散液。

[請求項7] 前記有機溶媒が、アルコール系溶媒及びケトン系溶媒から選択される少なくとも一種である、請求項６に記載の分散液。

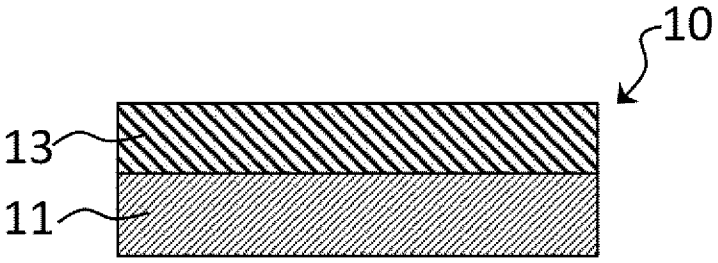
[請求項8] 請求項１～５のいずれかに記載の分散剤、充填材、及び重合性単量体を含有する分散液。

[請求項9] 前記充填材が、六角網目状構造を有する充填材である、請求項６～８のいずれかに記載の分散液。

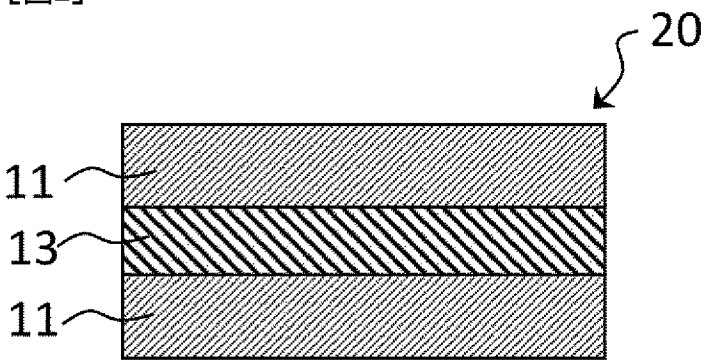
[請求項10] 前記六角網目状構造を有する充填材が、カーボンナノチューブ、窒化ホウ素ナノチューブ、窒化ホウ素ナノシート、窒化ホウ素（ただし窒化ホウ素ナノチューブ及び窒化ホウ素ナノシートは除く）、及びグラフェンからなる群から選択される少なくとも１種以上である、請求項６～９のいずれかに記載の分散液。

[請求項11] 請求項６～１０のいずれかに記載の分散液からなる粘着剤を備える、粘着テープ。

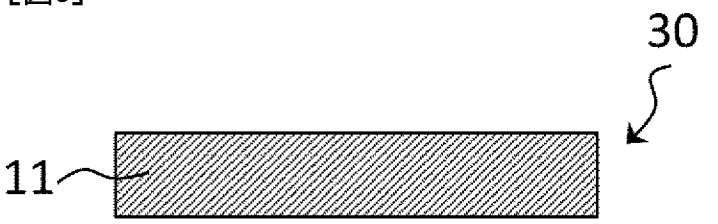
[図1]



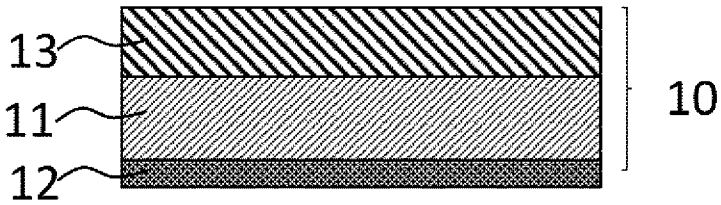
[図2]



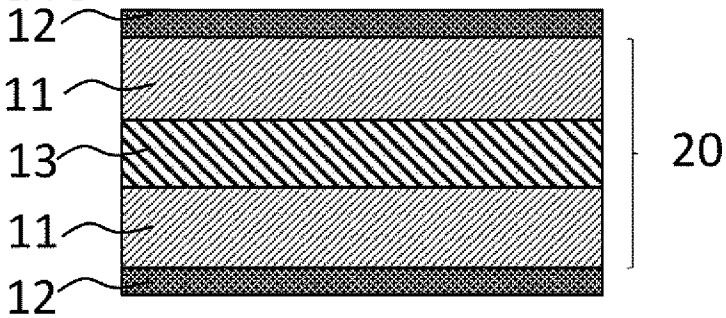
[図3]



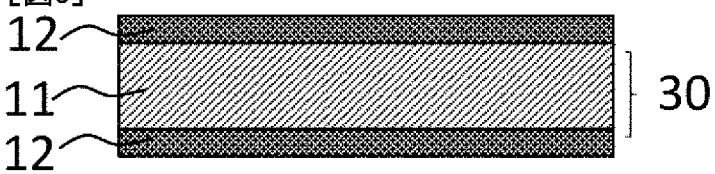
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/011552

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. B01F17/52(2006.01)i, C08F216/38(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C08K3/04(2006.01)i, C08K3/38(2006.01)i, C09J7/38(2018.01)i
FI: B01F17/52, C08F216/38, C08L29/14, C08L101/00, C08K3/04, C08K3/38, C09J7/38
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl. B01F17/52, C08F216/38, C08L29/14, C08L101/00, C08K3/04, C08K3/38, C09J7/38

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)
CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2014-28900 A (SHOWA DENKO KK) 13.02.2014 (2014-02-13), claims, paragraphs [0019]-[0021], [0061]-[0065], examples 1-14	1-11
X	WO 2012/36172 A1 (HODOGAYA CHEMICAL CO., LTD.) 22.03.2012 (2012-03-22), claims, paragraphs [0043], [0049], [0075], examples 1, 2, 8, 9	1-11
X	JP 2015-109288 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 11.06.2015 (2015-06-11), claims, paragraph [0040], examples 2, 3, 5	1-11
X	JP 2014-181140 A (UBE INDUSTRIES, LTD.) 29.09.2014 (2014-09-29), claims, paragraphs [0014], [0066], example 21	1-11

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
13.05.2020	26.05.2020

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/011552

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-75705 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 11.03.2004 (2004-03-11), claims, paragraphs [0002], [0020], examples	1-11
X	JP 2006-348215 A (MITSUBISHI PENCIL CO., LTD.) 28.12.2006 (2006-12-28), claims, paragraphs [0017]-[0024], example 1	1-5
X	JP 2018-73603 A (TOYO INK SC HOLDINGS CO., LTD.) 10.05.2018 (2018-05-10), claims, paragraphs [0014], [0027]-[0034], examples 17, 18	1-11
X	JP 2013-155366 A (JNC CORPORATION) 15.08.2013 (2013-08-15), claims, paragraphs [0012], [0035], example 15	1-11
X	JP 2017-66327 A (MITSUBISHI PENCIL CO., LTD.) 06.04.2017 (2017-04-06), claims, paragraphs [0014], [0019], [0020], [0029], examples 3, 4	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/011552

JP 2014-28900 A	13.02.2014	(Family: none)
WO 2012/36172 A1	22.03.2012	CN 103201026 A KR 10-2013-0099030 A
JP 2015-109288 A	11.06.2015	(Family: none)
JP 2014-181140 A	29.09.2014	(Family: none)
JP 2004-75705 A	11.03.2004	(Family: none)
JP 2006-348215 A	28.12.2006	(Family: none)
JP 2018-73603 A	10.05.2018	(Family: none)
JP 2013-155366 A	15.08.2013	CN 103192571 A KR 10-2013-0080418 A TW 201328882 A
JP 2017-66327 A	06.04.2017	KR 10-2017-0039599 A CN 106867158 A TW 201723062 A

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/011552

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B01F 17/52(2006.01)i; C08F 216/38(2006.01)i; C08L 29/14(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C08K 3/04(2006.01)i; C08K 3/38(2006.01)i; C09J 7/38(2018.01)i
FI: B01F17/52; C08F216/38; C08L29/14; C08L101/00; C08K3/04; C08K3/38; C09J7/38

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））

B01F17/52; C08F216/38; C08L29/14; C08L101/00; C08K3/04; C08K3/38; C09J7/38

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）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2014-28900 A (昭和電工株式会社) 13.02.2014 (2014-02-13) 特許請求の範囲、［００１９］～［００２１］、［００６１］～［００６５］、実施例１－１４	１－１１
X	WO 2012/36172 A1 (保土ケ谷化学工業株式会社) 22.03.2012 (2012-03-22) 特許請求の範囲、［００４３］、［００４９］、［００７５］、実施例１，２，８，９	１－１１
X	JP 2015-109288 A (積水化学工業株式会社) 11.06.2015 (2015-06-11) 特許請求の範囲、［００４０］、実施例２，３，５	１－１１
X	JP 2014-181140 A (宇部興産株式会社) 29.09.2014 (2014-09-29) 特許請求の範囲、［００１４］、［００６６］、実施例２１	１－１１
X	JP 2004-75705 A (積水化学工業株式会社) 11.03.2004 (2004-03-11) 特許請求の範囲、［０００２］、［００２０］、実施例	１－１１
X	JP 2006-348215 A (三菱鉛筆株式会社) 28.12.2006 (2006-12-28) 特許請求の範囲、［００１７］～［００２４］、実施例１	１－５

☑ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊ 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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
13.05.2020	26.05.2020

名称及びあて先	権限のある職員（特許庁審査官）
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	上條　のぶよ 4V 9454 電話番号 03-3581-1101 内線 3480

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2018-73603 A (東洋インキＳＣホールディングス株式会社) 10.05.2018 (2018-05-10) 特許請求の範囲、［００１４］、［００２７］～［００３４］、実施例１７，１８	１－１１
X	JP 2013-155366 A (ＪＮＣ株式会社) 15.08.2013 (2013-08-15) 特許請求の範囲、［００１２］、［００３５］、実施例１５	１－１１
X	JP 2017-66327 A (三菱鉛筆株式会社) 06.04.2017 (2017-04-06) 特許請求の範囲、［００１４］、［００１９］～［００２０］、［００２９］、実施例３，４	１－１１

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/JP2020/011552

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2014-28900 A	13.02.2014	（ファミリーなし）	
WO 2012/36172 A1	22.03.2012	CN 103201026 A	
		KR 10-2013-0099030 A	
JP 2015-109288 A	11.06.2015	（ファミリーなし）	
JP 2014-181140 A	29.09.2014	（ファミリーなし）	
JP 2004-75705 A	11.03.2004	（ファミリーなし）	
JP 2006-348215 A	28.12.2006	（ファミリーなし）	
JP 2018-73603 A	10.05.2018	（ファミリーなし）	
JP 2013-155366 A	15.08.2013	CN 103192571 A	
		KR 10-2013-0080418 A	
		TW 201328882 A	
JP 2017-66327 A	06.04.2017	KR 10-2017-0039599 A	
		CN 106867158 A	
		TW 201723062 A	