

(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  
2023年5月25日(25.05.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/090239 A1

- (51) 国際特許分類:  
C08F 290/06 (2006.01) C08L 55/00 (2006.01)  
C08K 3/013 (2018.01) C08L 63/00 (2006.01)  
C08K 3/38 (2006.01) C08L 83/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/041838
- (22) 国際出願日: 2022年11月10日(10.11.2022)
- (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 2021-186945 2021年11月17日(17.11.2021) JP
- (71) 出願人: デンカ株式会社 (DENKA COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 和田 光祐 (WADA, Kosuke); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 金井 朋之 (KANAI, Tomoyuki); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 深尾 健司 (FUKAO, Kenji); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 荒井 巽 (ARAI, Tatsumi); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 小野塚 正雄 (ONOZUKA, Masao); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 岩▲崎▼ 貴之 (IWASAKI, Takayuki); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号 デンカ株式会社内 Tokyo (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 E S ビル 8階 ダイワ特許事務所 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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,

(54) Title: COPOLYMER, SURFACTANT, RESIN COMPOSITION, AND HEAT DISSIPATION SHEET

(54) 発明の名称: 共重合体、界面活性剤、樹脂組成物及び放熱シート

(57) Abstract: A copolymer according to the present invention comprises a (meth)acrylic monomer unit A having an anionic group, a (meth)acrylic monomer unit B having a cationic group, and a (meth)acrylic monomer unit C other than the (meth)acrylic monomer unit A and the (meth)acrylic monomer unit B, wherein the weight-average molecular weight of the (meth)acrylic monomer unit C is 2,000 to 9,000. A surfactant according to the present invention includes said copolymer according to the present invention. A resin composition according to the present invention includes a resin, said surfactant according to the present invention, and an inorganic filler. A heat dissipation sheet according to the present invention includes said resin composition according to the present invention. With the present invention, it is possible to provide: a copolymer that can reduce the viscosity of a resin composition including a resin and an inorganic filler; a surfactant including said copolymer; a resin composition including said surfactant and an inorganic filler; and a heat dissipation sheet including said resin composition.

(57) 要約: 本発明の共重合体はアニオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位Aと、カチオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位Bと、(メタ)アクリル系単量体単位A及び(メタ)アクリル系単量体単位B以外の(メタ)アクリル系単量体単位Cとを有し、(メタ)アクリル系単量体単位Cの重量平均分子量が2,000~9,000である。本発明の界面活性剤は本発明の共重合体を含む。本発明の樹脂組成物は樹脂と、本発明の界面活性剤と、無機フィラーとを含む。本発明の放熱シートは本発明の樹脂組成物を含む。本発明によれば、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を低減することができる共重合体、その共重合体を含む界面活性剤、その界面活性剤と無機フィラーとを含む樹脂組成物、及びその樹脂組成物を含む放熱シートを提供することができる。

WO 2023/090239 A1

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, CV, 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, ME, 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))

## 明 細 書

発明の名称：共重合体、界面活性剤、樹脂組成物及び放熱シート  
技術分野

[0001] 本発明は、共重合体、界面活性剤、樹脂組成物及び放熱シートに関する。

### 背景技術

[0002] 近年、電気自動車などの電動車両の普及が進んでいる。電動車両の車載電源システムに用いられるような回路基板では、一般的に電圧・電流が大きくなるため、発熱量が大きくなる。発熱量が増加すると、回路の不具合や故障の原因となる。また、電動車両の電動モーターに電力供給を行う電池パックは、充放電を繰り返すことで発熱する。高温のまま使用を続けると、電池パックの性能や寿命が低下する原因となる。

[0003] また、このような発熱に関する問題は、電動車両に限られず、電子機器においても生じている。高性能化及び小型化が進む電子機器内部の発熱密度は年々増加しており、使用時に発生する熱を如何に効率的に放熱するかが課題となっている。

[0004] 発熱部に応じて冷却機構の細部は異なるものの、基本的には、発熱部と冷却部材を接触させて、除熱する方法がとられる。この際、発熱部材と冷却部材との間に隙間があると除熱効率が低下するため、一般的には、放熱部材を介して発熱部と冷却部材を間接的に接触させて、除熱をおこなう。

[0005] このような放熱部材は一般に樹脂中に無機フィラーを含む。このとき、樹脂中に無機フィラーを均一に分散させる必要がある。しかし、無機フィラーは、無機フィラーの表面間に働く引力（例えば、van der Waals力）により凝集しやすい。このため、樹脂中に無機フィラーを分散させるためには、例えば、引力に対抗する斥力を粒子間に導入する必要がある。斥力には、例えば、静電反発力及び立体障害反発力が挙げられる。無機フィラーの粒子間に斥力を導入する方法には、例えば、シランカップリング剤により無機フィラーを表面処理する方法がある（例えば、特許文献1参照）。シランカップリ

ング剤により、無機フィラーの表面に特定の官能基が導入され、無機フィラー間の斥力を高めることができる。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2000-233907号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、窒化ホウ素のような表面が安定な無機フィラーの場合、表面に存在するOH基のような官能基が少ない。このため、窒化ホウ素のような表面が安定な無機フィラーの場合、シランカップリング剤の無機フィラーの表面への修飾が不十分になり、樹脂中に無機フィラーを十分に分散させることができない場合があった。そして、その結果、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度の低減が難しくなり、樹脂組成物の成形性が悪くなる場合があった。

本発明は、上記問題点に鑑みてなされたものであり、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を低減することができる共重合体、その共重合体を含む界面活性剤、その界面活性剤と無機フィラーとを含む樹脂組成物、及びその樹脂組成物を含む放熱シートを提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した。その結果、所定の構成単位を有する（メタ）アクリル系共重合体であれば、上記課題を解決しうることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は以下のとおりである。

[1] アニオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位Aと、

カチオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位Bと、

前記（メタ）アクリル系単量体単位A及び前記（メタ）アクリル系単量体単位B以外の（メタ）アクリル系単量体単位Cとを有し、

前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの重量平均分子量が2,000～9,000である共重合体。

[2] 前記（メタ）アクリル系単量体単位Aの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、30～80モル%であり、

前記（メタ）アクリル系単量体単位Bの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、0.1～5.0モル%であり、

前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、20～70モル%である上記[1]に記載の共重合体。

[3] 重量平均分子量が40,000～80,000である上記[1]又は[2]に記載の共重合体。

[4] 前記（メタ）アクリル系単量体単位Cが、オキシアルキレン骨格、シロキサン骨格、炭化水素骨格、リン酸ジエステル骨格からなる群から選ばれる少なくとも1種の骨格を含む上記[1]～[3]のいずれか1つに記載の共重合体。

[5] 前記アニオン性基が、カルボキシ基、リン酸基及びフェノール性ヒドロキシ基からなる群から選ばれる少なくとも1種の基を含む上記[1]～[4]のいずれか1つに記載の共重合体。

[6] 前記カチオン性基が、第一級アミノ基、第二級アミノ基、第三級アミノ基及び第四級アンモニウム塩からなる群から選ばれる少なくとも1種の基を含む上記[1]～[5]のいずれか1つに記載の共重合体。

[7] 放熱シートに用いられる樹脂組成物に含まれる無機フィラーの表面処理用である上記[1]～[6]のいずれか1つに記載の共重合体。

[ 8 ] 前記無機フィラーが窒化ホウ素である上記 [ 7 ] に記載の共重合体。

[ 9 ] 上記 [ 1 ] ~ [ 8 ] のいずれか 1 つに記載の共重合体を含む界面活性剤。

[ 1 0 ] 樹脂と、上記 [ 9 ] に記載の界面活性剤と、無機フィラーとを含む樹脂組成物。

[ 1 1 ] 前記樹脂がシリコン樹脂及びエポキシ樹脂から選択される少なくとも 1 種の樹脂である上記 [ 1 0 ] に記載の樹脂組成物。

[ 1 2 ] 前記無機フィラーが窒化ホウ素である上記 [ 1 0 ] 又は [ 1 1 ] に記載の樹脂組成物。

[ 1 3 ] 上記 [ 1 0 ] ~ [ 1 2 ] のいずれか 1 つに記載の樹脂組成物を含む放熱シート。

### 発明の効果

[0009] 本発明によれば、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を低減することができる共重合体、その共重合体を含む界面活性剤、その界面活性剤と無機フィラーとを含む樹脂組成物、及びその樹脂組成物を含む放熱シートを提供することができる。

### 発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の実施の形態（以下、「本実施形態」という。）について詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲で様々な変形が可能である。なお、本発明の（メタ）アクリル系単量体単位とは、メタクリル酸系単量体単位およびアクリル系単量体単位の双方を意味する。

[0011] [共重合体]

本実施形態の共重合体は、アニオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位 A と、カチオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位 B と、上記（メタ）アクリル系単量体単位 A 及び上記（メタ）アクリル系単量体単位 B 以外の（メタ）アクリル系単量体単位 C とを有し、（メタ）アクリル系単量体単位 C の重量平均分子量が 2, 0 0 0 ~ 9, 0 0 0 である。本実施形態

の共重合体は、上記構成を有することにより、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を著しく低減することができる。その理由は、以下のように考えられる。

[0012] 樹脂に分散した無機フィラーの表面のように2つの異なる物質が接する界面には所定の電位差が生じ、対イオンを引き寄せ、固定相と拡散二重層からなる電気二重層が形成される。無機フィラーの表面における対イオンの広がりや電気二重層の厚さをともいう。無機フィラー同士が接近すると対イオンが重なり、静電反発力が増加する。本実施形態の共重合体は、分子中にアニオン性基とカチオン性基の両性を有することにより、この電気二重層の厚さを増加させる作用を有するものと考えられる。より具体的には、共重合体のアニオン性基とカチオン性基の一方が対イオンとして無機フィラーの表面近傍に配置される。そして、対イオンとして機能しない他方の基（副イオン）は無機フィラーの表面よりもより遠方に配置され、そこで副イオン層をさらに形成し得る。このようにして無機フィラー表面の電気二重層の厚みが増加することにより、van der Waals力が作用する無機フィラーの表面よりもより遠方で、静電反発力を作用させることができ、無機フィラーの分散性を良好にできると考えられる。その結果、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度は、本実施形態の共重合体により著しく低減するものと考えられる。

[0013] 本実施形態において、「単量体」とは、重合前の重合性不飽和結合を有するモノマーをいい、「単量体単位」とは、重合後に共重合体の一部を構成する繰り返し単位であって、所定の単量体に由来する単位をいう。また、以下において、「(メタ)アクリル系単量体単位A」を、単に「単位A」ともいい、「(メタ)アクリル系単量体単位B」を、単に「単位B」ともいい、「(メタ)アクリル系単量体単位C」を、単に「単位C」ともいう。

[0014] (アニオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位A)

(メタ)アクリル系単量体単位Aは、アニオン性基を有する繰り返し単位である。アニオン性基としては、特に制限されないが、例えば、カルボキシ基、リン酸基、フェノール性ヒドロキシ基、スルホン酸基が挙げられる。こ

のなかでも、カルボキシ基、リン酸基、及びフェノール性ヒドロキシ基からなる群より選ばれる一種以上であることが好ましく、カルボキシ基であることがより好ましい。このような基を有することにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0015] また、単位Aは、アニオン性基に結合した電子吸引性基をさらに有することが好ましい。このような電子吸引性基としては、アニオン性基のアニオンを安定化させる作用を有するものであれば特に限定されない。例えば、カルボキシ基の $\alpha$ 位の炭素原子にハロゲン元素等の電子吸引性の置換基を含むアクリル系単量体を用いてもよい。このような基を有することにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0016] 単位Aは、アニオン性基に結合した電子供与性基を有しないあるいは、電子供与性の低い基を有することが好ましい。このような電子供与性基としては、アニオン性基のアニオンを不安定化させる作用を有するものであれば特に限定されない。例えば、カルボキシ基の $\alpha$ 位の炭素原子にメチル基等の電子供与性基の置換基を含まないアクリル系単量体を用いてもよい。このような構造とすることにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0017] このような（メタ）アクリル系単量体としては、特に制限されないが、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、アシッドフォスフォキシプロピルメタクリレート、アシッドフォスフォキシポリオキシエチレングリコールモノメタクリレート、アシッドフォスフォキシポリオキシプロピレングリコールモノメタクリレート、リン酸変性エポキシアクリレート、2-アクリロイルオキシエチルアシッドホスフェート、2-メタクリロイルオキシエチルアシッドホスフェート、4-ヒドロキシフェニルアクリレート、4-ヒドロキシフェ

ニルメクリレート、2-メタクリロイルオキシエチルコハク酸、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸等が挙げられる。このなかでも、アクリル酸、2-メタクリロイルオキシエチルホスフェート、4-ヒドロキシフェニルメクリレート、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸が好ましく、アクリル酸がより好ましい。このような単量体に由来する単位を含むことにより、無機フィラーに対する共重合体の親和性がより向上し、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。単位Aは、一種単独で用いても、二種以上を併用してもよい。

[0018] (カチオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位B)

(メタ)アクリル系単量体単位Bは、カチオン性基を有する繰り返し単位である。カチオン性基としては、特に制限されないが、例えば、カチオン性基が、第一級アミノ基、第二級アミノ基、第三級アミノ基、及び第四級アンモニウム塩からなる群より選ばれる一種以上であることが好ましい。このなかでも、第三級アミノ基がより好ましい。このような基を有することにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0019] また、単位Bは、カチオン性基に結合した電子供与性基をさらに有することが好ましい。このような電子供与性基としては、カチオン性基のカチオンを安定化させる作用を有するものであれば特に限定されない。例えば、アミノ基の $\alpha$ 位の炭素原子にメチル基等の電子供与性の置換基を含むアクリル系単量体を用いてもよい。このような基を有することにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0020] 単位Bは、カチオン性基に結合した電子吸引性基を有しないあるいは、電

子吸引性の低い基を有することが好ましい。このような電子吸引性基としては、カチオン性基のカチオンを不安定化させる作用を有するものであれば特に限定されない。例えば、アミノ基の $\alpha$ 位の炭素原子にカルボキシル基等の電子吸引性基の置換基を含まないアクリル系単量体を用いてもよい。このような構造とすることにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0021] このような（メタ）アクリル系単量体としては、特に制限されないが、例えば、1-アミノエチルアクリレート、1-アミノプロピルアクリレート、1-アミノエチルメタクリレート、1-アミノプロピルメタクリレート、ジメチルアミノエチルメタクリレート、ジエチルアミノエチルメタクリレート、*t*-ブチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジメチルアミノエチルメタクリレート四級塩、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレート、2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルメタクリレート、ジメチルアミノエチルアクリレートベンジルクロライド4級塩等が挙げられる。これらのなかでも、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレート及び2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルメタクリレートが好ましく、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレートがより好ましい。このような単量体に由来する単位を含むことにより、無機フィラーに対する共重合体の親和性がより向上し、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。単位Bは、一種単独で用いても、二種以上を併用してもよい。

[0022] （（メタ）アクリル系単量体単位C）

（メタ）アクリル系単量体単位Cは、単位A及び単位B以外の（メタ）アクリル系単量体単位であり、分子中にカチオン性基およびアニオン性基を含まない（メタ）アクリル系単量体である。

[0023] 本実施形態の共重合体を熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂を含む樹脂組成物に混合することを想定した場合、(メタ)アクリル系単量体Cは、その樹脂組成物に用いられる樹脂との親和性又は相溶性の高い骨格を有することが好ましい。このような骨格としては、特に制限されないが、例えば、オキシアルキレン骨格等の両親媒性骨格、ジメチルシロキサンなどのシロキサン骨格、アルキルやアリアル等の炭化水素骨格等の疎水性骨格、又はリン酸ジエステル骨格等の親水性骨格が挙げられる。このなかでも、オキシアルキレン骨格、シロキサン骨格、炭化水素骨格が好ましく、シロキサン骨格及び炭化水素骨格がより好ましく、シロキサン骨格がさらに好ましい。このような骨格を有することにより、本実施形態の共重合体と樹脂との間の相溶性がより向上し、樹脂組成物中における無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。

[0024] このような(メタ)アクリル系単量体としては、特に制限されないが、例えば、エトキシカルボニルメチル(メタ)アクリレート、フェノールエチレンオキサイド変性(メタ)アクリレート、フェノール(エチレンオキサイド2モル変性)(メタ)アクリレート、フェノール(エチレンオキサイド4モル変性)(メタ)アクリレート、パラクミルフェノールエチレンオキサイド変性(メタ)アクリレート、ノニルフェノールエチレンオキサイド変性(メタ)アクリレート、ノニルフェノール(エチレンオキサイド4モル変性)(メタ)アクリレート、ノニルフェノール(エチレンオキサイド8モル変性)(メタ)アクリレート、ノニルフェノール(プロピレンオキサイド2.5モル変性)アクリレート、2-エチルヘキシルカルビトール(メタ)アクリレート、エチレンオキサイド変性フタル酸(メタ)アクリレート、エチレンオキサイド変性コハク酸(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリル(メタ)アクリレート、等のオキシアルキレン骨格を有する(メタ)アクリル系単量体；メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル

(メタ) アクリレート、イソオクチル (メタ) アクリレート、イソデシル (メタ) アクリレート、ラウリル (メタ) アクリレート、ステアリル (メタ) アクリレート、フェニル (メタ) アクリレート、シクロヘキシル (メタ) アクリレート、ジシクロペンタニル (メタ) アクリレート、ジシクロペンテニル (メタ) アクリレート、ジシクロペンテニロキシエチル (メタ) アクリレート、イソボルニル (メタ) アクリレート、メトキシ化シクロデカトリエン (メタ) アクリレート等のエステル部が炭化水素骨格を有する (メタ) アクリル系単量体； 2-ヒドロキシエチル (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート、3-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート、4-ヒドロキシブチル (メタ) アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル (メタ) アクリレート、3-クロロ-2-ヒドロキシプロピル (メタ) アクリレート等の水酸基を有する (メタ) アクリル系単量体； N, N-ジメチル (メタ) アクリルアミド、N, N-ジエチル (メタ) アクリルアミド、N-イソプロピル (メタ) アクリルアミド、ダイアセトン (メタ) アクリルアミド、又はアクリロイルモルホリン等のアミド結合を有する (メタ) アクリル系単量体；  $\alpha$ -ブチル- $\omega$ - (3-メタクリロキシプロピル) ポリジメチルシロキサン等のシロキサン骨格を有する (メタ) アクリル系単量体； (メタ) アクリロイルオキエチルジアルキルホスフェート等のリン酸ジエステル骨格を有する (メタ) アクリル系単量体； 1, 3-ブチレングリコールジ (メタ) アクリレート、1, 4-ブタンジオールジ (メタ) アクリレート、1, 6-ヘキサジオールジ (メタ) アクリレート、1, 9-ノナンジオールジ (メタ) アクリレート、ネオペンチルグリコールジ (メタ) アクリレート、ジシクロペンタニルジ (メタ) アクリレート、2-エチル-2-ブチル-プロパンジオール (メタ) アクリレート、ネオペンチルグリコール変性トリメチロールプロパンジ (メタ) アクリレート、ステアリン酸変性ペンタエリストールジ (メタ) アクリレート、2- (1, 2-シクロヘキサカルボキシイミド) エチル (メタ) アクリレート、ヘキサジオールジ (メタ) アクリレート、ビスフェノール構造を有する多官能 (メタ) アク

リレート等の多官能（メタ）アクリル系単量体等が挙げられる。単位Cは、一種単独で用いても、二種以上を併用してもよい。これらのなかで、 $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -(3-メタクリロキシプロピル)ポリジメチルシロキサン等のシロキサン骨格を有する（メタ）アクリル系単量体が好ましい。

[0025] （メタ）アクリル系単量体Cの重量平均分子量は、2,000~9,000である。（メタ）アクリル系単量体Cの重量平均分子量が2,000未満であると、樹脂に対する共重合体の親和性が不十分となり、無機フィラーの分散性が悪くなる場合がある。その結果、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減させることが難しくなる場合がある。また、（メタ）アクリル系単量体Cの重量平均分子量が9,000よりも大きいと、共重合体を樹脂と混合して得られた組成物の粘度が上昇する場合がある。このような観点から、（メタ）アクリル系単量体Cの重量平均分子量は、好ましくは2500~7000であり、より好ましくは3000~6000であり、さらに好ましくは3500~5500である。なお、（メタ）アクリル系単量体Cの重量平均分子量は、（メタ）アクリル系単量体単位Cの重量平均分子量である。

[0026] 単位Aの含有量は、単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して、30~80モル%であることが好ましく、40~65モル%であることがより好ましい。単位Aの含有量が30モル%以上であることにより、樹脂に対する共重合体の親和性がより向上し、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。その結果、本実施形態の共重合体は、樹脂及び無機フィラーを含む樹脂組成物の粘度を十分に低減することができる。また、単位Aの含有量が80モル%以下であることにより、十分な含有量で単位B及び単位Cを共重合体に含有させることができる。

[0027] 単位Bの含有量は、単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して、0.1~5モル%であることが好ましく、0.5~3モル%であることがより好ましい。単位Bの含有量を0.1モル%以上とすることで無機フィラーに対する共重合体の親和性が良好となる。また、5モル%以下とする

ことで、十分な含有量で単位A及び単位Cを共重合体に含有させることができる。

[0028] 単位A及び単位Bの総含有量は、単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して、30.1～85モル%であることが好ましく、35～75モル%であることがより好ましい。単位A及び単位Bの総含有量が30.1モル%以上であることにより、樹脂に対する共重合体の親和性がより向上し、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。また、単位A及び単位Bの総含有量が85モル%以下であることにより、十分な含有量で単位Cを共重合体に含有させることができる。

[0029] 単位Bに対する単位Aのモル比は、6～800であることが好ましく、20～400であることがより好ましい。単位Bに対する単位Aのモル比が上記範囲内であることにより、樹脂に対する共重合体の親和性がより向上し、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。

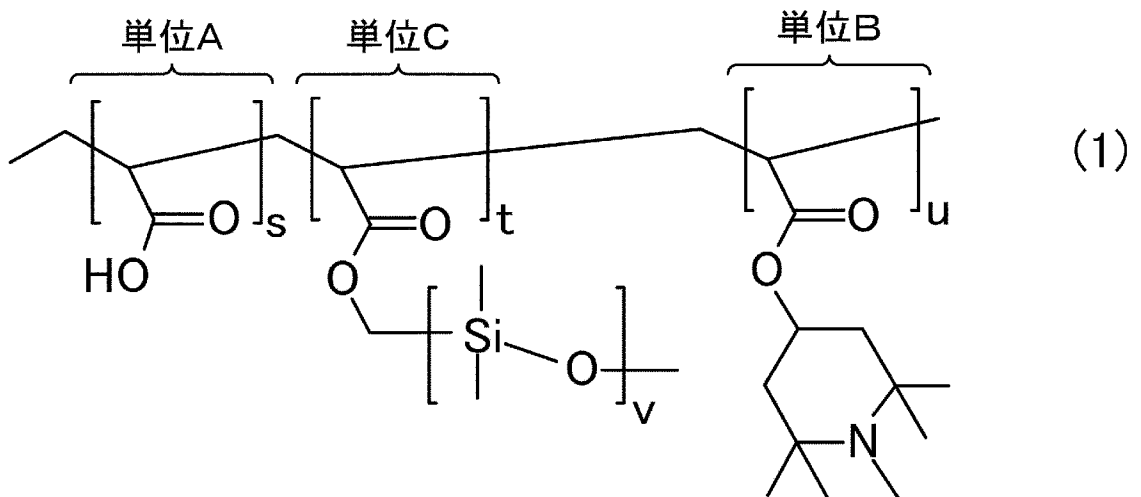
[0030] 単位Cの含有量は、単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して、20～70モル%であることが好ましく、30～55モル%であることがより好ましい。単位Cの含有量を20モル%以上とすることで、共重合体の粘性に由来するハンドリング性が良好となる。また、70モル%以下とすることで、十分な含有量で単位A及び単位Bを共重合体に含有させることができる。

[0031] 共重合体の重量平均分子量は、40,000～80,000であることが好ましく、50,000～70,000であることがより好ましい。共重合体の重量平均分子量が40,000以上であることにより、共重合体による立体障害反発力により無機フィラーはより凝集しにくくなり、樹脂組成物中の無機フィラーの分散性はさらに改善される。また、共重合体の重量平均分子量が80,000以下であることにより、共重合体を樹脂や溶媒に溶解させることがより容易になる。重量平均分子量は、GPC（ゲルパーミネーションクロマトグラフィー）により求めることができる。

[0032] 本実施形態の共重合体は、次の一般式（1）で表される共重合体であるこ

とが好ましい。一般式（１）で表される共重合体はランダム共重合体であってもよいし、ブロック共重合体であってもよい。なお、次の一般式（１）で表される共重合体の単位Aはアクリル酸に由来し、アニオン性基はカルボキシ基である。また、次の一般式（１）で表される共重合体の単位Bは1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレートに由来し、カチオン性基は第三級アミノ基である。さらに、次の一般式（１）で表される共重合体の単位Cは $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -(3-メタクリロキシプロピル)ポリジメチルシロキサンに由来し、シロキサン骨格を有する。

[0033] [化1]



式中、sは、共重合体の重量平均分子量が40,000～80,000である場合、単位Aの含有量が単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して30～80モル%となるような整数であり、tは、共重合体の重量平均分子量が40,000～80,000である場合、単位Cの含有量が単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して20～70モル%となるような整数であり、uは、共重合体の重量平均分子量が40,000～80,000である場合、単位Bの含有量が単位A、単位B、及び単位Cの合計100モル%に対して0.1～5.0モル%となるような整数である。また、vは、単位Cの重量平均分子量が2,000～9,000となるような整数である。

[0034] 本発明の共重合体は、樹脂との親和性が良好であるとともに無機フィラー

に吸着しやすいので、放熱シートに用いられる樹脂組成物に含まれる無機フィラーの表面処理に好適に用いられる。特に、本発明の共重合体は、重量平均分子量が比較的大きいので無機フィラーと吸着するアンカー部が多く、このため、窒化ホウ素のような表面が安定で反応性が乏しい無機フィラーに対しても良好な吸着性を有する。したがって、本発明の共重合体は、窒化ホウ素のような表面が安定な無機フィラーの表面処理にさらに好適に用いられる。無機フィラーの表面処理を、無機フィラーを樹脂と混合する前に行ってもよい。また、無機フィラーを樹脂と混合する際、共重合体も一緒に混合して、無機フィラーを樹脂と混合するときに無機フィラーの表面処理を行ってもよい。

[0035] (共重合体の製造方法)

本実施形態の共重合体の製造方法は、特に制限されず、(メタ)アクリル系単量体の公知の重合方法を用いることができる。重合方法としては、ラジカル重合、アニオン重合などが挙げられる。この中でも、ラジカル重合が好ましい。

[0036] ラジカル重合に用いる熱重合開始剤としては、特に制限されないが、例えば、アゾビスイソブチロニトリルなどのアゾ化合物；過酸化ベンゾイル、*tert*-ブチルヒドロペルオキシドやジ-*tert*-ブチルペルオキシドなどの有機過酸化物などが挙げられる。また、ラジカル重合に用いる光重合開始剤としては、特に制限されないが、ベンゾイン誘導体が挙げられる。また、そのほかATRPやRAFTなどのリビングラジカル重合に用いる公知の重合開始剤を用いることもできる。

[0037] 重合条件は、特に制限されず、用いる開始剤や溶剤の沸点、そのほか単量体の種類により適宜調整することができる。

[0038] 単量体の添加順序は、特に制限されないが、例えば、ランダム共重合体を合成する観点から単量体を混合して重合を開始してもよいし、ブロック共重合体を合成する観点から単量体を重合系に順次添加してもよい。

[0039] [界面活性剤]

本実施形態の界面活性剤は、上記共重合体を含み、必要に応じて、溶剤やその他任意の添加剤を含んでいてもよい。また、上記共重合体を単体で界面活性剤として用いて、無機フィラーと樹脂の混合物に対して添加することもできる。

[0040] 界面活性剤とは、樹脂中に無機フィラーを均一に分散させることを目的として用いるものである。これにより、無機フィラーと樹脂の混合物において、無機フィラーの凝集や沈降を防止し、安定性を向上させることができるほか、樹脂に対して無機フィラーを高充填で含有させることを可能にしたり、混合物の粘度を低下させたりすることができる。また、そのほかにも、無機フィラーの分散性の向上にともなう種々の効果を向上させることができる。

[0041] 本実施形態の界面活性剤は、上記共重合体による静電反発力によって無機フィラーを分散させ、無機フィラー同士の再凝集を防ぐことができる。また、上記共重合体は、立体障害反発力による分散性向上効果をさらに有する。なお、樹脂としては、特に制限されないが、例えば、後述する樹脂組成物に含まれるものを例示することができる。

[0042] [樹脂組成物]

本実施形態の樹脂組成物は、樹脂と、上記共重合体と、無機フィラーと、を含み、必要に応じて、溶剤やその他任意の添加剤を含んでいてもよい。本実施形態の樹脂組成物は、無機フィラーが共重合体により樹脂中に分散されたものである。

[0043] 共重合体の含有量は、樹脂、無機フィラー及び共重合体の含有量の合計100体積%に対して、0.01~15体積%であることが好ましく、0.1~10体積%であることがより好ましい。共重合体の含有量が0.01体積%以上であることにより、無機フィラーの分散性がより向上する傾向にある。また、共重合体の含有量が15体積%以下であることにより、樹脂組成物の熱伝導性がより向上する傾向にある。

[0044] 無機フィラーとしては、特に制限されないが、例えば、導電性及び／又は熱伝導性を有する無機フィラーが挙げられる。このような無機フィラーとし

ては、例えば、窒化ホウ素粉末、窒化アルミニウム粉末、酸化アルミニウム粉末、窒化ケイ素粉末、酸化ケイ素粉末、酸化マグネシウム粉末、金属アルミニウム粉末、及び酸化亜鉛粉末等から選択される1種以上が挙げられる。これらのなかでも、窒化ホウ素粉末及び酸化アルミニウム粉末が好ましく、窒化ホウ素粉末がより好ましい。このような無機フィラーを用いることにより、樹脂組成物の導電性及び／又は熱伝導性がより向上する傾向にある。また、このような無機フィラーと上記重合体を併用することにより、樹脂組成物に対して無機フィラーをより高充填することが可能となる。これにより、無機フィラーの充填量に応じて向上する導電性及び／又は熱伝導性をより向上させることが可能となる。

[0045] 無機フィラーの平均粒子径は、 $0.4 \sim 120 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $5 \sim 80 \mu\text{m}$ であることがより好ましい。無機フィラーの平均粒子径を $0.4 \mu\text{m}$ 以上とすることで、熱伝導性及び耐オイルブリード性が良好となる。また、 $120 \mu\text{m}$ 以下とすることで、無機フィラーを充填した組成物の成形性が良好となる。

[0046] また、無機フィラーは、複数の平均粒子径を有する無機フィラーの混合物であってもよい。単一の平均粒子径を有する無機フィラーのみを含有する場合に比べて、これよりも小さい平均粒子径を有する無機フィラーを併用することにより、大径の無機フィラーの間隙を小径の無機フィラーにより埋めることができる。そのため、複数の平均粒子径を有する無機フィラーを混合して用いることにより、樹脂組成物に対して無機フィラーをより高充填することが可能となる。通常は、このように無機フィラーを高充填させた場合、粘度が著しく向上し、取り扱いに耐えなくなったり、無機フィラーが均一分散しなくなったりという問題が生じうる。これに対して、上記共重合体を用いることにより、このような高充填に伴う問題を抑制することができる。そして、これにより、無機フィラーの充填量に応じて向上する導電性及び／又は熱伝導性をより向上させることが可能となる。

[0047] 無機フィラーの含有量は、樹脂、無機フィラー及び共重合体の含有量の合

計100体積%に対して、20～90体積%であることが好ましく、25～85体積%であることがより好ましい。無機フィラーの含有量が20体積%以上であることにより、導電性及び／又は熱伝導性がより向上する傾向にある。また、無機フィラーの含有量が90体積%以下であることにより、樹脂組成物中の無機フィラーの分散性が良好となる。

[0048] 樹脂としては、特に制限されないが、例えば、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、シアネート樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、熱硬化性ポリイミド、不飽和ポリエステル樹脂などの熱硬化性樹脂；アクリル樹脂、ポリオレフィン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、塩化ビニル樹脂、ウレタン樹脂、ポリアミド樹脂、ABS（アクリロニトリルブタジエンスチレン）樹脂などの熱可塑性樹脂が挙げられる。このなかでも、シリコーン系樹脂及びエポキシ系樹脂からなる群より選ばれる一種以上の樹脂であることが好ましい。

[0049] 任意の添加剤としては、特に制限されないが、例えば、シランカップリング剤、酸化防止剤、金属腐食防止剤などが挙げられる。

[0050] 本実施形態の樹脂組成物は、遊星攪拌機、万能混合攪拌機、ニーダー、ハイブリッドミキサー等で混練りすることによって製造することができる。

[0051] [放熱シート]

本実施形態の放熱シートは本発明の樹脂組成物を含む。これにより、放熱シートの熱伝導率を高くすることができる。本実施形態の放熱部材は、例えば、電子部品とヒートシンクとの間に配置される。これにより、電子部品とヒートシンクとの間の空隙の発生を抑制することができる。その結果、電子部品によって発生した熱をヒートシンクに、効率よく伝導させることができる。

[0052] ここで、電子部品としては、特に制限されないが、例えば、モーター、電池パック、車載電源システムに用いられる回路基板、パワートランジスタ、マイクロプロセッサ等の発熱する電子部品等が挙げられる。このなかでも、車載用の車載電源システムに用いられる電子部品が好ましい。また、ヒート

シンクとしては、放熱や吸熱を目的として構成された部品であれば特に制限されない。

## 実施例

[0053] 以下、本発明を実施例及び比較例を用いてより具体的に説明する。本発明は、以下の実施例によって何ら限定されるものではない。

[0054] <共重合体調製用単量体>

実施例の共重合体の重合には以下の原料を用いた。

(アニオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体A)

(A-1) アクリル酸、東亜合成株式会社製

(カチオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体B)

(B-1) 1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレート、ADEKA株式会社製「アデカスタブLA-82」

((メタ)アクリル系単量体C)

(C-1)  $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -(3-メタクリロキシプロピル)ポリジメチルシロキサン、JNC株式会社製「サイラプレーンFM-0721」重量平均分子量5,000

(C-2)  $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -(3-メタクリロキシプロピル)ポリジメチルシロキサン、JNC株式会社製「サイラプレーンFM-0725」重量平均分子量10,000

[0055] <共重合体の調製>

(共重合体1)

共重合体の調製は次の方法で行った。まず、攪拌機付のオートクレーブ内にアクリル酸：48.4モル%、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレート：1.6モル%、 $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -(3-メタクリロキシプロピル)ポリジメチルシロキサン(重量平均分子量5,000)：50.0モル%からなる(メタ)アクリル系単量体100質量部を添加した。次いで、開始剤としてアゾビスイソブチロニトリル(東京化成工業株式会社製)を、(メタ)アクリル系単量体の総和100質量部に対して0.0

5質量部、溶媒としてトルエン（試薬特級）、および2-プロパノール（試薬特級）の体積比=7:3の混合溶液を1000質量部加え、オートクレーブ内を窒素により置換した。その後、オートクレーブをオイルバス中で65℃にて20時間加熱し、ラジカル重合を行った。重合終了後、減圧下に120℃で1時間脱気し、共重合体1を得た。なお、 $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -（3-メタクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサンの重量平均分子量は5,000であったので、単位Cの重量平均分子量は5,000となる。

[0056] 単量体の仕込み量100%に対する重合率は、ガスクロマトグラフィ分析により分析したところ、98%以上であった。このことから、共重合体が有する各単量体単位の比率は、単量体の仕込み比と同程度と推定された。

[0057] また、得られた共重合体1の重量平均分子量を、GPC（ゲルパーミネーションクロマトグラフィー）法を用いて、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量として求めた。なお、測定条件は以下のとおりである。

高速GPC装置：東ソー株式会社製「HLC-8020」

カラム：東ソー株式会社製「TSK guardcolumn MP (XL)」6.0mm ID×4.0cm 1本、及び東ソー株式会社製「TSK-GELMULTIPOREHXL-M」7.8mm ID×30.0cm（理論段数16,000段）2本、計3本（全体として理論段数32,000段）

展開溶媒：テトラヒドロフラン

ディテクター：RI（示差屈折率計）

[0058]（共重合体2）

（メタ）アクリル系単量体中のアクリル酸の割合を48.4モル%から67.7モル%に、1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレートの重量平均分子量を5,000から10,000に、1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレートの割合を1.6モル%から2.3モル%に、 $\alpha$ -ブチル- $\omega$ -（3-メタクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサンの割合を50.0モル%から30.0モル%に変

更した以外は、共重合体1と同様の方法により、ラジカル重合を行い、共重合体2を得た。得られた共重合体2における重合率は98%以上であり、共重合体が有する各単量体単位の比率は、単量体の仕込み比と同程度と推定された。また、重量平均分子量についても上記と同様に求めた。なお、 $\alpha$ -ブチルー $\omega$ -（3-メタクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサンの重量平均分子量は10,000であったので、単位Cの重量平均分子量は10,000となる。

[0059] (共重合体3)

共重合体3は、高分子アミン化合物（日油株式会社製「エスリームAD-374M」）である。

[0060] (共重合体4)

共重合体4は、高分子ポリカルボン酸（日油株式会社製「マリアリムAAB-0851」）である。

[0061] なお、表1に記した単量体の組成はモル比（%）で記した。モル比は各単量体の添加量と分子量より算出した。また、 $\alpha$ -ブチルー $\omega$ -（3-メタクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサンのモル比は、重量平均分子量を基に算出した。

[0062] 上記のように合成した共重合体1及び2の組成及び重量平均分子量を下記表1に示す。

[0063] <樹脂組成物調製用原料>

(樹脂)

- ・シリコーン樹脂：Momentive社製「TSE3033(A)」
- ・エポキシ樹脂：三菱ケミカル株式会社製「jER（登録商標）806」

(無機フィラー)

- ・窒化ホウ素1、デンカ株式会社製、「HGP」、平均粒子径6 $\mu$ m
- ・窒化ホウ素2、デンカ株式会社製、「SGPS」、平均粒子径20 $\mu$ m
- ・窒化ホウ素3、デンカ株式会社製、「FP40」、平均粒子径40 $\mu$ m

[0064] 無機フィラーの平均粒子径は、島津製作所製「レーザー回折式粒度分布測

定装置「SALD-20」を用いて測定を行った。評価サンプルは、ガラスビーカーに50mlの純水と測定する無機フィラーを5g添加して、スパチュラを用いて攪拌し、その後超音波洗浄機で10分間、分散処理を行った。分散処理を行った無機フィラーの分散液を、スポイトを用いて、装置のサンプル部に一滴ずつ添加して、吸光度が安定したところで測定を行った。平均粒径は、D50（メジアン径）を採用した。

[0065] <樹脂組成物の調製>

（樹脂組成物1）

窒化ホウ素1の割合が70体積%、シリコーン樹脂の割合が27体積%及び共重合体1の割合が3体積%となるように、窒化ホウ素1、シリコーン樹脂及び共重合体1を秤量し、これを万能混合機に添加した。次いで、150℃にて3時間、絶対圧100Pa以下の条件にて万能混合機中で真空加熱混練し、樹脂組成物1を調製した。得られた樹脂組成物1の評価を表2に記す。

[0066] （樹脂組成物2～16）

表2～5に記載の組成の成分を用いたこと以外は、樹脂組成物1と同様の方法により、樹脂組成物2～16を調製した、得られた樹脂組成物2～16の評価を表2～5に記す。

[0067] <放熱シートの作製>

[0068] [放熱シートの製造方法]

ドクターブレード法によって樹脂組成物をシート状に成形して樹脂組成物シートを作製した。そして、加熱温度120℃、圧力5MPa、加熱及び加圧の時間30分の条件で樹脂組成物シートを真空下で加熱及び加圧して放熱シートを作製した。

[0069] 樹脂組成物の物性は、以下の方法により測定した。

[樹脂組成物の粘度]

Thermo Scientific社製回転式レオメータMARS IIIにて、上部治具として35mmφの平行プレートを用い、ペルチェ

素子にて温度制御が可能な35mmφ下部プレートの上に、樹脂組成物を載せ、上部治具で厚み1mmまで圧縮し、はみ出した部分はかきとり、25℃にて測定を行った。せん断速度1~10s<sup>-1</sup>の粘度を測定し、せん断速度10s<sup>-1</sup>の粘度を評価に用いた。

[0070] 放熱シートの物性は、以下の方法により測定した。

[放熱シートの熱伝導率]

ヒーターの埋め込まれた直方体の銅製治具で先端が100mm<sup>2</sup> (10mm×10mm) と、冷却フィンを取り付けた直方体の銅製治具で先端が100mm<sup>2</sup> (10mm×10mm) との間に、放熱シートを挟んで熱抵抗を測定し、熱抵抗と厚みの勾配から熱伝導率を算出して評価した。熱抵抗は、ヒーターに電力10Wをかけて30分間保持し、銅製治具同士の温度差(℃)を測定し、

熱抵抗(℃/W) = {温度差(℃) / 電力(W)} にて算出した。

[0071] [表1]

表1

				共重合体1	共重合体2
				実施例	比較例
単位A	(A-1)	アクリル酸	モル%	48.4	67.7
単位B	(B-1)	1,2,2,6,6-ヘキサフルオロ-4-ヒドロキシメチルメタクリレート		1.6	2.3
単位C	(C-1)	α-ブチル-ω-(3-メタクリロキシプロピル)ポリメチルシロキサン		50	-
	(C-2)	α-ブチル-ω-(3-メタクリロキシプロピル)ポリメチルシロキサン		-	30
単位Cの重量平均分子量				5,000	10,000
共重合体の重量平均分子量				65000	85000

[0072] [表2]

表2

			樹脂組成物1	樹脂組成物2	樹脂組成物3	樹脂組成物4	
			実施例	比較例	比較例	比較例	
樹脂組成	共重合体 No.		1	2	3	4	
	共重合体		7	7	7	7	
	樹脂種	シリコン樹脂	体積%	63	63	63	63
		エポキシ樹脂		-	-	-	-
	無機フィラー	窒化ホ素(平均粒子径: 6μm)		30	30	30	30
		窒化ホ素(平均粒子径: 20μm)		-	-	-	-
窒化ホ素(平均粒子径: 40μm)		-		-	-	-	
樹脂組成物の粘度				mPa·s	80	195	220
放熱シートの熱伝導率			W/mK	1.8	1.5	1.4	1.4

[0073]

[表3]

表3

		樹脂組成物5	樹脂組成物6	樹脂組成物7	樹脂組成物8					
		実施例	比較例	比較例	比較例					
樹脂組成	共重合体 No.	1	2	3	4					
	共重合体	7	7	7	7					
	樹脂種	シリコン樹脂	体積%	63	63	63				
		エポキシ樹脂								
	無機フィラー	窒化ホ素(平均粒子径: 6 μm)					—	—	—	—
		窒化ホ素(平均粒子径: 20 μm)					30	30	30	30
		窒化ホ素(平均粒子径: 40 μm)					—	—	—	—
樹脂組成物の粘度		Pa・s					35	106	120	130
放熱シートの熱伝導率		W/mK					2.7	2.3	2.1	1.9

[0074] [表4]

表4

		樹脂組成物9	樹脂組成物10	樹脂組成物11	樹脂組成物12					
		実施例	比較例	比較例	比較例					
樹脂組成	共重合体 No.	1	2	3	4					
	共重合体	7	7	7	7					
	樹脂種	シリコン樹脂	体積%	63	63	63				
		エポキシ樹脂								
	無機フィラー	窒化ホ素(平均粒子径: 6 μm)					—	—	—	—
		窒化ホ素(平均粒子径: 20 μm)					—	—	—	—
		窒化ホ素(平均粒子径: 40 μm)					30	30	30	30
樹脂組成物の粘度		Pa・s					53	140	158	203
放熱シートの熱伝導率		W/mK					3.5	2.8	2.7	2.4

[0075] [表5]

表5

		樹脂組成物13	樹脂組成物14	樹脂組成物15	樹脂組成物16					
		実施例	比較例	比較例	比較例					
樹脂組成	共重合体 No.	1	2	3	4					
	共重合体	7	7	7	7					
	樹脂種	シリコン樹脂	体積%	63	63	63				
		エポキシ樹脂								
	無機フィラー	窒化ホ素(平均粒子径: 6 μm)					—	—	—	—
		窒化ホ素(平均粒子径: 20 μm)					—	—	—	—
		窒化ホ素(平均粒子径: 40 μm)					30	30	30	30
樹脂組成物の粘度		mPa・s					65	98	110	103
放熱シートの熱伝導率		W/mK					4.4	3.6	3.5	3.7

[0076] 実施例の樹脂組成物1, 5, 9及び13には、アニオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位Aと、カチオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位Bと、(メタ)アクリル系単量体単位A及び(メタ)アクリル系単量体単位B以外の(メタ)アクリル系単量体単位Cとを有し、(メタ)アクリル系単量体単位Cの重量平均分子量が2,000~9,000である共重合体を使用したため、比較例に比べて粘度を著しく低減することができた

。一方、比較例の樹脂組成物 2、6、10 及び 14 は、(メタ)アクリル系単量体単位 C の重量平均分子量が 9,000 よりも大きかったので、粘度をあまり低減することができなかった。また、比較例の樹脂組成物 3、4、7、8、11、12、15 及び 16 に使用した共重合体は、アニオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位 A と、カチオン性基を有する(メタ)アクリル系単量体単位 B と、(メタ)アクリル系単量体単位 A 及び(メタ)アクリル系単量体単位 B 以外の(メタ)アクリル系単量体単位 C とを有する共重合体ではなかったので、粘度をあまり低減することができなかった。

## 請求の範囲

- [請求項1] アニオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位Aと、カチオン性基を有する（メタ）アクリル系単量体単位Bと、前記（メタ）アクリル系単量体単位A及び前記（メタ）アクリル系単量体単位B以外の（メタ）アクリル系単量体単位Cとを有し、前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの重量平均分子量が2,000～9,000である共重合体。
- [請求項2] 前記（メタ）アクリル系単量体単位Aの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、30～80モル%であり、前記（メタ）アクリル系単量体単位Bの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、0.1～5.0モル%であり、前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの含有量が、前記（メタ）アクリル系単量体単位A、前記（メタ）アクリル系単量体単位B及び前記（メタ）アクリル系単量体単位Cの合計100モル%に対して、20～70モル%である請求項1に記載の共重合体。
- [請求項3] 重量平均分子量が40,000～80,000である請求項1又は2に記載の共重合体。
- [請求項4] 前記（メタ）アクリル系単量体単位Cが、オキシアルキレン骨格、シロキサン骨格、炭化水素骨格、リン酸ジエステル骨格からなる群から選ばれる少なくとも1種の骨格を含む請求項1～3のいずれか1項に記載の共重合体。
- [請求項5] 前記アニオン性基が、カルボキシ基、リン酸基及びフェノール性ヒドロキシ基からなる群から選ばれる少なくとも1種の基を含む請求項1～4のいずれか1項に記載の共重合体。

- [請求項6] 前記カチオン性基が、第一級アミノ基、第二級アミノ基、第三級アミノ基及び第四級アンモニウム塩からなる群から選ばれる少なくとも1種の基を含む請求項1～5のいずれか1項に記載の共重合体。
- [請求項7] 放熱シートに用いられる樹脂組成物に含まれる無機フィラーの表面処理用である請求項1～6のいずれか1項に記載の共重合体。
- [請求項8] 前記無機フィラーが窒化ホウ素である請求項7に記載の共重合体。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載の共重合体を含む界面活性剤。
- [請求項10] 樹脂と、請求項9に記載の界面活性剤と、無機フィラーとを含む樹脂組成物。
- [請求項11] 前記樹脂がシリコン樹脂及びエポキシ樹脂から選択される少なくとも1種の樹脂である請求項10に記載の樹脂組成物。
- [請求項12] 前記無機フィラーが窒化ホウ素である請求項10又は11に記載の樹脂組成物。
- [請求項13] 請求項10～12のいずれか1項に記載の樹脂組成物を含む放熱シート。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/041838

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C08F 290/06</i> (2006.01)i; <i>C08K 3/013</i> (2018.01)i; <i>C08K 3/38</i> (2006.01)i; <i>C08L 55/00</i> (2006.01)i; <i>C08L 63/00</i> (2006.01)i; <i>C08L 83/04</i> (2006.01)i FI: C08F290/06; C08K3/013; C08K3/38; C08L55/00; C08L63/00 C; C08L83/04		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08F290/06; C08K3/013; C08K3/38; C08L55/00; C08L63/00; C08L83/04		
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 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2020/209263 A1 (DENKA CO., LTD.) 15 October 2020 (2020-10-15) claims 1, 13-16, paragraphs [0021], [0045], [0046]-[0054], examples 13-16	1-13
A	JP 2011-214000 A (SEKISUI PLASTICS CO., LTD.) 27 October 2011 (2011-10-27) paragraphs [0012], [0098]	1-13
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "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 <b>04 January 2023</b>		Date of mailing of the international search report <b>17 January 2023</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

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

International application No.

**PCT/JP2022/041838**

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2020/209263 A1	15 October 2020	US 2022/0186089 A1 claims 1, 13-16, paragraphs [0047], [0071], [0072]-[0080], examples 13-16	
JP 2011-214000 A	27 October 2011	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08F 290/06(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/38(2006.01)i; C08L 55/00(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i FI: C08F290/06; C08K3/013; C08K3/38; C08L55/00; C08L63/00 C; C08L83/04		
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）） C08F290/06; C08K3/013; C08K3/38; C08L55/00; C08L63/00; C08L83/04 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 1971-2023年 日本国実用新案登録公報 1996-2023年 日本国登録実用新案公報 1994-2023年 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2020/209263 A1（デンカ株式会社）15.10.2020（2020-10-15） 請求項1,13-16、段落[0021],[0045],[0046]-[0054]、実施例13-16	1-13
A	JP 2011-214000 A（積水化成成品工業株式会社）27.10.2011（2011-10-27） 段落[0012],[0098]	1-13
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的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	04.01.2023	国際調査報告の発送日 17.01.2023
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）  牟田 博一 4J 2588  電話番号 03-3581-1101 内線 3457	

国際調査報告  
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/041838

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2020/209263 A1	15.10.2020	US 2022/0186089 A1 請求項1,13-16、段落 [0047],[0071],[0072]- [0080]、実施例13-16	
JP 2011-214000 A	27.10.2011	(ファミリーなし)	