

(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7月2日(02.07.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/137875 A1

(51) 国際特許分類:

C01F 7/44 (2006.01) *C08K 3/22* (2006.01)
C01B 33/12 (2006.01) *C08K 7/00* (2006.01)
C01G 39/00 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)

SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/050077

(22) 国際出願日: 2019年12月20日(20.12.2019)

(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 2018-247894 2018年12月28日(28.12.2018) JP

(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).

(71) 出願人: D I C 株式会社(DIC CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1748520 東京都板橋区坂下3丁目3番58号 Tokyo (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(72) 発明者: 高田 新吾(TAKADA Shingo); 〒2858668 千葉県佐倉市坂戸631番地 D I C 株式会社 総合研究所内 Chiba (JP). 小池 竜(KOIKE Ryuu); 〒2858668 千葉県佐倉市坂戸631番地 D I C 株式会社 総合研究所内 Chiba (JP). 袁 建軍(YUAN Jianjun); 〒2858668 千葉県佐倉市坂戸631番地 D I C 株式会社 総合研究所内 Chiba (JP). 佐野 義之(SANO Yoshiyuki); 〒2858668 千葉県佐倉市坂戸631番地 D I C 株式会社 総合研究所内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 棚井 澄雄, 外(TANAI Sumio et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 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,

(54) **Title:** PLATE-LIKE ALUMINA PARTICLES, PLATE-LIKE ALUMINA PARTICLES PRODUCTION METHOD, AND RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 板状アルミナ粒子、板状アルミナ粒子の製造方法、及び樹脂組成物

(57) **Abstract:** The plate-like alumina particles according to the present invention have an aspect ratio of 5-500, and exhibit, in a solid ²⁷Al NMR analysis, a longitudinal relaxation time T₁ of 5 seconds or more with respect to a peak of 10-30 ppm of 6-coordinated aluminum at a static magnetic field intensity of 14.1T.

(57) 要約: アスペクト比が5~500であり、固体²⁷Al NMR分析にて、静磁場強度14.1Tにおける10~30ppmの6配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間T₁が、5秒以上である、板状アルミナ粒子。



WO 2020/137875 A1

明 細 書

発明の名称：

板状アルミナ粒子、板状アルミナ粒子の製造方法、及び樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、板状アルミナ粒子、板状アルミナ粒子の製造方法、及び樹脂組成物に関する。

本願は、2018年12月28日に、日本に出願された特願2018-247894号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 無機フィラーであるアルミナ粒子は、様々な用途で利用されている。なかでも、高アスペクト比の板状アルミナ粒子は、球状のアルミナ粒子に比べて熱的特性及び光学特性等に特に優れており、更なる性能の向上が求められている。

従来、板状アルミナ粒子が本来持つ上記特性や、分散性等を向上させるために、長径や厚みなどの形状に特徴を備えた、種々の板状アルミナ粒子が知られている（特許文献1～2）。また、板状アルミナ粒子の高アスペクト化を目的とし、形状を制御する為の製法として、リン酸化合物を形状制御剤として添加して水熱合成する方法や（特許文献3）、ケイフッ化物を添加して焼成する方法（特許文献4）等が知られている。

更に、板状アルミナの製造に当たり、結晶制御剤としてシリコン又はケイ素元素を含むケイ素化合物を用いる板状アルミナの製造方法（特許文献5）も知られている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2003-192338号公報

特許文献2：特開2002-249315号公報

特許文献3：特開平9-59018号公報

特許文献4：特開2009-35430号公報

特許文献5：特開2016-222501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、従来の板状アルミナ粒子では、樹脂に配合して樹脂組成物としたときに、その加工安定性が悪く、所望の形状への加工が難しいという問題がある。

[0005] 本発明は、上記のような問題点を解消するためになされたものであり、樹脂とともに配合して樹脂組成物としたときに樹脂組成物の加工安定性に優れる、アルミナ粒子の提供を課題とする。

また、本発明は、加工安定性に優れた樹脂組成物の提供を課題とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、板状で且つ結晶性に優れた板状アルミナ粒子を得ることを可能とし、該板状アルミナ粒子を含む樹脂組成物が加工安定性に優れることを見出し、本発明を完成させた。

すなわち、本発明の一態様は、下記の板状アルミナ粒子、板状アルミナ粒子の製造方法、及び樹脂組成物である。

[0007] (1) アスペクト比が5～500であり、

固体²⁷Al NMR分析にて、静磁場強度14.1 Tにおける10～30 ppmの6配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間 T_1 が、5秒以上である、板状アルミナ粒子。

(2) ケイ素及び／又はゲルマニウムを含む、前記(1)に記載の板状アルミナ粒子。

(3) モリブデンを含む、前記(1)又は(2)に記載の板状アルミナ粒子。

(4) 板状アルミナ粒子の総質量100質量%に対するモリブデンの含有量が、三酸化モリブデン換算で、0.1以上1質量%以下である、前記(3)

に記載の板状アルミナ粒子。

(5) 厚みが $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ であり、平均粒子径が $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ である、前記(1)～(4)のいずれか一つに記載の板状アルミナ粒子。

(6) 平均粒子径が $0.1 \sim 7 \mu\text{m}$ である、前記(1)～(5)のいずれか一つに記載の板状アルミナ粒子。

(7) アルミニウム元素を含むアルミニウム化合物と、モリブデン元素を含むモリブデン化合物と、形状制御剤と、を混合して混合物とし、前記混合物を 1200°C 以上で焼成する、前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の板状アルミナ粒子の製造方法。

(8) 前記形状制御剤が、シリコン、ケイ素化合物、及びゲルマニウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種である、前記(7)に記載の板状アルミナ粒子の製造方法。

(9) 酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 Al_2O_3 換算で50質量%以上のアルミニウム元素を含むアルミニウム化合物と、 MoO_3 換算で2質量%以上15質量%以下のモリブデン元素を含むモリブデン化合物と、 SiO_2 換算又は GeO_2 換算で0.1質量%以上10質量%以下の形状制御剤と、を混合して混合物とし、前記混合物を焼成する、前記(7)又は(8)に記載の板状アルミナ粒子の製造方法。

(10) 樹脂と、前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の板状アルミナ粒子と、を含有する樹脂組成物。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、樹脂とともに配合して樹脂組成物としたときに樹脂組成物の加工安定性に優れる、板状アルミナ粒子を提供できる。

また、本発明によれば、加工安定性に優れた樹脂組成物を提供できる。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の実施形態における板状アルミナ粒子、板状アルミナ粒子の製造方法、及び樹脂組成物を説明する。

[0010] ≪板状アルミナ粒子≫

実施形態の板状アルミナ粒子は、アスペクト比が5～500であり、固体²⁷Al NMR分析にて、静磁場強度14.1 Tにおける10～30 ppmの6配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間 T_1 が、5秒以上であるものである。

[0011] 実施形態の板状アルミナ粒子は、上記縦緩和時間 T_1 が5秒以上である。このことは、板状アルミナ粒子の結晶性が高いことを意味するものである。固体状態における縦緩和時間が大きいと結晶の対称性がよく、結晶性が高いという知見が報告されている（既報：北川進ら著「錯体化学会選書4 多核種の溶液および固体NMR」、三共出版株式会社、p80～82））。

[0012] 実施形態の板状アルミナ粒子において、上記縦緩和時間 T_1 は、5秒以上であり、5秒以上が好ましく、6秒以上がより好ましく、7秒以上がさらに好ましい。

実施形態の板状アルミナ粒子において、上記縦緩和時間 T_1 の上限値は、特に制限されるものではないが、例えば、22秒以下であってもよく、15秒以下であってもよく、12秒以下であってもよい。

上記に例示した上記縦緩和時間 T_1 の数値範囲の一例としては、5秒以上22秒以下であってもよく、6秒以上15秒以下であってもよく、7秒以上12秒以下であってもよい。

[0013] 実施形態の板状アルミナ粒子は、固体²⁷Al NMR分析にて、静磁場強度14.1 Tにおける60～90 ppmの4配位アルミニウムのピークが不検出であることが好ましい。かかる板状アルミナ粒子は、形状安定性により優れる傾向にある。

[0014] 従来、無機物の結晶性の程度は、XRD分析等の結果により評価されることが、一般的である。しかし、本発明者らの検討により、アルミナ粒子に対する結晶性の評価について、上記縦緩和時間 T_1 を指標とすることで、従来のXRD分析よりも精度の良い解析結果が得られることを見出だした。さらに、上記縦緩和時間 T_1 の値と板状アルミナ粒子の形状保持率（後述の実施例参照）及び樹脂組成物の加工安定性が、非常に良く関連することを見出だした。

。実施形態の板状アルミナ粒子は、上記縦緩和時間 T_1 が5秒以上と大きく、アルミナ粒子の結晶性が高いといえる。すなわち、実施形態の板状アルミナ粒子は、おそらく結晶性が高いため強度が高く、その結果、形状保持率が向上し樹脂組成物の加工安定性に優れるものと考えられる。

[0015] 板状のアルミナ粒子は、球状のアルミナ粒子と比べ、従来、結晶性の高いアルミナ粒子を得ることは難しかった。このことは、板状アルミナ粒子では、球状のアルミナ粒子とは異なり、その製造過程において結晶成長の方向に偏りを生じさせる必要があるためと考えられる。

対して、実施形態の板状アルミナ粒子は、板状形状でありながら結晶性が高いものである。そのため、優れた熱伝導性を示す等の板状アルミナ粒子の利点を備えつつ、さらに形状保持率及び樹脂組成物の加工安定性が高められた、非常に有用なものである。

[0016] 本明細書でいう「板状」は、アルミナ粒子の平均粒子径を厚みで除したアスペクト比が2以上であることを指すが、アスペクト比が高いほど、高結晶な粒子が得られ難く、それらを両立させるという観点のもと、実施形態のアルミナ粒子のアスペクト比は5以上とする。なお、本明細書において、「アルミナ粒子の厚み」は、走査型電子顕微鏡（SEM）により得られたイメージから、無作為に選出された少なくとも50個の板状アルミナ粒子について測定された厚みの算術平均値とする。また、「アルミナ粒子の平均粒子径」は、レーザー回折・散乱式粒度分布測定装置により測定された体積基準の累積粒度分布から、体積基準メジアン径 d_{50} として算出された値とする。

[0017] 実施形態のアルミナ粒子は、厚み、平均粒子径、及びアスペクト比の条件は、それが板状である範囲で、それらの値を自由に組み合わせることもできる。

実施形態の板状アルミナ粒子は、厚みが $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ であることが好ましく、平均粒子径が $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ であることが好ましく、厚みに対する粒子径の比率であるアスペクト比が $5 \sim 500$ であることが好ましい。板状アルミナ粒子のアスペクト比が5以上であると、2次元の配向特性を有

し得ることから好ましく、板状アルミナ粒子のアスペクト比が500以下であると、機械的強度に優れることから好ましい。実施形態の板状アルミナ粒子は、厚みが0.03~3 μm であることがより好ましく、平均粒子径が0.5~100 μm であることがより好ましく、厚みに対する粒子径の比率であるアスペクト比が10~300であることがより好ましい。アスペクト比が10~300であると、顔料とした際に高輝度となるため、好ましい。実施形態の板状アルミナ粒子は、厚みが0.1~1 μm であることがさらに好ましく、平均粒子径が1~50 μm であることがさらに好ましく、厚みに対する粒子径の比率であるアスペクト比が11~100であることがさらに好ましい。

また、平均粒子径の小さな粒子であるほど、高結晶性の板状アルミナ粒子を得るのが難しいという観点からは、実施形態の板状アルミナ粒子の平均粒子径は、0.1~7 μm であることも好ましく、0.1~5 μm であることもより好ましい。また、同様にアスペクト比の大きな粒子であるほど、高結晶性の板状アルミナ粒子を得るのが難しいという観点から、実施形態の板状アルミナ粒子のアスペクト比は、17~50であることが好ましい。

実施形態の板状アルミナ粒子は、円形板状や楕円形板状であってもよいが、粒子形状は、例えば、六角~八角といった多角板状であることが、取り扱い性や製造のし易さの点から好ましい。

[0018] 実施形態の板状アルミナ粒子における、その厚み、平均粒子径、アスペクト比等は、例えば、モリブデン化合物と、アルミニウム化合物と、形状制御剤との使用割合、形状制御剤の種類、形状制御剤とアルミニウム化合物との存在状態を、適宜選択することにより、制御することができる。

[0019] 板状アルミナ粒子はモリブデンを含んでもよい。板状アルミナ粒子は、原料または形状制御剤などからの不純物を含んでもよい。なお、板状アルミナ粒子はさらに有機化合物等を含んでもよい。

[0020] また、板状アルミナ粒子は、モリブデンを含ませ、後記する製造方法において、その含有量や存在状態を制御することにより、使用する用途に応じた

板状アルミナの物性や性能、例えば色相や透明性などの光学特性等を任意に調整することが可能である。

[0021] 実施形態の板状アルミナ粒子は、アスペクト比が5～500で上記縦緩和時間 T_1 が、5秒以上でありさえすれば、どのような製造方法に基づいて得られたものであってもよいが、よりアスペクト比が高く、より分散性に優れ、より生産性に優れる点で、モリブデン化合物と形状制御剤の存在下でアルミニウム化合物を焼成する事により得ることが好ましい。形状制御剤は、シリコン、ケイ素化合物、及びゲルマニウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種を使用するのがよい。

上記製造方法において、モリブデン化合物はフラックス剤として用いられる。本明細書中では、以下、フラックス剤としてモリブデン化合物を用いたこの製造方法を単に「フラックス法」ということがある。フラックス法については、後に詳記する。なお、かかる焼成により、モリブデン化合物がアルミニウム化合物と高温で反応し、モリブデン酸アルミニウムを形成した後、このモリブデン酸アルミニウムが、さらに、より高温でアルミナと酸化モリブデンに分解する際に、モリブデン化合物が板状アルミナ粒子内に取り込まれるものと考えられる。また、酸化モリブデンは昇華し、それを回収して、再利用することもできる。

板状アルミナ粒子に取り込まれない酸化モリブデンは、昇華させることにより回収して、再利用することが好ましい。こうすることで、板状アルミナ表面に付着する酸化モリブデン量を低減でき、樹脂の様な有機バインダーやガラスの様な無機バインダーなどの被分散媒体に分散させる際に、酸化モリブデンがバインダーに混入することがなく、板状アルミナ本来の性質を最大限に付与することが可能となる。

尚、本明細書においては、後記する製造方法において昇華しうる性質を有するものをフラックス剤、昇華し得ないものを形状制御剤と称するものとする。

[0022] 前記板状アルミナ粒子の製造において、モリブデン及び形状制御剤を活用

することにより、得られるアルミナ粒子は高い α 結晶率を有し、自形を持つことから、アルミナ粒子の優れた分散性と機械強度、高熱伝導性を実現することができる。

[0023] 実施形態の板状アルミナ粒子の等電点のpHは、例えば2～6の範囲であり、2.5～5の範囲であることが好ましく、3～4の範囲であることがより好ましい。等電点のpHが上記範囲内にある板状アルミナ粒子は、静電反発力が高く、それ自体で上記した様な被分散媒体へ配合した際の分散安定性を高めることができ、更なる性能向上を意図したカップリング処理剤等の表面処理による改質がより容易となる。

等電点のpHの値は、ゼータ電位測定をゼータ電位測定装置（マルバーン社製、ゼータサイザーナノZSP）にて、試料20mgと10mM KCl水溶液10mLを泡取り鍊太郎（シンキー社製、ARE-310）にて攪拌・脱泡モードで3分間攪拌し、5分静置した上澄みを測定用試料とし、自動滴定装置により、試料に0.1N HClを加え、pH=2までの範囲でゼータ電位測定を行い（印加電圧100V、Monomodモード）、電位ゼロとなる等電点のpHを評価することで得られる。

[0024] 実施形態の板状アルミナ粒子は、例えば密度が3.70g/cm³以上4.10g/cm³以下であり、密度が3.72g/cm³以上4.10g/cm³以下であることが好ましく、密度が3.80g/cm³以上4.10g/cm³以下であることがより好ましい。

密度は、300℃3時間の条件で板状アルミナ粒子の前処理を行った後、マイクロメリティックス社製 乾式自動密度計アキュピックII1330を用いて、測定温度25℃、ヘリウムをキャリアガスとして使用した条件で測定できる。

[0025] [アルミナ]

実施形態の板状アルミナ粒子に含まれる「アルミナ」は、酸化アルミニウムであり、例えば、 γ 、 δ 、 θ 、 κ 等の各種の結晶形の遷移アルミナであっても、または遷移アルミナ中にアルミナ水和物を含んでいてもよいが、より

機械的な強度または熱伝導性に優れる点で、基本的に α 結晶形（ α 型）であることが好ましい。 α 結晶形がアルミナの緻密な結晶構造であり、実施形態の板状アルミナの機械強度または熱伝導性の向上に有利となる。

α 結晶化率は、100%にできるだけ近いほうが、 α 結晶形本来の性質を発揮しやすくなるので好ましい。実施形態の板状アルミナ粒子の α 結晶化率は、例えば90%以上であり、95%以上であることが好ましく、99%以上であることがより好ましい。

[0026] [ケイ素・ゲルマニウム]

実施形態の板状アルミナ粒子は、ケイ素及び／又はゲルマニウムを含んでいてもよい。

実施形態の板状アルミナ粒子は、形状制御剤としてシリコン又はケイ素化合物を使用した場合、XRF分析によってSiが検出され得る。実施形態の板状アルミナ粒子は、XRF分析によって取得された、Alに対するSiのモル比 $[Si] / [Al]$ が例えば0.04以下であり、0.035以下であることが好ましく、0.02以下であることがより好ましい。

また、前記モル比 $[Si] / [Al]$ の値は、特に限定されるものではないが、例えば0.003以上であり、0.004以上であることが好ましく、0.008以上であることがより好ましい。

実施形態の板状アルミナ粒子は、XRF分析によって取得された、Alに対するSiのモル比 $[Si] / [Al]$ が例えば0.003以上0.04以下であり、0.004以上0.035以下であることが好ましく、0.008以上0.02以下であることがより好ましい。

前記XRF分析により取得された前記モル比 $[Si] / [Al]$ の値が、上記範囲内である板状アルミナ粒子は、アスペクト比が高く、上記縦緩和時間 T_1 の値（高結晶性）がより好ましいものとなる。

実施形態の板状アルミナ粒子は、その製造方法で用いたシリコン又はケイ素化合物に対応した、ケイ素を含み得るものである。実施形態の板状アルミナ粒子100質量%（板状アルミナ粒子の総質量を100質量%とする）に

対するケイ素の含有量は、二酸化ケイ素換算で、好ましくは、10質量%以下であり、より好ましくは、0.001～5質量%であり、さらに好ましくは、0.01～4質量%以下であり、特に好ましくは、0.6～2.5質量%以下である。ケイ素の含有量が上記範囲内であると、アスペクト比が高く、上記縦緩和時間 T_1 の値（高結晶性）がより好ましいものとなることから好ましい。上記ケイ素の含有量はXRF分析により求めることができる。

[0027] 実施形態の板状アルミナ粒子は、形状制御剤としてゲルマニウム又はゲルマニウム化合物を使用した場合、XRF分析によってGeが検出され得る。実施形態の板状アルミナ粒子は、XRF分析によって取得された、Alに対するGeのモル比 $[Ge]/[Al]$ が例えば0.08以下であり、0.05以下であることが好ましく、0.03以下であることがより好ましい。

また、前記モル比 $[Ge]/[Al]$ の値は、特に限定されるものではないが、例えば0.005以上であり、0.01以上であることが好ましく、0.015以上であることがより好ましい。

また、前記モル比 $[Ge]/[Al]$ の値は、特に限定されるものではないが、例えば0.0005以上であり、0.001以上であることが好ましく、0.0015以上であることがより好ましい。

実施形態の板状アルミナ粒子は、XRF分析によって取得された、Alに対するGeのモル比 $[Ge]/[Al]$ が例えば0.005以上0.08以下であり、0.01以上0.05以下であることが好ましく、0.015以上0.03以下であることがより好ましい。

実施形態に係る板状アルミナ粒子は、XRF分析によって取得された、Alに対するGeのモル比 $[Ge]/[Al]$ が例えば0.0005以上0.08以下であり、0.001以上0.05以下であることが好ましく、0.0015以上0.03以下であることがより好ましい。

前記XRF分析により取得された前記モル比 $[Ge]/[Al]$ の値が、上記範囲内である板状アルミナ粒子は、アスペクト比が高く、上記縦緩和時間 T_1 の値（高結晶性）がより好ましいものとなる。

実施形態の板状アルミナ粒子は、その製造方法で用いた原料ゲルマニウム化合物に対応した、ゲルマニウムを含むものである。実施形態の板状アルミナ粒子100質量%（板状アルミナ粒子の総質量を100質量%とする）に対するゲルマニウムの含有量は、二酸化ゲルマニウム換算で、好ましくは、10質量%以下であり、より好ましくは、0.001～5質量%であり、さらに好ましくは、0.01～4質量%であり、さらに好ましくは、0.1～3.0質量%であり、特に好ましくは、0.6～3.0質量%である。ゲルマニウムの含有量が上記範囲内であると、アスペクト比が高く、上記縦緩和時間 T_1 の値（高結晶性）がより好ましいものとなる。上記ゲルマニウムの含有量はXRF分析により求めることができる。

[0028] [モリブデン]

また、実施形態の板状アルミナ粒子は、モリブデンを含んでいてもよい。当該モリブデンは、フラックス剤として用いたモリブデン化合物に由来するものである。

モリブデンは触媒機能、光学的機能を有する。また、モリブデンを活用することにより、高アスペクト比と優れた分散性を有する板状アルミナ粒子を製造することができる。また、板状アルミナ粒子に含まれたモリブデンの特性を利用して、酸化反応触媒、光学材料の用途に適用することが可能となる。

[0029] 当該モリブデンとしては、特に制限されないが、モリブデン金属の他、酸化モリブデンや一部が還元されたモリブデン化合物等が含まれる。モリブデンは、 MoO_3 として板状アルミナ粒子に含まれると考えられるが、 MoO_3 以外にも MoO_2 や MoO 等として板状アルミナ粒子に含まれてもよい。

[0030] モリブデンの含有形態は、特に制限されず、板状アルミナ粒子の表面に付着する形態で含まれていても、アルミナの結晶構造のアルミニウムの一部に置換された形態で含まれていてもよいし、これらの組み合わせであってもよい。

[0031] 実施形態の板状アルミナ粒子100質量%（板状アルミナ粒子の総質量を

100質量%とする)に対するモリブデンの含有量は、三酸化モリブデン換算で、好ましくは10質量%以下であり、より好ましくは5質量%以下であり、さらに好ましくは2質量%以下であり、特に好ましくは1質量%以下である。

実施形態の板状アルミナ粒子100質量%に対するモリブデンの含有量は、三酸化モリブデン換算で、好ましくは0.001質量%以上であり、より好ましくは0.01質量%以上であり、さらに好ましくは0.1質量%以上である。

上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の板状アルミナ粒子100質量%に対するモリブデンの含有量は、三酸化モリブデン換算で、0.001~5質量%であってもよく、0.01~2質量%であってもよく、0.1~1質量%であってもよい。モリブデンの含有量が10質量%以下であると、アルミナの α 単結晶品質を向上させることから好ましい。

上記モリブデンの含有量はXRF分析により求めることができる。XRF分析は、後述する実施例に記載の測定条件と同一の条件、又は同一の測定結果が得られる互換性のある条件のもと実施されるものとする。

[0032] [有機化合物]

一実施形態において、板状アルミナ粒子は有機化合物を含んでいてもよい。当該有機化合物は、板状アルミナ粒子の表面に存在し、板状アルミナ粒子の表面物性を調節する機能を有する。例えば、表面に有機化合物を含んだ板状アルミナ粒子は樹脂との親和性を向上することから、フィラーとして板状アルミナ粒子の機能を最大限に発現することができる。

[0033] 有機化合物としては、特に制限されないが、有機シラン、アルキルホスホン酸、およびポリマーが挙げられる。

[0034] 前記有機シラン化合物としては、例えば、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、*n*-プロピルトリメトキシシラン、*n*-プロピルトリエトキシシラン、*i*s*o*-プロピルトリメトキシシラン、*i*s*o*-プロピルトリエトキシ

シラン、ペンチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、オクタニルトリメトキシシラン等のアルキル基の炭素数が1～22までのアルキルトリメトキシシランまたはアルキルトリクロロシラン類、3, 3, 3-トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、トリデカフルオロ-1, 1, 2, 2-テトラヒドロオクチル) トリクロロシラン類、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、p-クロロメチルフェニルトリメトキシシラン、p-クロロメチルフェニルトリエトキシシラン類等、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 β -(3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン、グリシドキシオクチルトリメトキシシラン等のエポキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン等のアミノシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等のメルカプトシラン、p-スチリルトリメトキシシラン、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリス (β -メトキシエトキシ) シラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン等のビニルシラン、さらに、エポキシ系、アミノ系、ビニル系の高分子タイプのシランが挙げられる。なお、上記有機シラン化合物は、単独で含まれていても、2種以上を含んでいてもよい。

[0035] 前記ホスホン酸としては、例えばメチルホスホン酸、エチルホスホン酸、プロピルホスホン酸、ブチルホスホン酸、ペンチルホスホン酸、ヘキシルホスホン酸、ヘプチルホスホン酸、オクチルホスホン酸、デシルホスホン酸、ドデシルホスホン酸、オクタデシルホスホン酸、2-エチルヘキシルホスホン酸、シクロヘキシルメチルホスホン酸、シクロヘキシルエチルホスホン酸、ベンジルホスホン酸、フェニルホスホン酸、ドデシルベンゼンホスホン酸が挙げられる。

[0036] 前記ポリマーとしては、例えば、ポリ（メタ）アクリレート類を好適に用いることができる。具体的には、ポリメチル（メタ）アクリレート、ポリエチル（メタ）アクリレート、ポリブチル（メタ）アクリレート、ポリベンジル（メタ）アクリレート、ポリシクロヘキシル（メタ）アクリレート、ポリ α -ブチル（メタ）アクリレート、ポリグリシジル（メタ）アクリレート、ポリペンタフルオロプロピル（メタ）アクリレート等であり、また、汎用のポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリビニル酢酸エステル、エポキシ樹脂、ポリエステル、ポリイミド、ポリカーボネート等ポリマーを挙げることができる。

[0037] なお、上記有機化合物は、単独で含まれていても、2種以上を含んでいてもよい。

[0038] 有機化合物の含有形態としては、特に制限されず、アルミナと共有結合により連結されていてもよいし、アルミナを被覆していてもよい。

[0039] 有機化合物の含有率は、板状アルミナ粒子の総質量に対して、20質量%以下であることが好ましく、10～0.01質量%であることがさらに好ましい。有機化合物の含有率が20質量%以下であると、板状アルミナ粒子由来の物性発現が容易にできることから好ましい。

[0040] 実施形態の板状アルミナ粒子は、樹脂に配合して樹脂組成物を製造したときに、加工安定性が良く、所望の形状への加工が容易である。実施形態の板状アルミナ粒子は、上記縦緩和時間 T_1 の値が長いため、結晶性が高められている。したがって、実施形態の板状アルミナ粒子は、アルミナの結晶性が高いために粒子の強度が高く、樹脂組成物の製造過程で樹脂と板状アルミナ粒子とが混合されたときに、板が割れ難いものと考えられる。更には、おそらく実施形態の板状アルミナ粒子は、アルミナの結晶性が高いために粒子表面の凹凸が少なく、樹脂との密着に優れるものと考えられる。これらの要因により、実施形態の板状アルミナ粒子では、樹脂組成物の加工安定性が良好であるものと考えられる。実施形態の板状アルミナ粒子によれば、樹脂組成物に配合した場合等であっても、本来の板状アルミナ粒子の性能が良好に発揮

される。

[0041] <板状アルミナ粒子の製造方法>

板状アルミナ粒子の製造方法は、特に制限されず、公知の技術が適宜適用されうるが、相対的に低温で高 α 結晶化率を有するアルミナを好適に制御することができる観点から、好ましくはモリブデン化合物を利用したフラックス法での製造方法が適用されうる。

[0042] より詳細には、板状アルミナ粒子の好ましい製造方法は、モリブデン化合物および形状制御剤の存在下で、アルミニウム化合物を焼成する工程（焼成工程）を含む。焼成工程は焼成対象の混合物を得る工程（混合工程）で得られた混合物を焼成する工程であってもよい。

[0043] [混合工程]

混合工程は、アルミニウム化合物と、モリブデン化合物と、形状制御剤と、を混合して混合物とする工程である。以下、混合物の内容について説明する。

[0044] (アルミニウム化合物)

本明細書におけるアルミニウム化合物は、アルミニウム元素を含むものであり、実施形態の板状アルミナ粒子の原料であり、熱処理によりアルミナになるものであれば特に限定されず、例えば、塩化アルミニウム、硫酸アルミニウム、塩基性酢酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、ペーマイト、擬ペーマイト、遷移アルミナ（ γ -アルミナ、 δ -アルミナ、 θ -アルミナなど）、 α -アルミナ、二種以上の結晶相を有する混合アルミナなどが使用でき、これら前駆体としてのアルミニウム化合物の形状、粒子径、比表面積等の物理形態については、特に限定されるものではない。

[0045] 下で詳記するフラックス法によれば、実施形態の板状アルミナ粒子の形状は、例えば、球状、無定形、アスペクトのある構造体（ワイヤ、ファイバー、リボン、チューブなど）、シートなどのいずれであっても好適に用いることができる。

[0046] 同様に、アルミニウム化合物の粒子径は、下で詳記するフラックス法によ

れば、数 nm から数百 μ m までのアルミニウム化合物の固体を好適に用いることができる。

[0047] アルミニウム化合物の比表面積も特に限定されるものではない。モリブデン化合物が効果的に作用するため、比表面積が大きい方が好ましいが、焼成条件やモリブデン化合物の使用量を調整する事で、いずれの比表面積のものでも原料として使用することができる。

[0048] また、アルミニウム化合物は、アルミニウム化合物のみからなるものであっても、アルミニウム化合物と有機化合物との複合体であってもよい。例えば、有機シランを用いて、アルミニウム化合物を修飾して得られる有機／無機複合体、ポリマーを吸着したアルミニウム化合物複合体などであっても好適に用いることができる。これらの複合体を用いる場合、有機化合物の含有率としては、特に制限はないが、板状アルミナ粒子を効率的に製造できる観点より、有機化合物の含有率は、アルミニウム化合物の総質量に対して、60質量%以下であることが好ましく、30質量%以下であることがより好ましい。

[0049] (形状制御剤)

実施形態の板状アルミナ粒子を形成するために、形状制御剤を用いることができる。

形状制御剤はモリブデン化合物の存在下でアルミナ化合物を焼成によるアルミナの板状結晶成長に重要な役割を果たす。

[0050] 形状制御剤の存在状態は、特に制限されず、例えば、形状制御剤とアルミニウム化合物と物理混合物、形状制御剤がアルミニウム化合物の表面または内部に均一または局在に存在した複合体などが好適に用いることができる。

[0051] また、形状制御剤がアルミニウム化合物に添加しても良いが、アルミニウム化合物中に不純物として含んでも良い。

[0052] 形状制御剤は板状結晶成長に重要な役割を果たす。酸化モリブデンフラックス法では、酸化モリブデンがアルミニウム化合物と反応することでモリブデン酸アルミニウムを形成させ、次いで、このモリブデン酸アルミニウムが

分解する過程における化学ポテンシャルの変化が結晶化の駆動力となっているため、自形面（１１３）の発達した六角両錘型の多面体粒子が形成する。実施形態の製造方法においては、形状制御剤が、 α -アルミナ成長過程において粒子表面近傍に局在化することで、自形面（１１３）の生長が著しく阻害される結果、相対的に面方向の結晶方位の生長が速くなり、（００１）面又は（００６）面が成長し、板状形態を形成することができると考えられる。モリブデン化合物をフラックス剤として用いることで、 α 結晶化率が高い、モリブデンを含む板状アルミナ粒子をより容易に形成できる。

なお、上記メカニズムはあくまで推測のものであり、上記メカニズムと異なるメカニズムによって本発明の効果が得られる場合であっても本発明の技術的範囲に含まれる。

[0053] 形状制御剤の種類については、よりアスペクト比が高く、より分散性に優れ、より生産性に優れた板状アルミナ粒子を製造可能な点からも、シリコン、ケイ素化合物、及びゲルマニウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種を用いることが好ましい。

[0054] （シリコン又はケイ素化合物）

シリコン又はケイ素元素を含むケイ素化合物としては、特に制限されず、公知のものが使用されうる。シリコン又はケイ素化合物の具体例としては、金属シリコン、有機シラン、シリコン樹脂、シリカ微粒子、シリカゲル、メソポーラスシリカ、SiC、ムライト等の人工合成シリコン化合物；バイオシリカ等の天然シリコン化合物等が挙げられる。これらのうち、アルミニウム化合物との複合、混合がより均一的に形成できる観点から、有機シラン、シリコン樹脂、シリカ微粒子を用いることが好ましい。なお、シリコン又はケイ素化合物は、単独で用いても、２種以上を組み合わせ用いてもよい。また、本発明における効果を損なわない限りにおいて、他の形状制御剤と併用して使用してもよい。

[0055] シリコン又はケイ素化合物の形状は、特に制限されず、例えば、球状、無定形、アスペクトのある構造体（ワイヤ、ファイバー、リボン、チューブな

ど)、シートなどを好適に用いることができる。

[0056] (ゲルマニウム化合物)

形状制御剤として用いる原料ゲルマニウム化合物としては、特に制限されず、公知のものが使用されうる。原料ゲルマニウム化合物の具体例としては、ゲルマニウム金属、二酸化ゲルマニウム、一酸化ゲルマニウム、四塩化ゲルマニウム、Ge-C結合を有する有機ゲルマニウム化合物等が挙げられる。なお、原料ゲルマニウム化合物は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。また、本発明における効果を損なわない限りにおいて、他の形状制御剤と併用して使用してもよい。

[0057] 原料ゲルマニウム化合物の形状は、特に制限されず、例えば、球状、無定形、アスペクトのある構造体(ワイヤ、ファイバー、リボン、チューブなど)、シートなどを好適に用いることができる。

[0058] (カリウム化合物)

上記シリコン、ケイ素化合物、及びゲルマニウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種の形状制御剤とともに、さらにカリウム化合物を併用してもよい。

カリウム化合物としては、特に制限されないが、塩化カリウム、亜塩素酸カリウム、塩素酸カリウム、硫酸カリウム、硫酸水素カリウム、亜硫酸カリウム、亜硫酸水素カリウム、硝酸カリウム、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、酢酸カリウム、酸化カリウム、臭化カリウム、臭素酸カリウム、水酸化カリウム、珪酸カリウム、燐酸カリウム、燐酸水素カリウム、硫化カリウム、硫化水素カリウム、モリブデン酸カリウム、タングステン酸カリウム等が挙げられる。この際、前記カリウム化合物は、モリブデン化合物の場合と同様に、異性体を含む。これらのうち、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、酸化カリウム、水酸化カリウム、塩化カリウム、硫酸カリウム、モリブデン酸カリウムを用いることが好ましく、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、塩化カリウム、硫酸カリウム、モリブデン酸カリウムを用いることがより好ましい。なお、上述のカリウム化合物は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ

せて用いてもよい。また、モリブデン酸カリウム ($K_2Mo_nO_{3n+1}$ 、 $n = 1 \sim 3$) は、モリブデンを含むため、上述のモリブデン化合物としての機能も有しうる。

[0059] (モリブデン化合物)

モリブデン化合物は、モリブデン元素を含むものであり、後述するように、アルミナの α 結晶成長においてフラックス剤として機能する。

モリブデン化合物としては、特に制限されないが、酸化モリブデン、モリブデン金属が酸素との結合からなる酸根アニオン (MoO_x^{n-}) を含有する化合物が挙げられる。

[0060] 前記酸根アニオン (MoO_x^{n-}) を含有する化合物としては、特に制限されないが、モリブデン酸、モリブデン酸ナトリウム、モリブデン酸カリウム、モリブデン酸リチウム、 $H_3PMo_{12}O_{40}$ 、 $H_3SiMo_{12}O_{40}$ 、 $NH_4Mo_7O_{12}$ 、二硫化モリブデン等が挙げられる。

[0061] モリブデン化合物にシリコンを含むことも可能であり、その場合、シリコンを含むモリブデン化合物がフラックス剤と形状制御剤と両方の役割を果たす。

[0062] 上述のモリブデン化合物のうち、昇華し易く、かつコストの観点から、酸化モリブデンを用いることが好ましい。また、上述のモリブデン化合物は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0063] 上記のアルミニウム化合物、モリブデン化合物、及びシリコン、ケイ素化合物若しくはゲルマニウム化合物の使用量は、特に限定されるものではないが、好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 Al_2O_3 換算で50質量%以上のアルミニウム化合物と、 MoO_3 換算で40質量%以下のモリブデン化合物と、 SiO_2 換算又は GeO_2 換算で0.1質量%以上10質量%以下のシリコン、ケイ素化合物若しくはゲルマニウム化合物と、を混合して混合物とし、前記混合物を焼成することができる。より好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 Al_2O_3 換算で70質量%以上99質量%以下のアルミニウム化合物と、 MoO_3 換算で2

質量%以上15質量%以下のモリブデン化合物と、 SiO_2 換算又は GeO_2 換算で0.5質量%以上7質量%未満のシリコン、ケイ素化合物若しくはゲルマニウム化合物と、を混合して混合物とし、前記混合物を焼成することができる。さらに好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 Al_2O_3 換算で80質量%以上94.5質量%以下のアルミニウム化合物と、 MoO_3 換算で1.5質量%以上7質量%以下のモリブデン化合物と、 SiO_2 換算又は GeO_2 換算で0.8質量%以上4質量%以下のシリコン、ケイ素化合物若しくはゲルマニウム化合物と、を混合して混合物とし、前記混合物を焼成することができる。

上記の各原料の使用量の数値範囲は、それらの合計含有量が100質量%を超えない範囲において、適宜組み合わせることができる。

上記の範囲で各種化合物を使用することで、縦緩和時間 T_1 が、5秒以上であり、厚みが0.01~5 μm であり、平均粒子径が0.1~500 μm であり、厚みに対する粒子径の比率であるアスペクト比が5~500である板状アルミナ粒子を、容易に製造することができる。

[0064] 前記混合物が、さらに上記のカリウム化合物を含む場合、カリウム化合物の使用量は、特に限定されるものではないが、好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 K_2O 換算で5質量%以下のカリウム化合物を混合することができる。より好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 K_2O 換算で0.01質量%以上3質量%以下のカリウム化合物を混合することができる。さらに好ましくは、酸化物換算した原料全量を100質量%とした際に、 K_2O 換算で0.05質量%以上1質量%以下のカリウム化合物を混合することができる。

原料仕込み時に用いる又は焼成に当たって昇温過程の反応で生じるカリウム化合物として、水溶性のカリウム化合物、例えばモリブデン酸カリウムは、焼成温度域でも気化することなく、焼成後に洗浄で、容易に回収できるため、モリブデン化合物が焼成炉外へ放出される量も低減され、生産コストとしても大幅に低減することができる。

[0065] 上記のアルミニウム化合物、モリブデン化合物、シリコン又はケイ素化合物、ゲルマニウム化合物、及びカリウム化合物は、各酸化物換算の使用量の合計が100質量%を超えないよう使用される。

[0066] [焼成工程]

焼成工程は、モリブデン化合物および形状制御剤の存在下で、アルミニウム化合物を焼成する工程である。焼成工程は、前記混合工程で得られた混合物を焼成する工程であってもよい。

[0067] 実施形態の板状アルミナ粒子は、例えば、モリブデン化合物および形状制御剤の存在下で、アルミニウム化合物を焼成することで得られる。上記した通り、この製造方法はフラックス法と呼ばれる。

[0068] フラックス法は、溶液法に分類される。フラックス法とは、より詳細には、結晶－フラックス2成分系状態図が共晶型を示すことを利用した結晶成長の方法である。フラックス法のメカニズムとしては、以下の通りであると推測される。すなわち、溶質およびフラックスの混合物を加熱していくと、溶質およびフラックスは液相となる。この際、フラックスは融剤であるため、換言すれば、溶質－フラックス2成分系状態図が共晶型を示すため、溶質は、その融点よりも低い温度で溶融し、液相を構成することとなる。この状態で、フラックスを蒸発させると、フラックスの濃度は低下し、換言すれば、フラックスによる前記溶質の融点低下効果が低減し、フラックスの蒸発が駆動力となって溶質の結晶成長が起こる（フラックス蒸発法）。なお、溶質およびフラックスは液相を冷却することによっても溶質の結晶成長を起こすことができる（徐冷法）。

[0069] フラックス法は、融点よりもはるかに低い温度で結晶成長をさせることができる、結晶構造を精密に制御できる、自形をもつ多面体結晶体を形成できる等のメリットを有する。

[0070] フラックスとしてモリブデン化合物を用いたフラックス法による α -アルミナ粒子の製造では、そのメカニズムは必ずしも明らかではないが、例えば、以下のようなメカニズムによるものと推測される。すなわち、モリブデン

化合物の存在下でアルミニウム化合物を焼成すると、まず、モリブデン酸アルミニウムが形成される。この際、当該モリブデン酸アルミニウムは、上述の説明からも理解されるように、アルミナの融点よりも低温で α -アルミナ結晶を成長する。そして、例えば、フラックスを蒸発させることで、モリブデン酸アルミニウムが分解し、結晶成長することで α -アルミナ粒子を得ることができる。すなわち、モリブデン化合物がフラックスとして機能し、モリブデン酸アルミニウムという中間体を經由して α -アルミナ粒子が製造されるのである。

[0071] 形状制御剤として、さらにカリウム化合物を用いた場合の、フラックス法による α -アルミナ粒子の製造では、そのメカニズムは必ずしも明らかではないが、例えば、以下のようなメカニズムによるものと推測される。まず、モリブデン化合物とアルミニウム化合物が反応してモリブデン酸アルミニウムを形成する。そして、例えば、モリブデン酸アルミニウムが分解して酸化モリブデンとアルミナとなり、同時に、分解によって得られた酸化モリブデンを含むモリブデン化合物は、カリウム化合物と反応してモリブデン酸カリウムを形成する。当該モリブデン酸カリウムを含むモリブデン化合物の存在下でアルミナが結晶成長することで、実施形態の板状アルミナ粒子を得ることができる。

[0072] 上記フラックス法により、アスペクト比が5～500であり、固体 ^{27}Al NMR分析にて、静磁場強度14.1 Tにおける10～30 ppmの6配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間 T_1 が、5秒以上である板状アルミナ粒子を容易に製造することができる。

[0073] 焼成の方法は、特に限定はなく、公知慣用の方法で行う事ができる。焼成温度が700℃を超えると、アルミニウム化合物と、モリブデン化合物が反応して、モリブデン酸アルミニウムを形成する。さらに、焼成温度が900℃以上になると、モリブデン酸アルミニウムが分解し、形状制御剤の作用で板状アルミナ粒子が形成される。また、板状アルミナ粒子では、モリブデン酸アルミニウムが分解することで、アルミナと酸化モリブデンになる際に、

モリブデン化合物を酸化アルミニウム粒子内に取り込まれるものと考えられる。

また、焼成温度が900℃以上になると、モリブデン酸アルミニウムの分解により得られるモリブデン化合物（例えば三酸化モリブデン）がカリウム化合物と反応し、モリブデン酸カリウムが形成されるものと考えられる。

[0074] また、焼成する時に、アルミニウム化合物と、形状制御剤と、モリブデン化合物の状態は特に限定されず、モリブデン化合物および形状制御剤がアルミニウム化合物に作用できる同一の空間に存在すれば良い。具体的には、モリブデン化合物と形状制御剤とアルミニウム化合物との粉体を混ぜ合わせる簡便な混合、粉碎機等を用いた機械的な混合、乳鉢等を用いた混合であっても良く、乾式状態、湿式状態での混合であっても良い。

[0075] 焼成温度の条件に特に限定は無く、目的とする板状アルミナ粒子の平均粒子径、アスペクト比、上記縦緩和時間 T_1 の値分散性等により、適宜、決定される。通常、焼成の温度については、最高温度がモリブデン酸アルミニウム（ $Al_2(MoO_4)_3$ ）の分解温度である900℃以上が好ましく、上記縦緩和時間 T_1 が5秒以上（高結晶性）の板状アルミナ粒子を容易に得ることができる1200℃以上がより好ましい。

[0076] 一般的に、焼成後に得られる α -アルミナの形状を制御しようとする、 α -アルミナの融点に近い2000℃以上の高温焼成を行う場合があるが、焼成炉へ負担や燃料コストの点から、産業上利用する為には大きな課題がある。

[0077] 実施形態の製造方法は、2000℃を超えるような高温であっても実施可能であるが、1600℃以下という α -アルミナの融点よりかなり低い温度であっても、前駆体の形状にかかわらず α 結晶化率が高くアスペクト比の高い板状形状となる α -アルミナを形成することができる。

[0078] 本発明の一実施形態によれば、最高焼成温度が900～1600℃の条件であっても、アスペクト比が高く、 α 結晶化率が90%以上である板状アルミナ粒子の形成を低コストで効率的に行うことができ、最高温度が950～

1500℃での焼成がより好ましく、最高温度が1000～1400℃の範囲の焼成がさらに好ましく、最高温度が1200～1400℃での焼成が最も好ましい。

[0079] 焼成の時間については、最高温度への昇温時間を15分～10時間の範囲で行い、且つ焼成最高温度における保持時間を5分～30時間の範囲で行うことが好ましい。板状アルミナ粒子の形成を効率的に行うには、10分～15時間程度の時間の焼成保持時間であることがより好ましい。

最高温度1200～1400℃かつ10分～15時間の焼成保持時間の条件を選択することで、上記縦緩和時間 T_1 が5秒以上（高結晶性）の板状アルミナ粒子が、容易に得られる。

[0080] 焼成の雰囲気としては、特に限定されないが、例えば、空気や酸素のといった含酸素雰囲気や、窒素やアルゴン、または二酸化炭素といった不活性雰囲気が好ましく、コストの面を考慮した場合は空気雰囲気がより好ましい。

[0081] 焼成するための装置としても必ずしも限定されず、いわゆる焼成炉を用いることができる。焼成炉は昇華した酸化モリブデンと反応しない材質で構成されていることが好ましく、さらに酸化モリブデンを効率的に利用するように、密閉性の高い焼成炉を用いる事が好ましい。

[0082] [モリブデン除去工程]

板状アルミナ粒子の製造方法は、焼成工程後、必要に応じてモリブデンの少なくとも一部を除去するモリブデン除去工程をさらに含んでもよい。

[0083] 上述のように、焼成時においてモリブデンは昇華を伴うことから、焼成時間、焼成温度等を制御することで、板状アルミナ粒子表層に存在するモリブデン含有量を制御することができ、またアルミナ粒子表層以外（内層）に存在するモリブデン含有量やその存在状態を制御することができる。

[0084] モリブデンは、板状アルミナ粒子の表面に付着しうる。上記昇華以外の手段として、当該モリブデンは水、アンモニア水溶液、水酸化ナトリウム水溶液、酸性水溶液で洗浄することにより除去することができる。なお、モリブデンは板状アルミナ粒子から除去されていなくとも良いが、少なくとも表面

のモリブデンは除去した方が、各種バインダーに基づく被分散媒体に分散させて用いる様な際には、アルミナ本来の性質を十分に発揮でき、表面に存在したモリブデンによる不都合が生じないので好ましい。

[0085] この際、使用する水、アンモニア水溶液、水酸化ナトリウム水溶液、酸性水溶液の濃度、使用量、および洗浄部位、洗浄時間等を適宜変更することで、モリブデン含有量を制御することができる。

[0086] [粉碎工程]

焼成物は板状アルミナ粒子が凝集して、好適な粒子径の範囲を満たさない場合がある。そのため、板状アルミナ粒子は、必要に応じて、好適な粒子径の範囲を満たすように粉碎してもよい。

焼成物の粉碎の方法は特に限定されず、ボールミル、ジョークラッシャー、ジェットミル、ディスクミル、スペクトロミル、グラインダー、ミキサーミル等の従来公知の粉碎方法を適用できる。

[0087] [分級工程]

板状アルミナ粒子は、平均粒子径を調整し、粉体の流動性を向上するため、またはマトリックスを形成するためのバインダーに配合したときの粘度上昇を抑制するために、好ましくは分級処理される。「分級処理」とは、粒子の大きさによって粒子をグループ分けする操作をいう。

分級は湿式、乾式のいずれでも良いが、生産性の観点からは、乾式の分級が好ましい。

乾式の分級には、篩による分級のほか、遠心力と流体抗力の差によって分級する風力分級などがあるが、分級精度の観点からは、風力分級が好ましく、コアンダ効果を利用した気流分級機、旋回気流式分級機、強制渦遠心式分級機、半自由渦遠心式分級機などの分級機を用いて行うことができる。

上記した粉碎工程や分級工程は、後述する有機化合物層形成工程の前後を含めて、必要な段階において行うことができる。これら粉碎や分級の有無やそれらの条件選定により、例えば、得られる板状アルミナ粒子の平均粒子径を調整することができる。

[0088] 実施形態の板状アルミナ粒子、或いは実施形態の製造方法で得る板状アルミナ粒子は、凝集が少ないもの或いは凝集していないものが、本来の性質を発揮しやすく、それ自体の取扱性により優れており、また被分散媒体に分散させて用いる場合において、より分散性に優れる観点から、好ましい。板状アルミナ粒子の製造方法においては、上記した粉碎工程や分級工程は行わずに、凝集が少ないもの或いは凝集していないものが得られれば、左記工程を行う必要もなく、目的の優れた性質を有する板状アルミナ粒子を、生産性高く製造することが出来るので好ましい。

[0089] [有機化合物層形成工程]

一実施形態において、板状アルミナ粒子の製造方法は、有機化合物層形成工程をさらに含んでいてもよい。当該有機化合物層形成工程は、通常、焼成工程の後、またはモリブデン除去工程の後に行われる。

[0090] 有機化合物層を形成する方法としては、特に制限されず、公知の方法が適宜採用されうる。例えば、有機化合物を含む液をモリブデンを含む板状アルミナ粒子に接触させ、乾燥する方法が挙げられる。

[0091] なお、有機化合物層の形成に使用されうる有機化合物としては、上述したものが用いられうる。

[0092] <樹脂組成物>

本発明の一実施形態として、樹脂と実施形態の板状アルミナ粒子とを含有する樹脂組成物を提供する。樹脂としては、特に限定されず、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂等を例示できる。

[0093] 樹脂組成物は、硬化させて樹脂組成物の硬化物とすることができ、硬化及び成形して、樹脂組成物の成形物とすることができる。成形のために、樹脂組成物に対して溶融や混練などの処理を、適宜施すことができる。成形方法としては、圧縮成型、射出成型、押出成型、発泡成型等が挙げられる。なかでも、押出成型機による押出成形が好ましく、二軸押出機による押出成形がより好ましい。

[0094] <樹脂組成物の製造方法>

本発明の一実施形態によれば、樹脂組成物の製造方法が提供される。

[0095] 当該製造方法は、実施形態の板状アルミナ粒子と、樹脂とを混合する工程を含む。

板状アルミナ粒子としては、上述したものが用いられうることからここでは説明を省略する。

[0096] なお、前記板状アルミナ粒子は、表面処理されたものを用いることができる。

[0097] また、使用する板状アルミナ粒子は、1種のみ使用しても、2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0098] さらに、板状アルミナ粒子と他のフィラー（アルミナ、スピネル、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、炭酸マグネシウム等）とを組み合わせて使用してもよい。

[0099] 板状アルミナ粒子の含有量は、樹脂組成物の総質量100質量%に対して、5～95質量%であることが好ましく、10～90質量%であることがより好ましく、30～80質量%であることがさらに好ましい。板状アルミナ粒子の含有量が5質量%以上であると、板状アルミナ粒子の高熱伝導性を効率的に発揮できることから好ましい。一方、板状アルミナ粒子の含有量が95質量%以下であると、成形性に優れた樹脂組成物を得ることができることから好ましい。

[0100] [樹脂]

樹脂としては、特に制限されず、熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂が挙げられる。

[0101] 前記熱可塑性樹脂としては、特に制限されず、成形材料等に使用される公知慣用の樹脂が用いられうる。具体的には、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリメタクリル酸メチル樹脂、ポリ酢酸ビニル樹脂、エチレンープロピレン共重合体、エチレンー酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、

ポリフェニレンオキシド樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリアリルスルホン樹脂、熱可塑性ポリイミド樹脂、熱可塑性ウレタン樹脂、ポリアミノビスマレイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ビスマレイミドトリアジン樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、フッ化樹脂、液晶ポリマー、オレフィンービニルアルコール共重合体、アイオノマー樹脂、ポリアリレート樹脂、アクリロニトリルーエチレンスチレン共重合体、アクリロニトリルーブタジエンスチレン共重合体、アクリロニトリルスチレン共重合体などが挙げられる。

[0102] 前記熱硬化性樹脂としては、加熱または放射線や触媒などの手段によって硬化される際に実質的に不溶かつ不融性に変化し得る特性を持った樹脂であり、一般的には、成形材料等に使用される公知慣用の樹脂が用いられうる。具体的には、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂；未変性のレゾールフェノール樹脂、桐油、アマニ油、クルミ油等で変性した油変性レゾールフェノール樹脂等のレゾール型フェノール樹脂等のフェノール樹脂；ビスフェノールAエポキシ樹脂、ビスフェノールFエポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；脂肪鎖変性ビスフェノール型エポキシ樹脂、ノボラックエポキシ樹脂、クレゾールノボラックエポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；ビフェニル型エポキシ樹脂、ポリアルキレングルコール型エポキシ樹脂等のエポキシ樹脂；ユリア（尿素）樹脂、メラミン樹脂等のトリアジン環を有する樹脂；（メタ）アクリル樹脂やビニルエステル樹脂等のビニル樹脂；不飽和ポリエステル樹脂、ビスマレイミド樹脂、ポリウレタン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコーン樹脂、ベンゾオキサジン環を有する樹脂、シアネートエステル樹脂等が挙げられる。

[0103] 上述の樹脂は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。この際、熱可塑性樹脂を2種以上使用してもよいし、熱硬化性樹脂を2種以上使用してもよいし、熱可塑性樹脂を1種以上および熱硬化性樹脂を1種以上

使用してもよい。

[0104] 樹脂の含有量は、樹脂組成物の総質量100質量%に対して、5～90質量%であることが好ましく、10～70質量%であることがより好ましい。樹脂の含有量が5質量%以上であると、樹脂組成物に優れた成形性を付与できることから好ましい。一方、樹脂の含有量が90質量%以下であると、成形してコンパウンドとして高熱伝導性を得ることができることから好ましい。

[0105] [硬化剤]

樹脂組成物には、必要に応じて硬化剤を混合してもよい。

[0106] 硬化剤としては、特に制限されず、公知のものが使用されうる。

[0107] 具体的には、アミン系化合物、アミド系化合物、酸無水物系化合物、フェノール系化合物などが挙げられる。

[0108] 前記アミン系化合物としては、ジアミノジフェニルメタン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、ジアミノジフェニルスルホン、イソホロンジアミン、イミダゾール、 BF_3 -アミン錯体、グアニジン誘導体等が挙げられる。

[0109] 前記アミド系化合物としては、ジシアンジアミド、リノレン酸の2量体とエチレンジアミンとより合成されるポリアミド樹脂等が挙げられる。

[0110] 前記酸無水物系化合物としては、無水フタル酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、無水マレイン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸等が挙げられる。

[0111] 前記フェノール系化合物としては、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、芳香族炭化水素ホルムアルデヒド樹脂変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエンフェノール付加型樹脂、フェノールアラルキル樹脂（ザイロック樹脂）、レゾルシンノボラック樹脂に代表される多価ヒドロキシ化合物とホルムアルデヒドから合成される多価フェノールノボラック樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、トリメチロールメタン樹脂、テトラフェニ

ロールエタン樹脂、ナフトールノボラック樹脂、ナフトールフェノール共縮ノボラック樹脂、ナフトールクレゾール共縮ノボラック樹脂、ビフェニル変性フェノール樹脂（ビスメチレン基でフェノール核が連結された多価フェノール化合物）、ビフェニル変性ナフトール樹脂（ビスメチレン基でフェノール核が連結された多価ナフトール化合物）、アミノトリアジン変性フェノール樹脂（メラミン、ベンゾグアナミンなどでフェノール核が連結された多価フェノール化合物）やアルコキシ基含有芳香環変性ノボラック樹脂（ホルムアルデヒドでフェノール核およびアルコキシ基含有芳香環が連結された多価フェノール化合物）等の多価フェノール化合物が挙げられる。

[0112] 上述硬化剤は、単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0113] [硬化促進剤]

樹脂組成物には、必要に応じて硬化促進剤を混合してもよい。

[0114] 硬化促進剤は、組成物を硬化する際に硬化を促進させる機能を有する。

[0115] 前記硬化促進剤としては、特に制限されないが、リン系化合物、第3級アミン、イミダゾール、有機酸金属塩、ルイス酸、アミン錯塩等が挙げられる。

[0116] 上述の硬化促進剤は単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0117] [硬化触媒]

樹脂組成物には、必要に応じて硬化触媒を混合してもよい。

[0118] 硬化触媒は、前記硬化剤の代わりに、エポキシ基を有する化合物の硬化反応を進行させる機能を有する。

[0119] 硬化触媒としては、特に制限されず、公知慣用の熱重合開始剤や活性エネルギー線重合開始剤が用いられうる。

[0120] なお、硬化触媒は単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0121] [粘度調節剤]

樹脂組成物には、必要に応じて粘度調節剤を混合してもよい。

[0122] 粘度調節剤は、組成物の粘度を調整する機能を有する。

[0123] 粘度調節剤としては、特に制限されず、有機ポリマー、ポリマー粒子、無機粒子等が用いられうる。

[0124] なお、粘度調節剤は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0125] [可塑剤]

樹脂組成物には、必要に応じて可塑剤を混合してもよい。

[0126] 可塑剤は、熱可塑性合成樹脂の加工性、柔軟性、耐候性等を向上させる機能を有する。

[0127] 可塑剤としては、特に制限されず、フタル酸エステル、アジピン酸エステル、リン酸エステル、トリメリット酸エステル、ポリエステル、ポリオレフィン、ポリシロキサン等が用いられうる。

[0128] なお、上述の可塑剤は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0129] [混合]

本形態の樹脂組成物は、板状アルミナ粒子と樹脂、さらに必要に応じてその他の配合物を混合することにより得られる。その混合方法に特に限定はなく、公知慣用の方法により、混合される。

[0130] 樹脂が熱硬化性樹脂である場合、一般的な熱硬化性樹脂と板状アルミナ粒子等との混合方法としては、所望の配合量の熱硬化性樹脂と、板状アルミナ粒子、必要に応じてその他の成分をミキサー等によって十分に混合した後、三本ロール等で混練し、流動性ある液状の組成物を得る方法が挙げられる。また、別の実施形態における熱硬化性樹脂と板状アルミナ粒子等との混合方法として、所望の配合量の熱硬化性樹脂と、板状アルミナ粒子、必要に応じてその他の成分をミキサー等によって十分に混合した後、ミキシングロール、押出機等で熔融混練した後、冷却することで、固形の組成物として得る方法が挙げられる。

混合状態に関して、硬化剤や触媒等を配合した場合は、硬化性樹脂とそれら

の配合物が十分に均一に混合されていればよいが、板状アルミナ粒子も均一に分散混合された方がより好ましい。

[0131] 樹脂が熱可塑性樹脂である場合の一般的な熱可塑性樹脂と板状アルミナ粒子等との混合方法としては、熱可塑性樹脂、板状アルミナ粒子、および必要に応じてその他の成分を、例えばタンブラーやヘンシェルミキサーなどの各種混合機を用い予め混合した後、バンバリーミキサー、ロール、ブラベンダー、単軸混練押出機、二軸混練押出機、ニーダー、混合ロールなどの混合機で溶融混練する方法が挙げられる。なお、溶融混練の温度は特に制限されないが、通常100～320℃の範囲である。

[0132] 樹脂組成物の流動性や板状アルミナ粒子等のフィラー充填性をより高められることから、樹脂組成物にカップリング剤を外添してもよい。なお、カップリング剤を外添することで、樹脂と板状アルミナ粒子の密着性が更に高められ、樹脂と板状アルミナ粒子の間での界面熱抵抗が低下し、樹脂組成物の熱伝導性が向上しうる。

[0133] 前記有機シラン化合物としては、例えば、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、*n*-プロピルトリメトキシシラン、*n*-プロピルトリエトキシシラン、*i*s*o*-プロピルトリメトキシシラン、*i*s*o*-プロピルトリエトキシシラン、ペンチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、オクタニルトリメトキシシラン等のアルキル基の炭素数が1～22までのアルキルトリメトキシシランまたはアルキルトリクロロシラン類、3，3，3-トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、トリデカフルオロ-1，1，2，2-テトラヒドロオクチル)トリクロロシラン類、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、*p*-クロロメチルフェニルトリメトキシシラン、*p*-クロロメチルフェニルトリエトキシシラン類等、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 β -(3，4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、グリシドキシオクチルトリメトキシシラン等のエポキシシラン、 γ -

アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β （アミノエチル） γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β （アミノエチル） γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン等のアミノシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等のメルカプトシラン、p-スチリルトリメトキシシラン、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン等のビニルシラン、さらに、エポキシ系、アミノ系、ビニル系の高分子タイプのシランが挙げられる。なお、上記有機シラン化合物は、単独で含まれていても、2種以上を含んでいてもよい。

[0134] 上述のカップリング剤は、単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0135] カップリング剤の添加量は特に制限されないが、樹脂の質量に対して、0.01～5質量%であることが好ましく、0.1～3質量%であることがより好ましい。

[0136] 一実施形態によれば、樹脂組成物は、熱伝導性材料に使用される。

[0137] 樹脂組成物に含有される板状アルミナ粒子は、樹脂組成物の熱伝導性に優れることから、当該樹脂組成物は、好ましくは絶縁放熱部材として使用される。これにより、機器の放熱機能を向上させることができ、機器の小型軽量化、高性能化に寄与することができる。

[0138] ＜硬化物の製造方法＞

本発明の一実施形態によれば、硬化物の製造方法が提供される。当該製造方法は、上述で製造された樹脂組成物を硬化させることを含む。

[0139] 硬化温度については、特に制限されないが、20～300℃であることが好ましく、50～200℃であることがより好ましい。

[0140] 硬化時間については、特に制限されないが、0.1～10時間であることが好ましく、0.2～3時間であることがより好ましい。

[0141] 硬化物の形状については、所望の用途によって異なり、当業者が適宜設計しうる。

実施例

[0142] 次に実施例を示して本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0143] ≪評価≫

下記の実施例 1～7、及び比較例 1～4 で得た粉末を試料とし、以下の評価を行った。

測定方法を以下に示す。

[0144] [板状アルミナ粒子の平均粒子径 L の計測]

レーザー回折式粒度分布計 H E L O S (H 3 3 5 5) & R O D O S、R 3 : 0.5 / 0.9 - 175 μm (株式会社日本レーザー製) を用い、分散圧 3 b a r、引圧 90 m b a r の条件で平均粒子径 d_{50} (μm) を求め平均粒子径 L とした。

[0145] [板状アルミナ粒子の厚み T の計測]

走査型電子顕微鏡 (S E M) を用いて、板状アルミナ粒子 50 個の厚みを測定した平均値を採用し、厚み T (μm) とした。

[0146] [アスペクト比 L / T]

アスペクト比は下記の式を用いて求めた。

アスペクト比 = 板状アルミナ粒子の平均粒子径 L / 板状アルミナ粒子の厚み T

[0147] [α 化率の分析]

作製した試料を 0.5 mm 深さの測定試料用ホルダーにのせ、一定荷重で平らになる様充填し、それを広角 X 線回折装置 (株式会社リガク製 U t i m a I V) にセットし、 $\text{Cu} / \text{K} \alpha$ 線、40 k V / 40 m A、スキャンスピード 2 度 / 分、走査範囲 10 ~ 70 度の条件で測定を行った。 α -アルミナと遷移アルミナの最強ピーク高さの比より α 化率を求めた。

[0148] [NMR による配位数の測定]

J E O L R E S O N A N C E 製、J N M - E C A 6 0 0 を用いて、静磁場強度 1 4 . 1 T にて、固体²⁷A l N M R 分析を行った。各試料を、φ 4 m m 固体 N M R 試料管に採取し、測定を行った。試料ごと、9 0 度パルス幅を測定した後、飽和回復法による緩和時間測定、シングルパルス測定を実施した。

[0149] 市販試薬のγ-アルミナ（関東化学）の 6 配位アルミニウムのピークトップを 1 4 . 6 p p m とした場合の 1 0 ~ 3 0 p p m に検出されたピークを 6 配位アルミニウムのピーク、6 0 ~ 9 0 p p m に検出されたピークを 4 配位アルミニウムのピークと推定した。上記 4 配位の位置のピーク強度がベースラインのノイズレベル以上であれば「検出」されたとし、ベースラインのノイズレベルであれば「不検出」とした。

[0150] 条件は下記のとおりである。

- ・ M A S r a t e : 1 5 k H z
- ・ プローブ : S H 6 0 T 4 (J E O L R E S O N A N C E 製)

[0151] 1 4 . 1 T におけるシングルパルス測定の測定条件は下記のとおりである。

- ・ パルス延滞時間（秒） : (緩和回復法により求められた T_1 (秒) × 3)
- ・ パルス幅 (μ 秒) : 各試料の 6 配位アルミニウムの 9 0 度パルス幅 (μ 秒) / 3
- ・ 積算回数 : 8 回
- ・ 温度 : 4 6 ° C

[0152] [N M R による縦緩和時間 T_1 の測定]

1 4 . 1 T における緩和回復法により、1 0 ~ 3 0 p p m に検出された 6 配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間 T_1 を求めた。

[0153] 条件は下記のとおりである。

- ・ パルス延滞時間（秒） : 0 . 5
- ・ 飽和後待ち時間（秒） : 0 . 5 ~ 1 0 0 、 E x p o n e t i a l 間隔 1 6 点

- ・積算回数 : 1 回
- ・温度 : 4 6 °C

[0154] [高磁場NMRによる配位数の測定]

J E O L R E S O N A N C E 製、J N M - E C Z 9 0 0 R を用いて、静磁場強度 2 1 . 1 T 下における、固体²⁷A l N M R 分析を行った。各試料を、φ 3 . 2 m m 固体NMR試料管 (Z r O ₂) に採取し、シングルパルス測定を実施した。

[0155] 静磁場強度 1 4 . 1 T 下における、固体²⁷A l N M R 分析と同様に、市販試薬のγ-アルミナ試薬 (関東化学) の 6 配位アルミニウムのピークトップを 1 4 . 6 p p m とした場合の 1 0 ~ 3 0 p p m に検出されたピークを 6 配位アルミニウムのピーク、6 0 ~ 9 0 p p m に検出されたピークを 4 配位のピークと推定した。上記 4 配位の位置のピーク強度がベースラインのノイズレベル以上であれば「検出」されたとし、ベースラインのノイズレベルであれば「不検出 (-) 」とした。

[0156] 2 1 . 1 T におけるシングルパルス測定の測定条件は下記のとおりである。

- ・ M A S R a t e : 2 0 k H z
- ・プローブ : シングルチューンMASプローブ (プローブ工房製)
- ・パルス延滞時間 (秒) : 静磁場 1 4 . 1 T 下において緩和回復法により求められた T₁ (秒) × 9
- ・パルス幅 (μ 秒) : 各試料の 9 0 度パルス幅 (μ 秒) / 3
- ・積算回数 : 8 回
- ・温度 : 4 6 °C

[0157] [板状アルミナ粒子内に含まれるM o 量の分析]

蛍光X線分析装置 P r i m u s I V (株式会社リガク製) を用い、作製した試料約 7 0 m g をろ紙にとり、P P フィルムをかぶせて組成分析を行った。

X R F 分析結果により求められるモリブデン量を、板状アルミナ粒子 1 0

0質量%（板状アルミナ粒子の総質量を100質量%とする）に対する三酸化モリブデン換算（質量%）により求めた。

[0158] [加工安定性]

作製した試料を66質量%、ポリフェニレンサルファイト樹脂（PPS樹脂 DIC製LR-100G）34質量%となる様配合し、計5kgの混合物を準備した。混合物5kgをスクリュウ径40mm、 $L/D=45$ の二軸押出機を用いて、供給量15kg/h、押出機温度320℃、スクリュウ回転数150rpmの条件で熔融混練を行った。ダイスから出たストランドの径が安定せずサージングを起こすもの、または発泡や異物、等によりストランド表面に凹凸やスジが認められるものを加工安定性「×」とし、上記現象が認められないものを加工安定性「○」とした。

[0159] [形状保持率]

作製した試料を66質量%、ポリフェニレンサルファイト樹脂（PPS樹脂 DIC製LR-100G）34質量%となる様配合し、計5kgの混合物を準備した。混合物5kgをスクリュウ径40mm、 $L/D=45$ の二軸押出機を用いて、供給量15kg/h、押出機温度320℃、スクリュウ回転数150rpmの条件で熔融混練を行った。熔融混合後得られたストランドをペレタイザーでカットし、長径3mm、長さ5mmのペレットを得た。ペレットを5g採取し、るつぼへ入れ、700℃3時間の条件で加熱し、ペレットを灰化させた。灰化した粉体状の試料の平均粒子径 d_{50} （ μm ）をレーザー回折式粒度分布計にて測定し、得られた値を押出混練後の平均粒子径とした。また上記試料とは別に、押出混練前（ポリフェニレンサルファイト樹脂へ配合しする前）の試料を3g準備し、平均粒子径 d_{50} （ μm ）を同様に測定し、得られた値を押出混練前の平均粒子径とした。

粉体の形状保持率（%）を（押出混練後の平均粒子径／押出混練前の平均粒子径 $\times 100$ ）で求めた。

結晶性が低い試料は、押出機による熔融混練により、アルミナ粒子が破壊されて微粒成分が増し、平均粒子径が混練前と比べ小さくなる（形状保持率

の値が低下する)と考えられる。

[0160] 《板状アルミナ粒子の製造》

＜実施例 1＞

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $12\ \mu\text{m}$ ） $50\ \text{g}$ と、二酸化珪素（関東化学） $0.65\ \text{g}$ と、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製） $1.72\ \text{g}$ とを乳鉢で混合し、混合物を得た。得られた混合物を坩堝に入れ、セラミック電気炉にて $5^\circ\text{C}/\text{分}$ の条件で 1200°C まで昇温し、 1200°C で 10 時間保持し焼成を行なった。その後 $5^\circ\text{C}/\text{分}$ の条件で室温まで降温後、坩堝を取り出し、 $34.2\ \text{g}$ の薄青色の粉末を得た。得られた粉末を乳鉢で、 $106\ \mu\text{m}$ 篩を通るまで解砕した。

続いて、得られた前記粉末のを 0.5% アンモニア水の $150\ \text{mL}$ に分散し、分散溶液を室温 ($25\sim30^\circ\text{C}$) で 0.5 時間攪拌後、ろ過によりアンモニア水を除き、水洗浄と乾燥を行う事で、粒子表面に残存するモリブデンを除去し、 $33.5\ \text{g}$ の薄青色の粉末を得た。

上記の評価結果を表 1 に示す。得られた粉末は SEM 観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD 測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は 99% 以上（ほぼ 100% ）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光 X 線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で 0.82 質量% 含むものであることを確認した。さらに静磁場強度 $14.1\ \text{T}$ における固体 ^{27}Al NMR 分析、および静磁場強度 $21.1\ \text{T}$ における固体 ^{27}Al NMR 分析を行った結果、いずれも 6 配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 $14.1\ \text{T}$ における 6 配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は 7.5 秒であった。

[0161] ＜実施例 2＞

混合物を坩堝に入れ、セラミック電気炉にて $5^\circ\text{C}/\text{分}$ の条件で 1300°C

まで昇温し、1300℃で10時間保持し焼成を行なった以外は実施例1と同様の操作を行い33.4gの薄青色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で0.77質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度14.1Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度21.1Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度14.1Tにおける6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は9.5秒であった。焼成温度を実施例1と比較し高くすることで、結晶の対称性が向上し、結晶性の高い板状アルミナ粒子となることが確認できた。

[0162] <実施例3>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径10 μm ）50gと、二酸化珪素（関東化学）0.33gと、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製）1.72gとを乳鉢で混合し、混合物を得た。得られた混合物を坩堝に入れ、セラミック電気炉にて5℃/分の条件で1400℃まで昇温し、1400℃で10時間保持し焼成を行なった。それ以外は実施例1と同様の操作を行い33.1gの薄灰色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻

密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で0.85質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度14.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度21.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度14.1 Tにおける6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は9.0秒であった。焼成温度を実施例1と比較しさらに高くすることで、結晶の対称性がさらに向上し、さらに結晶性の高い板状アルミナ粒子が得られたと考えられる。

[0163] <実施例4>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $2\text{ }\mu\text{m}$ ）25 gと、二酸化珪素（関東化学）0.49 gと、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製）0.86 gとを乳鉢で混合し、混合物を得た以外は実施例1と同様の操作を行い16.8 gの薄灰色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で0.85質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度14.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度21.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度14.1 Tにおける6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は6.5秒であった。平均粒子径がより小さい板状アルミナにおいても結晶の対称性が高い板状アルミナ粒子を得ることができた。

[0164] <実施例5>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $12\ \mu\text{m}$ ） $50\ \text{g}$ と、二酸化珪素（関東化学） $0.33\ \text{g}$ と、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製） $7.36\ \text{g}$ とを乳鉢で混合し、混合物を得た以外は実施例1と同様の操作を行い $33.1\ \text{g}$ の薄青緑色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で1.16質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度 $14.1\ \text{T}$ における固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度 $21.1\ \text{T}$ における固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 $14.1\ \text{T}$ における6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は8.3秒であり、モリブデン化合物配合量を増すことで、結晶の対称性が更に向上する結果となった。

[0165] <実施例6>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $12\ \mu\text{m}$ ） $50\ \text{g}$ と、二酸化ゲルマニウム（三菱マテリアル製） $0.49\ \text{g}$ と、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製） $1.72\ \text{g}$ とを乳鉢で混合し、混合物を得た以外は実施例1と同様の操作を行い $33.4\ \text{g}$ の薄青色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X

線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で1.28質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度14.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度21.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度14.1 Tにおける6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は10.1秒であり、形状制御剤種をGe化合物に変更しても良好な値となることが確認できた。

[0166] <実施例7>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $1.2\ \mu\text{m}$ ）50 gと、二酸化ゲルマニウム（三菱マテリアル製）1.63 gと、三酸化モリブデン（太陽鋳工株式会社製）1.72 gとを乳鉢で混合し、混合物を得た以外は実施例1と同様の操作を行い34.3 gの白色の粉末を得た。

上記の評価結果を表1に示す。得られた粉末はSEM観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は99%以上（ほぼ100%）であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光X線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で0.42質量%含むものであることを確認した。さらに静磁場強度14.1 T固体 ^{27}Al NMR分析、および静磁場強度21.1 Tにおける固体 ^{27}Al NMR分析を行った結果、いずれも6配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度14.1 Tにおける6配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は11.1秒であり、実施例6と同様に、形状制御剤種をGe化合物に変更しても良好な値となることが確認できた。

[0167] <比較例1>

水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、平均粒子径 $1.2\ \mu\text{m}$ ）50 gと、二酸化珪素（関東化学）0.65 gと、三酸化モリブデン（太陽鋳工

株式会社製) 1. 72 g とを乳鉢で混合し、混合物を得た。得られた混合物を坩堝に入れ、セラミック電気炉にて 5℃/分の条件で 950℃まで昇温し、950℃で 10 時間保持し焼成を行なった。その後 5℃/分の条件で室温まで降温後、坩堝を取り出し、34.2 g の薄青色の粉末を得た。得られた粉末を乳鉢で、106 μm 篩を通るまで解砕した。

続いて、得られた前記粉末のを 0.5% アンモニア水の 150 mL に分散し、分散溶液を室温 (25~30℃) で 0.5 時間攪拌後、ろ過によりアンモニア水を除き、水洗浄と乾燥を行う事で、粒子表面に残存するモリブデンを除去し、33.4 g の薄青色の粉末を得た。

上記の評価結果を表 1 に示す。得られた粉末は SEM 観察により形状が多角板状であり、凝集体が極めて少なく、優れた取り扱い性を有する板状形状の粒子であることが確認された。さらに、XRD 測定を行ったところ、 α -アルミナに由来する鋭いピーク散乱が現れ、 α 結晶構造以外のアルミナ結晶系ピークは観察されなく、 α 化率は 99% 以上 (ほぼ 100%) であり、緻密な結晶構造を有する板状アルミナであることを確認した。さらに、蛍光 X 線定量分析の結果から、得られた粒子は、モリブデンを三酸化モリブデン換算で 0.84 質量% 含むものであることを確認した。さらに静磁場強度 14.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析、および静磁場強度 21.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析を行った結果、いずれも 6 配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 14.1 T における 6 配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は 4.8 秒であった。焼成温度が実施例 1~7 と比較して低いために、縦緩和時間 T_1 の値が小さく、結晶性に劣る板状アルミナ粒子が得られる結果となった。

[0168] <比較例 2>

市販の板状アルミナ (キンセイマテック製 セラフ 平均粒子径 7.7 μm) を用いて評価を行った。

上記の評価結果を表 1 に示す。静磁場強度 14.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析、および静磁場強度 21.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分

析を行った結果、いずれも 6 配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 14.1 T における 6 配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は 4.5 秒であり、実施例 1～7 と比較し低い値であった。

[0169] <比較例 3>

市販の板状アルミナ（キンセイマテック製 セラフ 平均粒子径 5.3 μm ）を用いて評価を行った。

上記の評価結果を表 1 に示す。さらに静磁場強度 14.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析、および静磁場強度 21.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析を行った結果、いずれも 6 配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 14.1 T における 6 配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は 3.2 秒であり、実施例 1～7 と比較し低い値であった。

[0170] <比較例 4>

市販のアルミナ粒子（日本軽金属製）を用いて評価を行った。

上記の評価結果を表 1 に示す。平均粒子径を測定した結果 6.5 μm 、厚みを測定した結果 1.5 μm であり、アスペクト比が 4.3 であった。アスペクト比は、実施例 1～7 と比較し低い値であった。さらに静磁場強度 14.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析、および静磁場強度 21.1 T における固体 ^{27}Al NMR 分析を行った結果、いずれも 6 配位アルミニウムに加え明確な 4 配位アルミニウムのピークが検出された。静磁場強度 14.1 T における 6 配位アルミニウムの縦緩和時間 T_1 は 11.3 秒であった。

[0171] 原料化合物の酸化物換算の配合（全体を 100 質量%とする）と、上記の評価結果を表 1 に示す。

[0172]

[表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
配 合	酸化物 換算											
	アルミナ化合物	93.2	93.2	94.1	92.4	81.0	93.7	90.7	93.2	-	-	-
	モリブデン化合物	4.9	4.9	5.0	4.9	18.2	4.9	4.8	4.9	-	-	-
	形状制御剤	1.9	1.9	0.9	2.8	0.8	0.0	0.0	1.9	-	-	-
		0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1.4	4.5	0.0	-	-	-
	焼成温度 (°C)	1200	1300	1400	1200	1200	1200	1200	950	-	-	-
	平均粒子径L (μm)	7.2	6.8	6.2	3.9	7.2	13.1	12.6	8.5	7.7	5.3	6.5
	厚みT (μm)	0.45	0.45	0.5	0.2	0.5	0.7	0.5	0.45	0.5	0.4	1.5
	アスペクト比 L/T	16.0	15.1	12.4	19.5	14.4	18.7	25.2	18.9	15.4	13.3	4.3
	6配位縦緩和時間T ₁ (s)	7.5	9.5	9.0	6.5	8.3	10.1	11.1	4.8	4.5	3.2	11.3
	4配位の検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	検出
	XRF MoO ₃ (質量%)	0.82	0.77	0.68	0.85	1.16	1.28	0.42	0.84	不検出	不検出	不検出
	加工安定性	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×
	形状保持率 (%)	97	98	98	98	97	98	96	86	83	81	88

[0173] 以上の結果から、以下のことが結論付けられる。

縦緩和時間T₁が5秒以上である実施例1～7の板状アルミナ粒子は、縦緩

和時間 T_1 が 5 秒未満である比較例 1 ～ 3 の板状アルミナ粒子よりも、おそらく結晶性が高いために硬度が高く、溶融混練を経ても粒子が破壊され難く、形状保持率に優れるものであった。

[0174] また、比較例 4 の板状アルミナ粒子は、縦緩和時間 T_1 が 5 秒以上ではあるが、アスペクト比が 5 未満であった。また、比較例 4 の板状アルミナ粒子では、4 配位のピークが検出されたことから、おそらく結晶構造が実施例 1 ～ 7 の板状アルミナ粒子とは異なる配位数の結晶が含まれることに起因した、結晶の対象性の歪みを起点とした破損・脱落が起こり易いものと考えられ、形状保持率は、実施例 1 ～ 7 の板状アルミナ粒子のほうが優れていた。

[0175] また、形状保持率の高い実施例 1 ～ 7 の板状アルミナ粒子では、形状保持率の低い比較例 1 ～ 4 の板状アルミナ粒子よりも、樹脂組成物としたときの加工安定性に優れ、非常に有用なものであった。

[0176] 各実施形態における各構成及びそれらの組み合わせ等は一例であり、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、構成の付加、省略、置換、およびその他の変更が可能である。また、本発明は各実施形態によって限定されることはなく、請求項（クレーム）の範囲によってのみ限定される。

請求の範囲

- [請求項1] アスペクト比が5～500であり、
 固体²⁷Al NMR分析にて、静磁場強度14.1 Tにおける10～30 ppmの6配位アルミニウムのピークに対する縦緩和時間 T_1 が、5秒以上である、板状アルミナ粒子。
- [請求項2] ケイ素及び／又はゲルマニウムを含む、請求項1に記載の板状アルミナ粒子。
- [請求項3] モリブデンを含む、請求項1又は2に記載の板状アルミナ粒子。
- [請求項4] 板状アルミナ粒子の総質量100質量％に対するモリブデンの含有量が、三酸化モリブデン換算で、0.1以上1質量％以下である、請求項3に記載の板状アルミナ粒子。
- [請求項5] 厚みが0.01～5 μm であり、平均粒子径が0.1～500 μm である、請求項1～4のいずれか一項に記載の板状アルミナ粒子。
- [請求項6] 平均粒子径が0.1～7 μm である、請求項1～5のいずれか一項に記載の板状アルミナ粒子。
- [請求項7] アルミニウム元素を含むアルミニウム化合物と、モリブデン元素を含むモリブデン化合物と、形状制御剤と、を混合して混合物とし、前記混合物を1200℃以上で焼成する、請求項1～6のいずれか一項に記載の板状アルミナ粒子の製造方法。
- [請求項8] 前記形状制御剤が、シリコン、ケイ素化合物、及びゲルマニウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種である、請求項7に記載の板状アルミナ粒子の製造方法。
- [請求項9] 酸化物換算した原料全量を100質量％とした際に、 Al_2O_3 換算で50質量％以上のアルミニウム元素を含むアルミニウム化合物と、 MoO_3 換算で2質量％以上15質量％以下のモリブデン元素を含むモリブデン化合物と、 SiO_2 換算又は GeO_2 換算で0.1質量％以上10質量％以下の形状制御剤と、を混合して混合物とし、前記混合物を焼成する、請求項7又は8に記載の板状アルミナ粒子の製造

方法。

[請求項10] 樹脂と、請求項1～6のいずれか一項に記載の板状アルミナ粒子と、を含有する樹脂組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/050077

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C01F7/44 (2006.01) i, C01B33/12 (2006.01) i, C01G39/00 (2006.01) i, C08K3/22 (2006.01) i, C08K7/00 (2006.01) i, C08L101/00 (2006.01) i
FI: C01F7/44 A, C01B33/12 A, C01C39/00 Z, C08L101/00, C08K7/00, C08K3/22
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. C01F7/44, C01B33/12, C01G39/00, C08K7/00, C08L101/00, G08K3/22

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)

GApplus/REGISTRY (STN); JSTPlus (JDreamIII); JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2016-222501 A (DIC CORP.) 28 December 2016,	1-9
Y	paragraphs [0020], [0021], [0024], [0030], [0061], [0065]-[0068], [0085], [0089], [0101]	10
Y	WO 2015/060125 A1 (DIC CORP.) 30 April 2015,	10
A	claims 1-4, paragraph [0001]	1-9
A	WO 2016/024624 A1 (DIC CORP.) 18 February 2016,	1-9
	entire text, all drawings	
A	JP 7-206430 A (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 08	1-9
	August 1995, entire text, all drawings	
A	JP 9-318566 A (NIPPON STEEL CORP.) 12 December	1
	1997, paragraph [0011]	



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
25.02.2020

Date of mailing of the international search report
10.03.2020

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

International application No.

PCT/JP2019/050077

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 2018-129379 A (PANASONIC INTELLECTUAL PROPERTY MANAGEMENT CO., LTD.) 16 August 2018, paragraph [0043]	1
E, X	WO 2020/021675 A1 (DIC CORP.) 30 January 2020, paragraphs [0067]-[0073], [0087]-[0089]	1-9
P, X	WO 2019/194160 A1 (DIC CORP.) 10 October 2019, paragraphs [0051]-[0054], [0112]-[0116]	1-10
P, X	WO 2019/194159 A1 (DIC CORP.) 10 October 2019, paragraphs [0067]-[0073], [0087]-[0089]	1-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2019/050077

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2016-222501 A	28.12.2016	(Family: none)	
WO 2015/060125 A1	30.04.2015	US 2016/0264832 A1 claims 1-4, paragraph [0001] EP 3061786 A1 CN 105658715 A KR 10-2016-0078340 A	
WO 2016/024624 A1	18.02.2016	TW 201612289 A entire text, all drawings	
JP 7-206430 A	08.08.1995	US 5935550 A EP 620188 A2 DE 69419342 C CN 1095360 A	
JP 9-318566 A	12.12.1997	(Family: none)	
JP 2018-129379 A	16.08.2018	US 2018/0226203 A1 CN 108400245 A	
WO 2020/021675 A1	30.01.2020	(Family: none)	
WO 2019/194160 A1	10.10.2019	(Family: none)	
WO 2019/194159 A1	10.10.2019	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C01F 7/44(2006.01)i; C01B 33/12(2006.01)i; C01G 39/00(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 7/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i FI: C01F7/44 A; C01B33/12 A; C01G39/00 Z; C08L101/00; C08K7/00; C08K3/22		
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）） C01F7/44; C01B33/12; C01G39/00; C08K7/00; C08L101/00; C08K3/22 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 国際調査で利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); JSTplus (JDreamIII); JST7580 (JDreamIII)		
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 2016-222501 A (D I C株式会社) 28.12.2016 (2016-12-28) [0020]-[0021], [0024], [0030], [0061], [0065]-[0068], [0085], [0089], [0101]	1-9
Y		10
Y	WO 2015/060125 A1 (D I C株式会社) 30.04.2015 (2015-04-30) 請求項1-4, 段落[0001]	10
A		1-9
A	WO 2016/024624 A1 (D I C株式会社) 18.02.2016 (2016-02-18) 全文全図	1-9
A	JP 7-206430 A (住友化学工業株式会社) 08.08.1995 (1995-08-08) 全文全図	1-9
A	JP 9-318566 A (新日本製鐵株式会社) 12.12.1997 (1997-12-12) 段落[0011]	1
☒ 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、一般的な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 25.02.2020		国際調査報告の発送日 10.03.2020
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） 村岡 一磨 4G 4797 電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2018-129379 A (パナソニック I P マネジメント株式会社) 16.08.2018 (2018 - 08 - 16) 段落[0043]	1
E, X	W0 2020/021675 A1 (D I C 株式会社) 30.01.2020 (2020 - 01 - 30) 段落[0067]-[0073], [0087]-[0089]	1-9
P, X	W0 2019/194160 A1 (D I C 株式会社) 10.10.2019 (2019 - 10 - 10) 段落[0051]-[0054], [0112]-[0116]	1-10
P, X	W0 2019/194159 A1 (D I C 株式会社) 10.10.2019 (2019 - 10 - 10) 段落[0067]-[0073], [0087]-[0089]	1-9

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/JP2019/050077

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2016-222501	A	28.12.2016	(ファミリーなし)	
WO	2015/060125	A1	30.04.2015	US 2016/0264832	A1
				請求項1-4,段落[0001]	
				EP 3061786	A1
				CN 105658715	A
				KR 10-2016-0078340	A
WO	2016/024624	A1	18.02.2016	TW 201612289	A
				全文全図	
JP	7-206430	A	08.08.1995	US 5935550	A
				EP 620188	A2
				DE 69419342	C
				CN 1095360	A
JP	9-318566	A	12.12.1997	(ファミリーなし)	
JP	2018-129379	A	16.08.2018	US 2018/0226203	A1
				CN 108400245	A
WO	2020/021675	A1	30.01.2020	(ファミリーなし)	
WO	2019/194160	A1	10.10.2019	(ファミリーなし)	
WO	2019/194159	A1	10.10.2019	(ファミリーなし)	