

(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
2012 年 10 月 4 日(04.10.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/132656 A1

- (51) 国際特許分類:
C09J 4/02 (2006.01) C09J 11/06 (2006.01)
C09J 7/00 (2006.01) C09J 133/06 (2006.01)
C09J 9/00 (2006.01) C09J 163/00 (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01) H01L 23/373 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/054289
- (22) 国際出願日: 2012 年 2 月 22 日(22.02.2012)
- (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 2011-071876 2011 年 3 月 29 日(29.03.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本ゼオン株式会社 (ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 熊本 拓朗 (KUMAMOTO, Takurou) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 2 号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 川村 明子 (KAWAMURA, Hiromi) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 2 号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 山本 典輝, 外 (YAMAMOTO, Noriaki et al.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目 1 6 番 1 0 号 オークビル京橋 3 階 東京セントラル特許事務所内 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: HEAT-CONDUCTIVE, PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE COMPOSITION, HEAT-CONDUCTIVE, PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE SHEET FORMED BODY, METHOD FOR PRODUCING EACH, AND ELECTRONIC COMPONENT

(54) 発明の名称: 熱伝導性感圧接着剤組成物、熱伝導性感圧接着性シート状成形体、これらの製造方法、及び電子部品

(57) Abstract: Provided are: a heat-conductive, pressure-sensitive adhesive composition that can be provided with superior strength and fire resistance even when formed thinly, and that is characterized by, in a mixed composition containing predetermined amounts of each of a (meth)acrylate resin composition (A), which contains a (meth)acrylic ester polymer (A1) and a (meth)acrylic ester monomer ($\alpha 1$), a heat-conductive filler (B1) having a BET specific surface area of 1.0-10 m²/g inclusive, a phosphate ester (C), a polyfunctional monomer (D) having a plurality of polymerizable unsaturated bonds, and a polyfunctional epoxy compound (E) having 2-10,000 functional groups inclusive, performing at least a polymerization reaction of the (meth)acrylic ester monomer ($\alpha 1$) and the polyfunctional monomer (D), and a cross-linking reaction of the polymer containing a structural unit derived from the (meth)acrylic ester monomer ($\alpha 1$) and/or the (meth)acrylic ester polymer (A1); a heat-conductive, pressure-sensitive adhesive sheet formed body; a method for producing the composition and body; and an electronic component provided with the heat-conductive, pressure-sensitive adhesive composition or the heat-conductive, pressure-sensitive adhesive sheet formed body.

(57) 要約: (メタ)アクリル酸エステル重合体 (A1)、及び、(メタ)アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) を含む (メタ)アクリル樹脂組成物 (A) と、BET 比表面積が 1.0 m²/g 以上 10 m²/g 以下である熱伝導性フィラー (B1) と、リン酸エステル (C) と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体 (D) と、官能基を 2 以上 10000 以下有する多官能エポキシ化合物 (E) と、をそれぞれ所定量含む混合組成物中において、(メタ)アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 及び多官能性単量体 (D) の重合反応と、(メタ)アクリル酸エステル重合体 (A1) 及び/又は (メタ)アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われてなることを特徴とし、薄く成形しても優れた強度及び難燃性を備えさせることが可能な熱伝導性感圧接着剤組成物及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体と、これらの製造方法と、該熱伝導性感圧接着剤組成物又は該熱伝導性感圧接着性シート状成形体を備えた電子部品とを提供する。

WO 2012/132656 A1

明 細 書

発明の名称：

熱伝導性感圧接着剤組成物、熱伝導性感圧接着性シート状成形体、これらの製造方法、及び電子部品

技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導性感圧接着剤組成物、熱伝導性感圧接着性シート状成形体、これらの製造方法、及び該熱伝導性感圧接着剤組成物又は該熱伝導性感圧接着性シート状成形体を備えた電子部品に関する。

背景技術

[0002] 近年、プラズマディスプレイパネル（PDP）、集積回路（IC）チップ等のような電子部品は、その高性能化に伴って発熱量が増大している。その結果、温度上昇による機能障害対策を講じる必要性が生じている。一般的には、金属製のヒートシンク、放熱板、放熱フィン等の放熱体を電子部品等に備えられる発熱体に取り付けることによって放熱させる方法が採られている。発熱体から放熱体への熱伝導を効率よく行うためには、各種熱伝導シートが使用されている。一般的に、発熱体と放熱体とを固定する用途においては、熱伝導性に加えて感圧接着性も備えた組成物（以下、「熱伝導性感圧接着剤組成物」という。）、又は熱伝導性に加えて感圧接着性も備えたシート（以下、「熱伝導性感圧接着性シート状成形体」という。）が必要とされている。

[0003] 上記熱伝導性感圧接着剤組成物及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体は、発熱体から放熱体へと熱を伝えることを目的の一つとして用いられるため、発熱体及び放熱体に密着できる柔軟性等が求められる。柔軟性が優れる熱伝導性感圧接着性シート状成形体に関する技術としては、例えば、特許文献1に開示された難燃性放熱シートや、特許文献2に開示された熱伝導シートがある。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開 2 0 0 6 - 1 7 6 6 4 0 号公報

特許文献2：特開 2 0 1 0 - 1 3 2 8 5 6 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 熱伝導性感圧接着剤組成物又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体を用いて発熱体から放熱体へと熱を効率良く伝えるためには、上述したように、柔軟性を向上させて発熱体と放熱体との密着性を向上させることが考えられる。また、熱伝導性感圧接着剤組成物及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体を用いて発熱体から放熱体へと熱を効率良く伝えるためには、厚さ方向の熱抵抗を下げることが考えられる。厚さ方向の熱抵抗を下げるためには、熱伝導率を向上させるほかに、薄く成形することが考えられる。

[0006] しかしながら、従来の熱伝導性感圧接着性シート状成形体では、薄く成形すると製品として要求される強度や難燃性を得ることが難しいという問題があった。熱伝導性感圧接着性シート状成形体の難燃性を向上させるには、リン酸エステル等の添加剤を添加することが知られているが、これらを多量に使用するとシート化することが困難になるという問題があった。このように、従来の技術では、熱伝導性感圧接着性シート状成形体に要求される諸性能をバランスよく備えさせることが困難であった。

[0007] そこで、本発明は、薄く成形しても優れた強度及び難燃性を備えさせることができる熱伝導性感圧接着剤組成物及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体と、これらの製造方法と、該熱伝導性感圧接着剤組成物又は該熱伝導性感圧接着性シート状成形体を備えた電子部品と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

[0008] 本発明の第 1 の態様は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を 1 0 0 質量部と、BET 比表面積が 1. 0 m²/g 以上 1 0

m^2/g 以下である熱伝導性フィラー（B 1）を 90 質量部以上 1200 質量部以下と、リン酸エステル（C）を 45 質量部以上 190 質量部以下と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を 0.2 質量部以上 15 質量部以下と、官能基を 2 以上 10000 以下有する多官能エポキシ化合物（E）を 0.05 質量部以上 15 質量部以下と、を含む混合組成物中において、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われてなる、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）である。

[0009] 以下に、本明細書中で用いる文言の定義を記載する。「（メタ）アクリル」とは、「アクリル、及び／又は、メタクリル」を意味する。また、「BET 比表面積」とは、以下の方法で計測したものを意味する。まず、窒素およびヘリウムの混合ガスを BET 比表面積測定装置内に導入し、試料（BET 比表面積の測定対象物）を入れた試料セルを液体窒素に浸して、窒素ガスを試料表面に吸着させる。吸着平衡に達した後、試料セルを水浴に入れ常温まで温め、試料に付着していた窒素を脱着させる。窒素ガスの吸着、脱着時に試料セルを通過する前後のガスの混合比は変化するので、この変化を窒素およびヘリウムの混合比が一定のガスを対照として熱伝導度検出器（TCD）で検知し、窒素ガスの吸着量および脱着量を求める。測定前に単位量の窒素ガスを装置内に導入してキャリブレーションを行い、TCD で検出した値に対応する表面積の値を求めておくことにより、その試料の表面積を求める。また、表面積をその試料の質量で除すことにより、BET 比表面積を求めることができる。また、「熱伝導性フィラー」とは、添加することによって熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は後に説明する熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の熱伝導性を向上させることができるフィラーを意味する。また、「（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び多官能性単量体（D）の重合反応」とは、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）と多官

能性単量体 (D) との共重合反応、(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) の重合反応、及び、多官能性単量体 (D) の重合反応のうち、一又は複数の重合反応を意味する。また、「(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) 及び／又は(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応」とは、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) 同士の架橋反応、(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) 由来の構造単位を含む重合体同士の架橋反応、及び、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) と(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) 由来の構造単位を含む重合体との架橋反応のうち、一又は複数の架橋反応を意味する。

[0010] 本発明の第 1 の態様の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F) において、(メタ) アクリル樹脂組成物 (A) が有機酸基を有する単量体単位又は有機酸基を有する単量体を含むことが好ましい。また、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー (B 1) が、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0011] 本発明の第 1 の態様の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F) において、混合組成物が、さらに、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー (B 2) を 200 質量部以上 800 質量部以下含むことが好ましい。また、当該熱伝導性フィラー (B 2) が、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0012] 本発明の第 2 の態様は、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1)、及び、(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) を含む(メタ) アクリル樹脂組成物 (A) を 100 質量部と、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー (B 1) を 90 質量部以上 1200 質量部以下と、リン酸エステル (C) を 45 質量部以上 190 質量部以下と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体 (D) を 0.2 質量部以上 15 質量部以下と、官能基を 2 以上 10000 以下有する多官能エポキシ化合物 (E) を 0.05 質量部以上 15 質量部以下と、を含む混合物組成物をシー

ト状に成形した後、又は混合組成物をシート状に成形しながら、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われてなる、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）である。

[0013] 本発明の第2の態様の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）において、（メタ）アクリル樹脂組成物（A）が有機酸基を有する単量体単位又は有機酸基を有する単量体を含むことが好ましい。また、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B 1）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0014] 本発明の第2の態様の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）において、混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B 2）を200質量部以上800質量部以下含むことが好ましい。また、当該熱伝導性フィラー（B 2）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0015] 本発明の第3の態様は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を100質量部と、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B 1）を90質量部以上1200質量部以下と、リン酸エステル（C）を45質量部以上190質量部以下と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を0.2質量部以上15質量部以下と、官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）を0.05質量部以上15質量部以下と、を含む混合組成物を作製する工程、並びに、混合組成物中において、前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程、を

含む、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法である。

[0016] 本発明の第3の態様の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法において、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムであることが好ましい。また、混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B2）を200質量部以上800質量部以下含むことが好ましく、当該熱伝導性フィラー（B2）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0017] 本発明の第4の態様は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を100質量部と、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）を90質量部以上1200質量部以下と、リン酸エステル（C）を45質量部以上190質量部以下と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を0.2質量部以上15質量部以下と、官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）を0.05質量部以上15質量部以下と、を含む混合組成物を作製する工程、並びに、混合組成物をシート状に成形した後、又は、混合組成物をシート状に成形しながら、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程、を含む、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法である。

[0018] 本発明の第4の態様の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法において、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムであることが好ましい。また、混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B2）

を200質量部以上800質量部以下含むことが好ましく、当該熱伝導性フィラー（B2）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムであることが好ましい。

[0019] 本発明の第5の態様は、放熱体及び該放熱体に貼合された本発明の第1の態様の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）、又は、放熱体及び該放熱体に貼合された本発明の第2の態様の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）、を備えた電子部品である。

発明の効果

[0020] 本発明によれば、薄く成形しても優れた強度及び難燃性を備えさせることが可能な熱伝導性感圧接着剤組成物及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体と、これらの製造方法と、該熱伝導性感圧接着剤組成物又は該熱伝導性感圧接着性シート状成形体を備えた電子部品とを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0021] 1. 熱伝導性感圧接着剤組成物（F）、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体混合物（ $\alpha 1$ ）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）と、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）（以下、単に「熱伝導性フィラー（B1）」という場合がある。）と、リン酸エステル（C）と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）（以下、単に「多官能性単量体（D）」という場合がある。）と、官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）（以下、単に「多官能エポキシ化合物（E）」という場合がある。）と、を含む混合組成物中において、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）と多官能性単量体（D）との共重合反応、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）の重合反応、及び、多官能性単量体（D）の重合反応のうち少なくともいずれかの重合反応、並びに、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）同士の架橋反応、（メタ）アク

リル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体同士の架橋反応、及び、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) と (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体との架橋反応のうち少なくともいずれかの架橋反応が、少なくとも行われてなるものである。

[0022] また、本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体 (G) は、上記混合組成物をシート状に成形した後、又は上記混合組成物をシート状に成形しながら、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) と多官能性単量体 (D) との共重合反応、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) の重合反応、及び、多官能性単量体 (D) の重合反応のうち少なくともいずれかの重合反応、並びに、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) 同士の架橋反応、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体同士の架橋反応、及び、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) と (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体との架橋反応のうち少なくともいずれかの架橋反応が、少なくとも行われてなるものである。

[0023] このような熱伝導性感圧接着剤組成物 (F) 及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体 (G) を構成する物質について以下に説明する。

[0024] < (メタ) アクリル樹脂組成物 (A) >

本発明に用いる (メタ) アクリル樹脂組成物 (A) は、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1)、及び、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) を含んでいる。なお、上述したように、熱伝導性感圧接着剤組成物 (F) 及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体 (G) を得る際には (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 及び多官能性単量体 (D) の重合反応と、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) 及び／又は (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われる。当該重合反応及び架橋反応を行うことによって、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体は、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) の成分と混合及び／又は一部結合する。ま

た、後述する多官能性単量体（D）による架橋反応や、場合によっては後述する多官能エポキシ化合物（E）による架橋反応も起こり得る。

[0025] 本発明において、アクリル酸エステル重合体（A1）及び（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）の使用量は、（メタ）アクリル樹脂組成物（A）100質量%に対して、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）5質量%以上40質量%以下、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）60質量%以上95質量%以下であることが好ましい。（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）の含有比率を上記範囲とすることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の成形を行うことが容易になる。

[0026] （（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1））

本発明に用いることができる（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）は特に限定されないが、ガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を形成する（メタ）アクリル酸エステル単量体の単位（a1）、及び、有機酸基を有する単量体単位（a2）を含有することが好ましい。

[0027] 上記（メタ）アクリル酸エステル単量体の単位（a1）を与える（メタ）アクリル酸エステル単量体（a1m）は特に限定はないが、例えば、アクリル酸エチル（単独重合体のガラス転移温度は、 -24°C ）、アクリル酸n-プロピル（同 -37°C ）、アクリル酸n-ブチル（同 -54°C ）、アクリル酸sec-ブチル（同 -22°C ）、アクリル酸n-ヘプチル（同 -60°C ）、アクリル酸n-ヘキシル（同 -61°C ）、アクリル酸n-オクチル（同 -65°C ）、アクリル酸2-エチルヘキシル（同 -50°C ）、アクリル酸2-メトキシエチル（同 -50°C ）、アクリル酸3-メトキシプロピル（同 -75°C ）、アクリル酸3-メトキシブチル（同 -56°C ）、アクリル酸エトキシメチル（同 -50°C ）、メタクリル酸n-オクチル（同 -25°C ）、メタクリル酸n-デシル（同 -49°C ）などを挙げることができる。中でも、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸2-メトキシエチルが好ましく、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸2-エチルヘキ

シルがより好ましく、アクリル酸 2-エチルヘキシルがさらに好ましい。

[0028] これらの(メタ)アクリル酸エステル単量体(a 1 m)は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0029] (メタ)アクリル酸エステル単量体(a 1 m)は、それから導かれる単量体単位(a 1)が、(メタ)アクリル酸エステル重合体(A 1)中、好ましくは80質量%以上99.9質量%以下、より好ましくは85質量%以上99.5質量%以下となるような量で重合に使用することが好ましい。(メタ)アクリル酸エステル単量体(a 1 m)の使用量が上記範囲内であると、重合時の重合系の粘度を適正な範囲に保つことが容易になる。

[0030] 次に、有機酸基を有する単量体単位(a 2)について説明する。有機酸基を有する単量体単位(a 2)を与える単量体(a 2 m)は特に限定されないが、その代表的なものとして、カルボキシル基、酸無水物基、スルホン酸基などの有機酸基を有する単量体を挙げることができる。また、これらのほか、スルフェン酸基、スルフィン酸基、燐酸基などを含有する単量体も使用することができる。

[0031] カルボキシル基を有する単量体の具体例としては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸などの α , β -エチレン性不飽和モノカルボン酸や、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸などの α , β -エチレン性不飽和多価カルボン酸の他、イタコン酸モノメチル、マレイン酸モノブチル、フマル酸モノプロピルなどの α , β -エチレン性不飽和多価カルボン酸部分エステルなどを挙げることができる。また、無水マレイン酸、無水イタコン酸などの、加水分解などによりカルボキシル基に誘導することができる基を有するものも同様に使用することができる。

[0032] スルホン酸基を有する単量体の具体例としては、アリルスルホン酸、メタリルスルホン酸、ビニルスルホン酸、スチレンスルホン酸、アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸などの α , β -不飽和スルホン酸、及び、これらの塩を挙げることができる。

[0033] 単量体(a 2 m)としては、上に例示した有機酸基を有する単量体のうち

、カルボキシル基を有する単量体がより好ましく、中でも、アクリル酸又はメタクリル酸を有する単量体が特に好ましい。これらの単量体は工業的に安価で容易に入手することができ、他の単量体成分との共重合性も良く、生産性の点でも好ましい。なお、単量体（a 2 m）は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0034] 有機酸基を有する単量体（a 2 m）は、それから導かれる単量体単位（a 2）が（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）中、0.1質量%以上20質量%以下、好ましくは0.5質量%以上15質量%以下となるような量で重合に使用することが好ましい。有機酸基を有する単量体（a 2 m）の使用量が上記範囲内であると、重合時の重合系の粘度を適正な範囲に保つことが容易になる他、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）と後述する多官能エポキシ化合物（E）との間に適度な量の架橋構造を形成することが可能となる。

[0035] なお、有機酸基を有する単量体単位（a 2）は、前述のように、有機酸基を有する単量体（a 2 m）の重合によって、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）中に導入するのが簡便であり好ましいが、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）生成後に、公知の高分子反応により、有機酸基を導入してもよい。

[0036] また、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）は、有機酸基以外の官能基を有する単量体（a 3 m）から誘導される単量体単位（a 3）を含有していてもよい。

[0037] 上記有機酸基以外の官能基としては、水酸基、アミノ基、アミド基、エポキシ基、メルカプト基などを挙げることができる。

[0038] 水酸基を有する単量体としては、（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸3-ヒドロキシプロピルなどの、（メタ）アクリル酸ヒドロキシアルキルエステルなどを挙げることができる。

[0039] アミノ基を有する単量体としては、（メタ）アクリル酸N，N-ジメチルアミノメチル、（メタ）アクリル酸N，N-ジメチルアミノエチル、アミノ

スチレンなどを挙げるができる。

[0040] アミド基を有する単量体としては、アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド、N-メチロールメタクリルアミド、N,N-ジメチルアクリルアミドなどの α , β -エチレン性不飽和カルボン酸アミド単量体などを挙げるができる。

[0041] エポキシ基を有する単量体としては、(メタ)アクリル酸グリシジル、アリルグリシジルエーテルなどを挙げるができる。

[0042] 有機酸基以外の官能基を有する単量体 (a 3 m) は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0043] これらの有機酸基以外の官能基を有する単量体 (a 3 m) は、それから導かれる単量体単位 (a 3) が、(メタ)アクリル酸エステル重合体 (A 1) 中、10質量%以下となるような量で重合に使用することが好ましい。10質量%以下の単量体 (a 3 m) を使用することにより、重合時の重合系の粘度を適正な範囲に保つことが容易になる。

[0044] (メタ)アクリル酸エステル重合体 (A 1) は、上述したガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を形成する(メタ)アクリル酸エステル単量体単位 (a 1)、有機酸基を有する単量体単位 (a 2)、及び、有機酸基以外の官能基を有する単量体単位 (a 3) 以外に、上述した単量体と共重合可能な単量体 (a 4 m) から誘導される単量体単位 (a 4) を含有してもよい。単量体 (a 4 m) は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0045] 単量体 (a 4 m) から導かれる単量体単位 (a 4) の量は、アクリル酸エステル重合体 (A 1) の10質量%以下が好ましく、より好ましくは、5質量%以下である。

[0046] 単量体 (a 4 m) は、特に限定されないが、その具体例として、上記(メタ)アクリル酸エステル単量体 (a 1 m) 以外の(メタ)アクリル酸エステル単量体、 α , β -エチレン性不飽和多価カルボン酸完全エステル、アルケニル芳香族単量体、共役ジエン系単量体、非共役ジエン系単量体、シアン化

ビニル単量体、カルボン酸不飽和アルコールエステル、オレフィン系単量体などを挙げることができる。

[0047] 上記（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 1 m）以外の（メタ）アクリル酸エステル単量体の具体例としては、アクリル酸メチル（単独重合体のガラス転移温度は、10℃）、メタクリル酸メチル（同105℃）、メタクリル酸エチル（同63℃）、メタクリル酸n-プロピル（同25℃）、メタクリル酸n-ブチル（同20℃）などを挙げることができる。

[0048] α 、 β -エチレン性不飽和多価カルボン酸完全エステルの具体例としては、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、イタコン酸ジメチルなどを挙げることができる。

[0049] アルケニル芳香族単量体の具体例としては、スチレン、 α -メチルスチレン、メチル α -メチルスチレン、ビニルトルエン、及び、ジビニルベンゼンなどを挙げることができる。

[0050] 共役ジエン系単量体の具体例としては、1,3-ブタジエン、2-メチル-1,3-ブタジエン（イソプレンと同義）、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、2-クロロ-1,3-ブタジエン、シクロペンタジエンなどを挙げることができる。

[0051] 非共役ジエン系単量体の具体例としては、1,4-ヘキサジエン、ジシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネンなどを挙げることができる。

[0052] シアン化ビニル単量体の具体例としては、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、 α -クロロアクリロニトリル、 α -エチルアクリロニトリルなどを挙げることができる。

[0053] カルボン酸不飽和アルコールエステル単量体の具体例としては、酢酸ビニルなどを挙げることができる。

[0054] オレフィン系単量体の具体例としては、エチレン、プロピレン、ブテン、ペンテンなどを挙げることができる。

[0055] （メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）の重量平均分子量（Mw）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフ法（GPC法）で測定して、標準ポ

リスチレン換算で10万以上100万以下の範囲にあることが好ましく、20万以上50万以下の範囲にあることが、より好ましい。

[0056] (メタ) アクリル酸エステル重合体 (A1) は、ガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を成形する (メタ) アクリル酸エステル単量体 (a1m)、有機酸基を有する単量体 (a2m)、必要に応じて使用する、有機酸基以外の官能基を含有する単量体 (a3m)、及び、必要に応じて使用するこれらの単量体と共重合可能な単量体 (a4m) を共重合することによって特に好適に得ることができる。

[0057] 重合の方法は、特に限定されず、溶液重合、乳化重合、懸濁重合、塊状重合などのいずれであってもよく、これ以外の方法でもよい。好ましくは、溶液重合であり、中でも重合溶媒として、酢酸エチル、乳酸エチルなどのカルボン酸エステルやベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族溶媒を用いた溶液重合がより好ましい。重合に際して、単量体は、重合反応容器に分割添加してもよいが、全量を一括添加するのが好ましい。重合開始の方法は、特に限定されないが、重合開始剤として熱重合開始剤を用いるのが好ましい。熱重合開始剤は、特に限定されず、過酸化物及びアゾ化合物のいずれでもよい。

[0058] 過酸化物重合開始剤としては、*t*-ブチルヒドロペルオキシドのようなヒドロペルオキシドや、ベンゾイルペルオキシド、シクロヘキサノンペルオキシドのようなペルオキシドの他、過硫酸カリウム、過硫酸ナトリウム、過硫酸アンモニウムなどの過硫酸塩などを挙げることができる。これらの過酸化物は、還元剤と適宜組み合わせ、レドックス系触媒として使用することもできる。

[0059] アゾ化合物重合開始剤としては、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス (2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス (2-メチルブチロニトリル) などを挙げることができる。

[0060] 重合開始剤の使用量は、特に限定されないが、単量体100質量部に対して、0.01質量部以上50質量部以下の範囲であるのが好ましい。

[0061] これらの単量体のその他の重合条件（重合温度、圧力、攪拌条件など）は、特に制限がない。

[0062] 重合反応終了後、必要により、得られた重合体を重合媒体から分離する。分離の方法は特に限定されない。例えば、溶液重合の場合、重合溶液を減圧下に置き、重合溶媒を留去することにより、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）を得ることができる。

[0063] （メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）の重量平均分子量は、重合の際に使用する重合開始剤の量や、連鎖移動剤の量を適宜調整することによって制御することができる。

[0064] （（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1））

（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）は、（メタ）アクリル酸エステル単量体を含有するものであれば特に限定されないが、ガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を成形する（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）を含有するものであることが好ましい。

[0065] ガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を成形する（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）の例としては、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）の合成に用いる（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 1 m）と同様の（メタ）アクリル酸エステル単量体を挙げることができる。（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0066] （メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）における（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）の比率は、好ましくは50質量%以上100質量%以下、より好ましくは75質量%以上100質量%以下である。（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）における（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）の比率を上記範囲とすることによって、感圧接着性や柔軟性に優れた熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を得やすくなる。

[0067] また、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）は、（メタ）アクリル

酸エステル単量体（a 5 m）及びそれと共重合可能な単量体との混合物としてもよい。

[0068] 特に好ましい（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）は、ガラス転移温度が -20°C 以下となる単独重合体を成形する（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）、及び、これらと共重合可能な有機酸基を有する単量体（a 6 m）を含むものである。

[0069] 上記単量体（a 6 m）の例としては、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）の合成に用いる単量体（a 2 m）として例示したものと同様の有機酸基を有する単量体を挙げることができる。単量体（a 6 m）は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0070] （メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）における単量体（a 6 m）の比率は、30質量%以下が好ましく、より好ましくは10質量%以下である。（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）における単量体（a 6 m）の比率を上記範囲とすることによって、感圧接着性や柔軟性に優れた熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を得やすくなる。

[0071] （メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）は、（メタ）アクリル酸エステル単量体（a 5 m）及び所望により共重合させることができる有機酸基を有する単量体（a 6 m）の他に、これらと共重合可能な単量体（a 7 m）との混合物としてもよい。（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）における単量体（a 7 m）の比率は、20質量%以下であることが好ましく、10質量%以下であることがより好ましい。

[0072] 上記単量体（a 7 m）の例としては、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）の合成に用いる単量体（a 3 m）、及び単量体（a 4 m）として例示したものと同様の単量体を挙げることができる。単量体（a 7 m）は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0073] <重合開始剤>

熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体

(G)を得る際に、(メタ)アクリル酸エステル単量体(α 1)及び後述する多官能性単量体(D)は重合する。その重合を促進するため、重合開始剤を用いることが好ましい。

[0074] 本発明に用いることができる重合開始剤としては、光重合開始剤、アゾ系熱重合開始剤、有機過酸化物熱重合開始剤などが挙げられる。得られる熱伝導性感圧接着剤組成物(F)及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)に優れた接着性を付与する等の観点からは、有機過酸化物熱重合開始剤を用いることが好ましい。

[0075] 光重合開始剤としては、公知の各種光重合開始剤を用いることができる。その中でも、アシルホスフィンオキサイド系化合物が好ましい。好ましい光重合開始剤であるアシルホスフィンオキサイド系化合物としては、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)フェニルホスフィンオキサイド、2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイドなどが挙げられる。

[0076] アゾ系熱重合開始剤としては、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)などが挙げられる。

[0077] 有機過酸化物熱重合開始剤としては、t-ブチルヒドロペルオキシドのようなヒドロペルオキシドや、ベンゾイルペルオキシド、シクロヘキサノンペルオキシド、1, 6-ビス(t-ブチルペルオキシカルボニルオキシ)ヘキサン、1, 1-ビス(t-ブチルペルオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサノンのようなペルオキシドなどを挙げることができる。ただし、熱分解時に臭気の原因となる揮発性物質を放出しないものが好ましい。また、有機過酸化物熱重合開始剤の中でも、1分間半減期温度が100℃以上かつ170℃以下のものが好ましい。

[0078] 重合開始剤の使用量は、(メタ)アクリル樹脂組成物(A)100質量部に対し、0.01質量部以上10質量部以下であることが好ましく、0.1質量部以上5質量部以下であることがより好ましく、0.3質量部以上1質

量部以下であることがさらに好ましい。重合開始剤の使用量を上記範囲とすることによって、(メタ)アクリル酸エステル単量体混合物($\alpha 1$)の重合転化率を適正な範囲にし易くなり、熱伝導性感圧接着剤組成物(F)及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)に単量体臭が残ることを防止し易くなる。なお、(メタ)アクリル酸エステル単量体($\alpha 1$)の重合転化率は、95質量%以上であることが好ましい。(メタ)アクリル酸エステル単量体($\alpha 1$)の重合転化率が95質量%以上であれば、熱伝導性感圧接着剤組成物(F)及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)に単量体臭が残ることを防止し易くなる。また、重合開始剤の使用量を上記範囲とすることによって、重合開始剤を添加することにより重合反応の進行を過度に誘発し、その結果、熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)が平滑なシート状にならず、材料破壊を起こす事態を防止し易くなる。

[0079] <多官能性単量体(D)>

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物(F)及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)には、多官能性単量体(D)を用いる。多官能性単量体(D)としては、(メタ)アクリル酸エステル単量体($\alpha 1$)に含まれる単量体と共重合可能なものを用いる。また、多官能性単量体(D)は重合性不飽和結合を複数有しており、該不飽和結合を末端に有することが好ましい。このような多官能性単量体(D)を用いることによって、共重合体に分子内及び／又は分子間架橋を導入して、熱伝導性感圧接着剤組成物(F)及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体(G)の感圧接着剤としての凝集力を高めることができる。

[0080] 多官能性単量体(D)としては、例えば、1,6-ヘキサジオールジ(メタ)アクリレート、1,2-エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、1,12-ドデカンジオールジ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(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、ペンタエリスリトールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)ア

クリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレートなどの多官能性（メタ）アクリレートや、2，4－ビス（トリクロロメチル）－6－p－メトキシスチレン－5－トリアジンなどの置換トリアジンの他、4－アクリルオキシベンゾフェノンのようなモノエチレン系不飽和芳香族ケトンなどを用いることができる。中でも、ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレートが好ましい。多官能性単量体（D）は、一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0081] 熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に用いる多官能性単量体（D）の量は、アクリル樹脂組成物（A）を100質量部として、0.2質量部以上15質量部以下であり、0.5質量部以上5質量部以下であることが好ましく、0.7質量部以上2質量部以下であることがより好ましい。多官能性単量体（D）の使用量を上記範囲とすることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に感圧接着剤としての強度と密着性とを両立し易くなる。

[0082] <熱伝導性フィラー（B1）>

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）には、熱伝導性フィラー（B1）を用いる。熱伝導性フィラー（B1）は、添加することによって熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の熱伝導性を向上させることができるフィラーであり、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。熱伝導性フィラー（B1）のBET比表面積は、 $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $5.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることが好ましく、 $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $3.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることがより好ましい。熱伝導性フィラー（B1）のBET比表面積を上記範囲とすることによって、成形時のゾル粘度向上抑制を維持しつつ

、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に強度と密着性とを両立し易くなる。

[0083] 本発明に用いることができる熱伝導性フィラー（B 1）の具体例としては、水酸化アルミニウム、水酸化ガリウム、水酸化インジウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化ストロンチウム、水酸化バリウム、ホウ酸亜鉛水和物、カオリンクレー、アルミン酸カルシウム水和物、炭酸カルシウム、炭酸アルミニウム、ドーソナイト、酸化アルミニウム（アルミナ。）、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、シリカ等を挙げることができる。この中でも、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム及び酸化アルミニウムが、入手が容易で、化学的にも安定であり、かつ、多量の配合が可能であることから好ましく、酸化アルミニウムが特に好ましい。熱伝導性フィラー（B 1）一種を単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0084] 熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に使用する熱伝導性フィラー（B 1）の量は、（メタ）アクリル樹脂組成物（A）100質量部に対して、90質量部以上1200質量部以下であり、100質量部以上1000質量部以下であることが好ましく、200質量部以上800質量部以下であることがより好ましい。熱伝導性フィラー（B 1）の含有量が上記範囲を超えると、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の素となる混合組成物の粘度が増し、熱伝導性感圧接着剤組成物（E）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（F）を成形し難くなったり、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の硬度が増大して形状追随性が低下したりする虞がある。一方、熱伝導性フィラー（B 1）の含有量が上記範囲未満であると、熱伝導性フィラー（B 1）を用いることによって熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の熱伝導性を向上させる効果が不十分となる虞がある。

[0085] また、本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性

シート状成形体（G）には、後述するBET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B2）（以下、単に「熱伝導性フィラー（B2）」という場合がある。）を併用してもよい。

[0086] <熱伝導性フィラー（B2）>

熱伝導性フィラー（B2）は、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である。熱伝導性フィラー（B2）としては、熱伝導性フィラー（B1）とBET比表面積が異なる以外は、同様のものを使用できるが、特に水酸化アルミニウムが好ましい。熱伝導性フィラー（B2）を熱伝導性フィラー（B1）と併用することによって、混合組成物のゾル粘度向上を抑制しつつ、混合組成物中にフィラーを多量に配合することが可能となる。

[0087] 熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に含有させる熱伝導性フィラー（B2）の量は、（メタ）アクリル樹脂組成物（A）100質量部に対して、200質量部以上800質量部以下であることが好ましく、300質量部以上600質量部以下であることがより好ましい。熱伝導性フィラー（B2）の含有量を上記範囲の上限以下とすることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の素となる混合組成物の粘度が増し、熱伝導性感圧接着剤組成物（E）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（F）を成形し難くなったり、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の硬度が増大して形状追随性が低下したりすることを防止し易くなる。一方、熱伝導性フィラー（B2）の含有量が上記範囲の下限以上とすることによって、熱伝導性フィラー（B2）を用いることによって熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の熱伝導性を向上させる効果を発揮させ易くなる。

[0088] <リン酸エステル（C）>

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）には、リン酸エステル（C）を用いる。リン酸エステル（C）を用いることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感

圧接着性シート状成形体（G）の難燃性を向上させることができる。また、リン酸エステル（C）を多量に使用すると熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を成形することが困難になるが、リン酸エステル（C）及び熱伝導性フィラー（B1）を併用することによって、リン酸エステル（C）の使用量を抑えても熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の難燃性を向上させることができ、成形性も両立し易くなる。

[0089] 本発明に用いるリン酸エステル（C）は、25℃における粘度が3000 mPa・s以上であることが好ましい。リン酸エステル（C）の粘度を上記範囲とすることで、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の成形性が悪くなることを防止し易くなる。なお、本発明においてリン酸エステルの「粘度」とは、以下に説明する方法によって測定した粘度を意味する。

[0090] （リン酸エステルの粘度測定方法）

リン酸エステルの粘度測定には、B型粘度計（東京計器株式会社製）を用いて、以下に示す手順で行う。

（1）常温の環境でリン酸エステルを300ml計量し、500mlの容器に入れる。

（2）攪拌用ロータNo. 1、2、3、4、5、6、7から、いずれかを選択し、粘度計に取り付ける。

（3）リン酸エステルが入った容器を粘度計の上に置き、ロータを該容器内の縮合リン酸エステルに沈める。このとき、ロータの目印となる凹みが丁度、リン酸エステルの液状界面にくるように沈める。

（4）回転数を20、10、4、2の中から選択する。

（5）攪拌スイッチを入れ、1分後の数値を読み取る。

（6）読み取った数値に、係数Aを掛け算した値が粘度[mPa・s]となる。

なお、係数Aは、下記表1に示すように、選択したロータNo. と回転数と

から決まる。

[0091] [表1]

(表1)

No. \ 回転数	20	10	4	2
1	5	10	25	50
2	20	40	100	200
3	50	100	250	500
4	100	200	500	1000
5	200	400	1000	2000
6	500	1000	2500	5000
7	2000	4000	10000	20000

[0092] また、本発明に用いるリン酸エステル（C）は、大気圧下での15℃以上100℃以下の温度領域において常に液体であることが好ましい。リン酸エステル（C）は、混合する際に液体であれば、作業性が良く、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を成形することが容易になる。リン酸エステル（C）を含んだ熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を成形する際、15℃以上100℃以下の環境で、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を構成する各物質を混合することが好ましい。混合時の温度を上記範囲とすることによって、アクリル樹脂組成物（A）のガラス転移温度以上とし、アクリル樹脂組成物（A）に含まれる単量体等の揮発あるいは重合反応が始まってしまうことを防止し易くなるため、環境性及び作業性を良くすることができる。

[0093] 本発明には、リン酸エステル（C）として、縮合リン酸エステルも非縮合リン酸エステルも用いることができる。ここでいう「縮合リン酸エステル」とは、1分子内にリン酸エステル部位が複数存在するものを意味し、「非縮合リン酸エステル」とは、1分子内にリン酸エステル部位が1つだけ存在するものを意味する。これまでに説明した条件を満たすリン酸エステル（C）の具体例を以下に列記する。

[0094] 縮合リン酸エステルの具体例としては、1, 3-フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）、ビスフェノールAビス（ジフェニルホスフェート）、

レゾルシノールビス（ジフェニルホスフェート）などの芳香族縮合リン酸エステル；ポリオキシアルキレンビスジクロロアルキルホスフェートなどの含ハロゲン系縮合リン酸エステル；非芳香族非ハロゲン系縮合リン酸エステル；などが挙げられる。これらの中でも、比重が比較的小さく、有害物質（ハロゲンなど）の放出の危険がなく、入手も容易であることなどから、芳香族縮合リン酸エステルが好ましく、1, 3-フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）、ビスフェノールAビス（ジフェニルホスフェート）がより好ましい。

[0095] 非縮合リン酸エステルの具体例としては、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、クレジルー2, 6-キシレニルホスフェート、2-エチルヘキシルジフェニルホスフェートなどの芳香族リン酸エステル；トリス（ β -クロロプロピル）ホスフェート、トリスジクロロプロピルホスフェート、トリス（トリブロモネオペンチル）ホスフェートなどの含ハロゲン系リン酸エステル；などが挙げられる。この中でも、有害物質（ハロゲンなど）が発生しないことなどから、芳香族リン酸エステルが好ましい。

[0096] リン酸エステル（C）は、一種を単独で用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

[0097] 本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に使用するリン酸エステル（C）の量は、アクリル樹脂組成物（A）を100質量部として、45質量部以上190質量部以下であり、55質量部以上150質量部以下であることが好ましく、70質量部以上120質量部以下であることがより好ましい。リン酸エステル（C）の含有量を上記範囲とすることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）又は熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の難燃性を向上させやすくなる。

[0098] <多官能エポキシ化合物（E）>

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）には、多官能エポキシ化合物（E）を用いる。熱伝導性フィ

ラー（B1）、多官能性単量体（D）、及び多官能エポキシ化合物（E）を併用することによって、薄く成形しても優れた強度及び難燃性を備えさせることができる熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を得ることができる。

[0099] 多官能エポキシ化合物（E）は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）中の有機酸基と反応し、架橋構造を形成し得る。また、同様に、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）が有機酸基を有する単量体を含有している場合、該有機酸基と反応し得るため、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体に、架橋構造を形成し得る。

[0100] 本発明に用いる多官能エポキシ化合物（E）は、官能基を2以上10000以下有しており、官能基の数は、2以上1000以下であることが好ましく、2以上10以下であることがより好ましい。多官能エポキシ化合物（E）の官能基の数が上記範囲であることで、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に強度と密着性とを両立し易くなる。

[0101] 本発明に用いる多官能エポキシ化合物（E）の具体例としては、レゾルシノールジグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、水素化ビスフェノールAジグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールジグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールトリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールテトラグリシジルエーテル、ジグリセロールテトラグリシジルエーテル、ポリグリセロールポリグリシジルエーテル、ソルビトールポリグリシジルエーテルなどが挙げられる。中でも、少量でも効果的に架橋構造ができることから、ペンタエリスリトールテトラグリシジルエーテルが好ましい。多官能エポキシ化合物（E）は、1種を単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。

[0102] 本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート

状成形体（G）に使用する多官能エポキシ化合物（E）の量は、アクリル樹脂組成物（A）を100質量部として、0.05質量部以上15質量部以下であり、0.08質量部以上10質量部以下であることが好ましく、0.1質量部以上5質量部以下であることがより好ましい。多官能エポキシ化合物（E）の使用量を上記範囲とすることによって、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）に強度と密着性とを両立し易くなる。

[0103] <その他の添加剤>

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）には、上述した成分以外にも、上述した成分を添加することによる上記効果を妨げない範囲で公知の各種添加剤を添加することもできる。公知の添加剤としては、発泡剤（発泡助剤を含む。）；比表面積が熱伝導性フィラー（B1）及び熱伝導性フィラー（B2）の範囲には含まれない熱伝導性フィラー；金属の水酸化物、金属塩水和物等の難燃性熱伝導無機化合物；ガラス繊維；膨張化黒鉛粉、PITCH系炭素繊維等の熱伝導性無機化合物；外部架橋剤；カーボンブラック、二酸化チタンなど顔料；クレーなどのその他の充填材；フラーレン、カーボンナノチューブなどのナノ粒子；ポリフェノール系、ハイドロキノン系、ヒンダードアミン系などの酸化防止剤；アクリル系ポリマー粒子、微粒シリカ、酸化マグネシウムなど増粘剤；等を挙げることができる。

[0104] 2. 製造方法

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）は、これまでに説明した材料を混合した後、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行うことにより得ることができる。

[0105] すなわち、本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法は、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）、及び、（メタ）アクリル酸エステ

ル単量体 ($\alpha 1$) を含む (メタ) アクリル樹脂組成物 (A) と、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー (B1) と、リン酸エステル (C) と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体 (D) と、官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物 (E) と、を含む混合組成物を作製する工程、並びに、該混合組成物中において、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 及び多官能性単量体 (D) の重合反応と、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A1) 及び／又は (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程を含んでいる。なお、その他に使用できる物質や、各物質の好ましい含有比率や、各物質の好ましい平均粒径等は上述した通りであり、説明を省略する。

[0106] 本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F) の製造方法において、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) の重合及び架橋反応を行う際には、加熱することが好ましい。当該加熱には、例えば、熱風、電気ヒーター、赤外線などを用いることができる。このときの加熱温度は、重合開始剤が効率良く分解し、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 及び多官能性単量体 (D) の重合が進行する温度が好ましい。温度範囲は、用いる重合開始剤の種類により異なるが、 100°C 以上 200°C 以下が好ましく、 130°C 以上 180°C 以下がより好ましい。

[0107] 本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体 (G) は、これまでに説明した材料を混合してシート状に成形した後、又はシート状に成形しながら、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 及び多官能性単量体 (D) の重合反応と、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A1) 及び／又は (メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行うことにより得ることができる。

[0108] すなわち、本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体 (G) の製造方法は、(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A1)、及び、(メタ) アクリル酸エステル単量体 ($\alpha 1$) を含む (メタ) アクリル樹脂組成物 (A) と、B

E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）と、リン酸エステル（C）と、重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）と、官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）と、を含む混合組成物を作製する工程、並びに、該混合組成物をシート状に成形した後、又は、該混合組成物をシート状に成形しながら、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程を含んでいる。なお、各材料の好ましい含有比率や、好ましい平均粒径等は上述した通りであり、説明を省略する。

[0109] 本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法において、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）及び多官能性単量体（D）の重合反応と、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）及び／又は（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う際には、加熱することが好ましい。当該加熱には、例えば、熱風、電気ヒーター、赤外線などを用いることができる。このときの加熱温度は、重合開始剤が効率良く分解し、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ $\alpha 1$ ）の重合が進行する温度が好ましい。温度範囲は、用いる重合開始剤の種類により異なるが、 100°C 以上 200°C 以下が好ましく、 130°C 以上 180°C 以下がより好ましい。

[0110] 上記混合組成物をシート状に成形する方法は、特に限定されない。好適な方法としては、例えば、混合組成物を、剥離処理したポリエステルフィルムなどの工程紙の上に塗布するキャスト法、混合組成物を、必要ならば二枚の剥離処理した工程紙間に挟んで、ロールの間を通す方法、及び、押出機を用いて、混合組成物を押出す際にダイスを通して厚さを制御する方法などが挙げられる。

[0111] 本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）は、上述したように、従来の熱伝導性感圧接着性シート状成形体より薄く成形することが可能であ

る。具体的には、本発明の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の厚さは0.05mm以上3.0mm以下にすることができる。熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の厚さを薄くすることによって、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の厚み方向の熱抵抗を低くすることができる。かかる観点から、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の厚さの上限は、好ましくは1.0mm、より好ましくは0.5mmである。一方、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の厚さの下限は、好ましくは0.1mmである。熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を0.05mm以上とすることによって、当該熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を発熱体及び放熱体に貼付する際に空気を巻き込むことを防止し易く、結果として熱抵抗の増加を防止し、被着体への貼り付け工程における作業性を良好にし易くなる。

[0112] また、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）は、基材の片面又は両面に成形することもできる。当該基材を構成する材料は特に限定されない。当該基材の具体例としては、アルミニウム、銅、ステンレス鋼、ベリリウム銅などの熱伝導性に優れる金属、及び、合金の箔状物や、熱伝導性シリコンなどのそれ自体熱伝導性に優れるポリマーからなるシート状物や、熱伝導性添加物を含有させた熱伝導性プラスチックフィルムや、各種不織布や、ガラスクロスや、ハニカム構造体などを挙げることができる。プラスチックフィルムとしては、ポリイミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリテトラフルオロエチレン、ポリエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、ポリメチルペンテン、ポリエーテルイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアミドイミド、ポリエステルイミド、芳香族ポリアミドなどの耐熱性ポリマーのフィルムを使用することができる。

[0113] 3. 使用例

本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）は、電子部品の一部として用いることができる。その際、放熱体のような基材上に直接的に成形して、電子部品の一部として提供するこ

ともできる。当該電子部品の具体例としては、エレクトロルミネッセンス（EL）、発光ダイオード（LED）光源を有する機器における発熱部周囲の部品、自動車等のパワーデバイス周囲の部品、燃料電池、太陽電池、バッテリー、携帯電話、携帯情報端末（PDA）、ノートパソコン、液晶、表面伝導型電子放出素子ディスプレイ（SED）、プラズマディスプレイパネル（PDP）、又は集積回路（IC）など発熱部を有する機器や部品を挙げることができる。

[0114] なお、本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の電子機器への使用方法の一例として、LED光源を具体例に下記に記述するような使用方法を挙げることができる。すなわちLED光源に直接貼り付ける；LED光源と放熱材料（ヒートシンク、ファン、ペルチェ素子、ヒートパイプ、グラファイトシートなど）との間に挟みこむ；LED光源に接続された放熱材料（ヒートシンク、ファン、ペルチェ素子、ヒートパイプ、グラファイトシートなど）に貼り付ける；LED光源を取り囲む筐体として使用する；LED光源を取り囲む筐体に貼り付ける；LED光源と筐体との隙間を埋める；などの方法である。LED光源の用途例としては、透過型の液晶パネルを有する表示装置のバックライト装置（テレビ、携帯、PC、ノートPC、PDAなど）；車両用灯具；工業用照明；商業用照明；一般住宅用照明；などが挙げられる。

[0115] また、LED光源以外の具体例としては、以下が挙げられる。すなわち、PDPパネル；IC発熱部；冷陰極管（CCFL）；有機EL光源；無機EL光源；高輝度発光LED光源；高輝度発光有機EL光源；高輝度発光無機EL光源；CPU；MPU；半導体素子；などである。

[0116] 更に本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の使用方法としては、装置の筐体に貼り付けることなどを挙げることができる。例えば、自動車などに使用される装置では、自動車に備えられる筐体の内部に貼り付ける；自動車に備えられる筐体の外側に貼り付ける；自動車に備えられる筐体の内部にある発熱部（カーナビ／燃料電

池／熱交換器）と該筐体とを接続する；自動車に備えられる筐体の内部にある発熱部（カーナビ／燃料電池／熱交換器）に接続した放熱板に貼り付ける；ことなどが挙げられる。

[0117] なお、自動車以外にも、同様の方法で本発明の本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を使用することができる。その対象としては、例えばパソコン；住宅；テレビ；携帯電話機；自動販売機；冷蔵庫；太陽電池；表面伝導型電子放出素子ディスプレイ（SED）；有機ELディスプレイ；無機ELディスプレイ；有機EL照明；無機EL照明；有機ELディスプレイ；ノートパソコン；PDA；燃料電池；半導体装置；炊飯器；洗濯機；洗濯乾燥機；光半導体素子と蛍光体とを組み合わせた光半導体装置；各種パワーデバイス；ゲーム機；キャパシタ；などが挙げられる。

[0118] 更に、本発明の本発明の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）及び熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）は上記の使用方法に留まらず、用途に応じて他の方法で使用することも可能である。例えば、カーペットや温暖マットなどの熱の均一化のために使用する；LED光源／熱源の封止剤として使用する；太陽電池セルの封止剤として使用する；太陽電池のバックシートとして使用する；太陽電池のバックシートと屋根との間に使用する；自動販売機内部の断熱層の内側に使用する；有機EL照明の筐体内部に、乾燥剤や吸湿剤と共に使用する；有機EL照明の筐体内部の熱伝導層及びその上に、乾燥剤や吸湿剤と共に使用する；有機EL照明の筐体内部の熱伝導層、放熱層、及びその上に、乾燥剤や吸湿剤と共に使用する；有機EL照明の筐体内部の熱伝導層、エポキシ系の放熱層、及びその上に、乾燥剤や吸湿剤と共に使用する；人や動物を冷やすための装置、衣類、タオル、シートなどの冷却部材に対し、身体と反対の面に使用する；電子写真複写機、電子写真プリンタなどの画像形成装置に搭載する定着装置の加圧部材に使用する；電子写真複写機、電子写真プリンタなどの画像形成装置に搭載する定着装置の加圧部材そのものとして使用する；制膜装置の処理対象体を載せる熱流制御用伝熱部とし

て使用する；制膜装置の処理対象体を載せる熱流制御用伝熱部に使用する；放射性物質格納容器の外層と内装の間に使用する；太陽光線を吸収するソーラパネルを設置したボックス体の中に使用する；CCFLバックライトの反射シートとアルミシャーシの間に使用する；ことなどを挙げることができる。

実施例

[0119] 以下に、実施例にて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明は実施例に限定されるものではない。なお、ここで用いる「部」や「%」は、特に断らない限り、質量基準である。

[0120] <流動性>

後述する第1及び第2混合工程、又は第1乃至第3混合工程を経て得られた混合組成物の流動性を評価した。具体的には、混合組成物が入れられたホバート容器を水平面に対して30°傾け、1分後の該混合組成物の状態で評価した。その結果を表2及び表3に示した。混合組成物が傾斜に沿って流れた場合を「○」、動かなかった場合を「×」とした。混合組成物に流動性がある方が、該混合組成物をシート化し易くなる。すなわち、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を製造し易くなる。

[0121] <破断強度>

後述するように厚さ0.3mmの熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を作製し、作製時に用いた基材（ポリエチレンテレフタレートフィルム。以下、「離型PETフィルム」という。）から剥離できた熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）について、下記方法で破断強度を測定した。その結果を表2及び表3に示した。なお、離型PETフィルムから剥離する際に、千切れて剥離できなかったものについては、評価不能と記載した。

[0122] 打ち抜き刃（ダンベル1号）を打ち抜き器（Dumb Bell Ltd. 製SDL-100）に装着し、ネジをしっかりと止めた。プラスチック板と打ち抜き板をセットし、打ち抜き器の長手方向が熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）のMD方向になるように熱伝導性感圧接着性シート状成形体

(G) を打ち抜き、試験片を作製した。オートグラフ（島津製作所製、AG I S - 2 0 k N）をセットし、電源を入れて15分待った（ロードセル：1 k N）。試験条件（試験速度：300 mm/min）を選び、厚み計（T O Y O S E I K I 製 デジタル測厚機）で測定した試験片の厚みを入力した。試験片をチャックに挟んで試験を開始し、破断応力を読み取った。

[0123] <難燃性>

後述するように厚さ0.3 mmの熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）を幅10 mm×長さ150 mmの大きさに裁断した試験片を5本用意した。ブンゼンバーナーの空気およびガスの流量を調整して高さ20 mm程度の青色炎をつくり、垂直に支持した試験片の下端にバーナーの炎をあてて（炎と約10 mm交わるように）10秒間保った後、試験片とバーナー炎を離れた。その後、試験片の炎が消えれば直ちにバーナー炎を試験片にあて、更に10秒間保持した後、試験片とバーナー炎を離れた。1回目と2回目の接炎終了後の有炎及び無炎燃焼持続時間や燃焼滴下物（ドリップ）の有無を評価し、UL-94（難燃性規格）の判定を行った。すなわち、1回目と2回目の接炎終了後の有炎燃焼持続時間、2回目の接炎終了後の有炎燃焼持続時間及び無炎燃焼持続時間の合計、5本の試験片の有炎及び無炎燃焼時間の合計、並びに燃焼滴下物（ドリップ）の有無で判定した。1回目、2回目ともに10秒以内に有炎燃焼を終え、2回目の有炎燃焼持続時間と無炎燃焼時間の合計が30秒以内であって、更に5本の試験片の有炎及び無炎燃焼時間の合計が50秒以内であり、燃焼落下物がないものをV-0とした。また、1回目、2回目ともに30秒以内に有炎燃焼を終え、2回目の有炎燃焼持続時間と無炎燃焼時間の合計が60秒以内であって、更に5本の試験片の有炎及び無炎燃焼時間の合計が250秒以内であり、燃焼落下物があつたものをV-2とした。さらに、すべて燃えたものは、規格外とした。その結果を表2及び表3に示した。この評価によってV-0の条件を満たしていれば、難燃性に優れていると言える。なお、作製時に離型PETフィルムから剥離できなかったものについては、評価不能とした。

[0124] (実施例1)

反応器に、アクリル酸2-エチルヘキシル94%とアクリル酸6%とからなる単量体混合物100部、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル0.03部及び酢酸エチル700部を入れて均一に溶解し、窒素置換後、80℃で6時間重合反応を行った。重合転化率は97%であった。得られた重合体を減圧乾燥して酢酸エチルを蒸発させ、粘性のある固体状の(メタ)アクリル酸エステル重合体(A1-1)を得た。(メタ)アクリル酸エステル重合体(A1-1)の重量平均分子量(Mw)は270,000、重量平均分子量(Mw)/数平均分子量(Mn)は3.1であった。重量平均分子量(Mw)及び数平均分子量(Mn)は、テトラヒドロフランを溶離液とするゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、標準ポリスチレン換算で求めた。

[0125] 次に、ペンタエリスリトールトリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート及びペンタエリスリトールジアクリレートを60:35:5の割合で混合した多官能性単量体1.0部と、アクリル酸2-エチルヘキシル(表2及び表3では、「2EHA」と略記している。)88部と、有機過氧化物熱重合開始剤(1,6-ビス(t-ブチルペルオキシカルボニルオキシ)ヘキサン(1分間半減期温度は150℃である。))1.0部と、多官能エポキシ化合物(ナガセケムテックス株式会社製、EX-411、ペンタエリスリトールテトラグリシジルエーテル)1.0部と、を電子天秤で計量し、これらを上記(メタ)アクリル酸エステル重合体(A1-1)13部と混合した。混合には、恒温槽(東機産業株式会社製、商品名「ビスコメイト 150111」)及びホバートミキサー(株式会社小平製作所製、商品名「ACM-5LVT型」、容量:5L)を用いた。ホバート容器の温調は60℃に設定し、回転数目盛を3にして10分間攪拌した。この工程を第1混合工程という。

[0126] 次に、リン酸エステル(味の素ファインテクノ株式会社製、商品名「レオフォス65」、化合物名「リン酸トリアリールイソプロピル化物」)100

部と、水酸化アルミニウム（日本軽金属株式会社製、商品名「BF-083」、平均粒径： $8\mu\text{m}$ 、BET比表面積： $0.8\text{m}^2/\text{g}$ ）500部と、アルミナ（昭和電工株式会社製、商品名「AL-47-H」、平均粒径： $2\mu\text{m}$ 、BET比表面積： $1.1\text{m}^2/\text{g}$ ）500部と、を計量して上記ホバート容器に投入し、ホバート容器の温調を 60°C に設定し、回転数目盛を5にして10分間攪拌した。この工程を第2混合工程という。

[0127] 次に、上記第1及び第2混合工程を経て得た混合組成物を離型PETフィルム上に垂らし、当該混合組成物上にさらに離型PETフィルムを被せた。混合組成物が離型PETフィルムに挟持されたこの積層体を、両者の間隔を 0.3mm にしたロールの間を通し、シート状にした。その後、当該積層体をオーブンに投入し、 150°C で15分間加熱した。この加熱工程によって、（メタ）アクリル酸エステル単量体及び多官能性単量体を重合反応させ、またほぼ同時に、（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1-1）及び（メタ）アクリル酸エステル単量体の重合体を架橋反応させ、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（以下、単に「シート」と表記する。）（G1）を得た。なお、シート（G1）中の残存単量体量から（メタ）アクリル酸エステル単量体の重合転化率を計算したところ、 99.9% であった。

[0128] （実施例2乃至11、及び比較例1乃至8）

各材料の配合を表2及び表3に示すように変更した以外は実施例1と同様にして、シート（G2～11、GC1～8）を得た。なお、実施例11では、第2混合工程において膨張化黒鉛（伊藤黒鉛工業株式会社製、商品名「EC-500」、粒径： $30\mu\text{m}$ ）以外の添加剤を添加し、その後、回転数目盛を3にして、ホバート容器内を -0.1MPaG で真空脱泡しながら、ホバート容器の温調を 60°C に設定して10分間攪拌した。この工程を第3混合工程という。

[0129] 実施例2乃至11、及び比較例1乃至8で使用した、これまでに説明していない添加剤は、下記の通りである。

・リン酸エステル：大八化学工業株式会社製、商品名「CR-741」、2

5℃における粘度：32000 mPa・s（回転数10、ロータNO. 5（表1参照）、数値80）、大気圧下で15～100℃の温度領域において常に液体、化合物名「ビスフェノールAビス（ジフェニルホスフェート）」）

・水酸化アルミニウム：日本軽金属株式会社製、商品名「B-083」、平均粒径：8 μm、BET比表面積：0.8 m²/g

・水酸化アルミニウム：日本軽金属株式会社製、商品名「B-103」、平均粒径：8 μm、BET比表面積：3 m²/g

・水酸化アルミニウム：ナルバック社製、商品名「APYRAL 120E」、平均粒径：0.8 μm、BET比表面積：11 m²/g

・アルミナ：昭和電工株式会社製、球状アルミナ、商品名「AS-10」、平均粒径：40 μm、BET比表面積：0.6 m²/g

[0130]

[表2]

	実施例1 G1	実施例2 G2	実施例3 G3	実施例4 G4	実施例5 G5	実施例6 G6	実施例7 G7	実施例8 G8	実施例9 G9	実施例10 G10	実施例11 G11
(メタ) アクリル酸 エステル重合体樹脂 2EHA	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	13 88	30 70
有機過酸化熱重合開始剤	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	0.80
多官能性単量体	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	0.3	1.0	10.0	1.0	1.0
多官能エポキシ化合物	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	0.1	1.0	10.0	1.0	1.0	1.0
リン酸エステル (レオフォス65)	100	100	100	50	180	100	100	100	100	100	50
リン酸エステル (CR-741)											50
水酸化アルミニウム (BF-083)	500	500	500	500	500	500	500	500	500	500	400
水酸化アルミニウム (B-103)										500	
水酸化アルミニウム (APYRAL 120E)											
アルミナ (AL-47-H)	500	100	1000	500	500	500	500	500	500		200
アルミナ (AS-10)											450
膨張化黒鉛粉											5
流動性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
破断強度 [MPa]	0.23	0.21	0.35	0.25	0.18	0.15	0.16	0.68	0.51	0.19	0.22
難燃性	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当	V-0相当

(表2)

[0131] [表3]

(表3)

	比較例1 GC1	比較例2 GC2	比較例3 GC3	比較例4 GC4	比較例5 GC5	比較例6 GC6	比較例7 GC7	比較例8 GC8
(メタ) アクリル酸 エステル重合体樹脂 2EHA	13	13	13	13	13	13	13	13
	88	88	88	88	88	88	88	88
有機過酸化物熱重合開始剤	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
多官能性単量体	2.0		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
多官能エポキシ化合物		2.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
リン酸エステル (レオフォス65)	100	100	100	100	100	40	200	100
水酸化アルミニウム (BF-083)	500	500	500	500	500	500	500	500
水酸化アルミニウム (B-103)								
水酸化アルミニウム (APYRAL 120E)								500
アルミナ (AL-47-H)	500	500		80	1300	500	500	
アルミナ (AS-10)			500					
流動性	○	○	○	○	×	○	○	×
破断強度 [MPa]	評価不能	評価不能	評価不能	評価不能	評価不能	0.20	評価不能	評価不能
難燃性	評価不能	評価不能	評価不能	評価不能	評価不能	規格外	評価不能	評価不能

[0132] 表2に示すように、実施例にかかるシート(G1)～(G11)は、いずれもシート化する前の混合組成物の流動性が良く、シート化後、該シートは引張強度が高く、難燃性も優れていた。一方、表3に示すように、比較例にかかるシート(GC1)～(GC8)は上記性能のいずれかが劣っていた。具体的には、以下の通りであった。

・比較例 1：多官能エポキシ化合物を含まない比較例 1 のシート（G C 1）は、離型 P E T フィルムから剥離する際に破損しており、製品として使用できないものであった。（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1－1）と（メタ）アクリル酸エステル単量体の重合体との架橋が不十分であったと推定される。

・比較例 2：多官能性単量体を含まない比較例 2 のシート（G C 2）は、離型 P E T フィルムから剥離する際に破損しており、製品として使用できないものであった。（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1－1）と（メタ）アクリル酸エステル単量体の重合体との架橋が不十分であると推定される。

・比較例 3：本発明で規定する範囲の B E T 比表面積を有するフィラーを使用しなかった比較例 3 のシート（G C 3）は、硬度が高く、離型 P E T フィルムから剥離する際に破損しており、製品として使用できないものであった。

・比較例 4：本発明で規定する範囲の B E T 比表面積を有するフィラーの含有量が、本発明で規定する範囲より少なかった比較例 4 のシート（G C 4）は、離型 P E T フィルムを剥離する際に破損しており、製品として使用できないものであった。

・比較例 5：発明で規定する範囲の B E T 比表面積を有するフィラーの含有量が、本発明で規定する範囲より多かった比較例 5 のシート（G C 5）は、シート化する前の混合組成物に流動性がなく、シート化できなかった。

・比較例 6：リン酸エステルの含有量が本発明で規定する範囲より少なかった比較例 6 のシート（G C 6）は、難燃性の試験において、溶け落ちてしまった。

・比較例 7：リン酸エステルの含有量が本発明で規定する範囲より多かった比較例 7 のシート（G C 7）は、シート化することができなかった。

・比較例 8：B E T 比表面積が本発明で規定する範囲より大きいフィラーを用いた比較例 8 のシート（G C 8）は、シート化する前の混合組成物に流動性がなく、シート化できなかった。

請求の範囲

- [請求項1] (メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1)、及び、(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) を含む(メタ) アクリル樹脂組成物 (A) を100質量部と、
- BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー (B 1) を90質量部以上1200質量部以下と、
- リン酸エステル (C) を45質量部以上190質量部以下と、
- 重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体 (D) を0.2質量部以上15質量部以下と、
- 官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物 (E) を0.05質量部以上15質量部以下と、
- を含む混合組成物中において、前記(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) 及び前記多官能性単量体 (D) の重合反応と、前記(メタ) アクリル酸エステル重合体 (A 1) 及び/又は前記(メタ) アクリル酸エステル単量体 (α 1) 由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われてなる、熱伝導性感圧接着剤組成物 (F)。
- [請求項2] BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である前記熱伝導性フィラー (B 1) が、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムである、請求項1に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F)。
- [請求項3] 前記混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー (B 2) を200質量部以上800質量部以下含む、請求項1又は2に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F)。
- [請求項4] BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である前記熱伝導性フィラー (B 2) が、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムである、請求項3に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物 (F)。
- [請求項5] 前記(メタ) アクリル樹脂組成物 (A) が有機酸基を有する単量体単位又は有機酸基を有する単量体を含む、請求項1又は2に記載の熱

伝導性感圧接着剤組成物（F）。

[請求項6]

（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を100質量部と、

BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B1）を90質量部以上1200質量部以下と、

リン酸エステル（C）を45質量部以上190質量部以下と、

重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を0.2質量部以上15質量部以下と、

官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）を0.05質量部以上15質量部以下と、

を含む混合物組成物をシート状に成形した後、又は前記混合組成物をシート状に成形しながら、前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び前記多官能性単量体（D）の重合反応と、前記（メタ）アクリル酸エステル重合体（A1）及び／又は前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とが少なくとも行われてなる、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）。

[請求項7]

BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である前記熱伝導性フィラー（B1）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムである、請求項6に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）。

[請求項8]

前記混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B2）を200質量部以上800質量部以下含む、請求項6又は7に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）。

[請求項9]

BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満である前記熱伝導性フィラー（B2）が、BET比表面積が $1.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニ

ウムである、請求項 8 に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）。

[請求項10] 前記（メタ）アクリル樹脂組成物（A）が有機酸基を有する単量体単位又は有機酸基を有する単量体を含む、請求項 6 又は 7 に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）。

[請求項11] （メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を 100 質量部と、

BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B 1）を 90 質量部以上 1200 質量部以下と、

リン酸エステル（C）を 45 質量部以上 190 質量部以下と、

重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を 0.2 質量部以上 15 質量部以下と、

官能基を 2 以上 10000 以下有する多官能エポキシ化合物（E）を 0.05 質量部以上 15 質量部以下と、

を含む混合組成物を作製する工程、並びに、

前記混合組成物中において、前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び前記多官能性単量体（D）の重合反応と、前記（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）及び／又は前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程、

を含む、熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法。

[請求項12] BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である前記熱伝導性フィラー（B 1）が、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムである、請求項 11 に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法。

[請求項13] 前記混合組成物が、さらに、BET 比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B 2）を 200 質量部以上 800 質量部以

下含む、請求項 1 1 又は 1 2 に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法。

[請求項14] B E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である前記熱伝導性フィラー（B 2）が、B E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムである、請求項 1 3 に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）の製造方法。

[請求項15] （メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）、及び、（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）を含む（メタ）アクリル樹脂組成物（A）を100質量部と、

 B E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である熱伝導性フィラー（B 1）を90質量部以上1200質量部以下と、

 リン酸エステル（C）を45質量部以上190質量部以下と、

 重合性不飽和結合を複数有する多官能性単量体（D）を0.2質量部以上15質量部以下と、

 官能基を2以上10000以下有する多官能エポキシ化合物（E）を0.05質量部以上15質量部以下と、

 を含む混合組成物を作製する工程、並びに、

 前記混合組成物をシート状に成形した後、又は、前記混合組成物をシート状に成形しながら、前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）及び前記多官能性単量体（D）の重合反応と、前記（メタ）アクリル酸エステル重合体（A 1）及び／又は前記（メタ）アクリル酸エステル単量体（ α 1）由来の構造単位を含む重合体の架橋反応とを少なくとも行う工程、

 を含む、熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法。

[請求項16] B E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下である前記熱伝導性フィラー（B 1）が、B E T比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下の酸化アルミニウムである、請求項 1 5 に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法。

- [請求項17] 前記混合組成物が、さらに、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である熱伝導性フィラー（B2）を200質量部以上800質量部以下含む、請求項15又は16に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法。
- [請求項18] BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満である前記熱伝導性フィラー（B2）が、BET比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ 未満の水酸化アルミニウムである、請求項17に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）の製造方法。
- [請求項19] 放熱体及び該放熱体に貼合された請求項1～5のいずれか1項に記載の熱伝導性感圧接着剤組成物（F）、又は、放熱体及び該放熱体に貼合された請求項6～10のいずれか1項に記載の熱伝導性感圧接着性シート状成形体（G）、を備えた電子部品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/054289

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J4/02(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i, C09J9/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J133/06(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i

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)

C09J4/02, C09J7/00, C09J9/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J133/06, C09J163/00, H01L23/373

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2007/116686 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 18 October 2007 (18.10.2007), entire text; particularly, paragraphs [0109], [0115] & KR 10-2008-0113427 A & CN 101454419 A	1, 3-6, 8-11, 13-15, 17-19
Y	WO 2009/157315 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 30 December 2009 (30.12.2009), entire text; particularly, paragraphs [0094] to [0101], [0153] (Family: none)	1-19
Y	WO 2004/104129 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 02 December 2004 (02.12.2004), entire text; particularly, page 11, lines 6 to 25 & KR 10-2006-0013641 A	1-19



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
19 April, 2012 (19.04.12)

Date of mailing of the international search report
01 May, 2012 (01.05.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/054289

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-179475 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 07 July 2005 (07.07.2005), paragraph [0041] & US 2007/0169885 A1 & WO 2005/059053 A1 & KR 10-2006-0127049 A & CN 1894355 A	1-19
Y	WO 2010/037676 A1 (TESA SE), 08 April 2010 (08.04.2010), entire text; particularly, page 26, TABELLE 1 & US 2011/0193010 A1 & EP 2281022 A & DE 102008049850 A & MX 2010013299 A & CN 102057007 A & KR 10-2011-0059818 A	1-3, 5-8, 10-13, 15-17, 19
A	JP 9-302313 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 25 November 1997 (25.11.1997), entire text (Family: none)	1-19
A	JP 6-240229 A (Nitto Denko Corp.), 30 August 1994 (30.08.1994), paragraph [0008] (Family: none)	1-19
A	JP 2007-524713 A (3M Innovative Properties Co.), 30 August 2007 (30.08.2007), entire text; particularly, paragraph [0102] & US 2006/0099338 A1 & EP 1433829 A1 & EP 1587892 A & WO 2004/061036 A1 & KR 10-2005-0086938 A & CN 1751107 A & AU 2003299586 A	1-19
A	JP 2005-105028 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 21 April 2005 (21.04.2005), entire text (Family: none)	1-19

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09J4/02(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i, C09J9/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i,
C09J11/06(2006.01)i, C09J133/06(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i

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 (I P C))

Int.Cl. C09J4/02, C09J7/00, C09J9/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J133/06, C09J163/00, H01L23/373

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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
Y	WO 2007/116686 A1 (日本ゼオン株式会社) 2007. 10. 18, 全文、特に、 [0109]、[0115] & KR 10-2008-0113427 A & CN 101454419 A	1, 3-6, 8-11 , 13-15, 17-19
Y	WO 2009/157315 A1 (日本ゼオン株式会社) 2009. 12. 30, 全文、特に、 [0094] - [0101]、[0153] (ファミリーなし)	1-19
Y	WO 2004/104129 A1 (日本ゼオン株式会社) 2004. 12. 02, 全文、特に、 第 11 頁第 6 - 25 行 & KR 10-2006-0013641 A	1-19

☒ 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矛盾するものではなく、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

1 9 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

0 1 . 0 5 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小出 輝

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 0

4 Z

3 6 4 3

C (続き) . 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
Y	JP 2005-179475 A (日本ゼオン株式会社) 2005.07.07, 段落【0041】 & US 2007/0169885 A1 & WO 2005/059053 A1 & KR 10-2006-0127049 A & CN 1894355 A	1-19
Y	WO 2010/037676 A1 (TESA SE) 2010.04.08, 全文、特に、第26頁 TABELLE 1 & US 2011/0193010 A1 & EP 2281022 A & DE 102008049850 A & MX 2010013299 A & CN 102057007 A & KR 10-2011-0059818 A	1-3, 5-8, 10-13, 15-17, 19
A	JP 9-302313 A (日立化成工業株式会社) 1997.11.25, 全文 (ファミ リーなし)	1-19
A	JP 6-240229 A (日東電工株式会社) 1994.08.30, 段落【0008】 (フ ァミリーなし)	1-19
A	JP 2007-524713 A (スリーエム イノベイティブ プロパティズ カ ンパニー) 2007.08.30, 全文、特に、段落【0102】 & US 2006/0099338 A1 & EP 1433829 A1 & EP 1587892 A & WO 2004/061036 A1 & KR 10-2005-0086938 A & CN 1751107 A & AU 2003299586 A	1-19
A	JP 2005-105028 A (日本ゼオン株式会社) 2005.04.21, 全文 (ファ ミリーなし)	1-19