

(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
2016 年 10 月 27 日(27.10.2016)

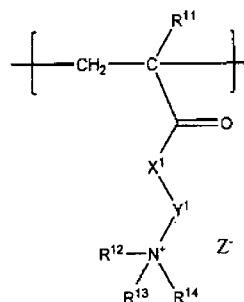


(10) 国際公開番号
WO 2016/170760 A1

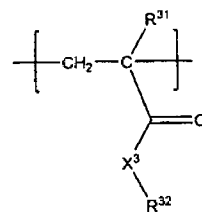
- (51) 国際特許分類:
B01F 17/52 (2006.01) C08F 8/44 (2006.01)
B01F 17/18 (2006.01) C08F 290/12 (2006.01)
B01F 17/42 (2006.01) C08F 297/02 (2006.01)
C01B 21/064 (2006.01) C08K 3/34 (2006.01)
C01B 31/36 (2006.01) C08K 3/38 (2006.01)
C04B 35/622 (2006.01) C08L 53/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/002038
- (22) 国際出願日: 2016 年 4 月 15 日(15.04.2016)
- (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 2015-086675 2015 年 4 月 21 日(21.04.2015) JP
特願 2015-217370 2015 年 11 月 5 日(05.11.2015) JP
- (71) 出願人: 日本曹達株式会社(NIPPON SODA CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008165 東京都千代田区大手町 2 丁目 2 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 新谷 武士(NIITANI, Takeshi); 〒2900045 千葉県市原市五井南海岸 1 2 - 5 4 日本曹達株式会社 千葉研究所内 Chiba (JP). 岡戸 俊明(OKADO, Toshiaki); 〒2900045 千葉県市原市五井南海岸 1 2 - 5 4 日本曹達株式会社 千葉研究所内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 廣田 雅紀(HIROTA, Masanori); 〒1070052 東京都港区赤坂二丁目 2 番 1 9 号アドレシビル 6 階 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: CERAMIC FINE PARTICLE DISPERSANT, CERAMIC FINE PARTICLE DISPERSED COMPOSITION, AND CERAMIC FINE PARTICLE DISPERSED SHEET

(54) 発明の名称: セラミックス微粒子分散剤、セラミックス微粒子分散組成物、およびセラミックス微粒子分散シート



[I]



[III]

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a novel ceramic fine particle dispersant which is capable of dispersing fine particles of a ceramic such as silicon carbide or boron nitride in a dispersion medium such as an organic solvent. A ceramic fine particle dispersant according to the present invention contains a block copolymer described below. A block polymer which comprises a block chain (A) having a repeating unit represented by formula (I) (wherein R¹¹ represents a hydrogen atom or an alkyl group; X¹ represents -NH- or -O-; Y¹ represents a divalent linking group; each of R¹²-R¹⁴ independently represents an alkyl group, an arylalkyl group or a heteroarylalkyl group; and Z⁻ represents a counter anion) and a block chain (B) having a repeating unit represented by formula (III) (wherein R³¹ represents a hydrogen atom or an alkyl group; X³ represents -NH- or -O-; and R³² represents an alkyl group, an arylalkyl group or a heteroarylalkyl group), provided that the block polymer does not contain an acidic group.

(57) 要約: 本発明の目的は、炭化ケイ素や窒化ホウ素などのセラミックス微粒子を、有機溶媒などの分散媒に分散することができる新規のセラミックス微粒子分散剤を提供することである。本発明のセラミックス微粒子分散剤は、以下のブロックコポリマーを含有する。式 [I] (R

[続葉有]



WO 2016/170760 A1



¹¹は、水素原子またはアルキル基を示し、X¹は、-NH-または-O-を示し、Y¹は、二価の連結基を示し、R¹²~R¹⁴は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示し、Z⁻はカウンターアニオンを示す。)で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔III〕(R³¹は、水素原子またはアルキル基を示し、X³は、-NH-または-O-を示し、R³²は、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示す。)で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(B)を含むブロックポリマー(ただし、酸性基を含まない)

明 細 書

発明の名称：

セラミックス微粒子分散剤、セラミックス微粒子分散組成物、およびセラミックス微粒子分散シート

技術分野

[0001] 本発明は、新規のセラミックス微粒子分散剤、セラミックス微粒子分散組成物、およびセラミックス微粒子分散シートに関する。

本願は、2015年4月21日に出願された日本国特許出願第2015-086675号、2015年11月5日に出願された日本国特許出願第2015-217370号に対し優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

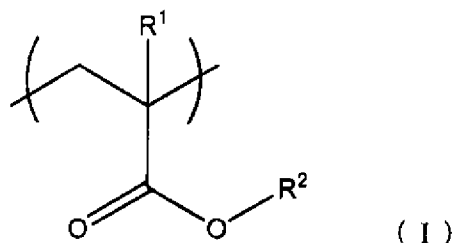
[0002] 様々な分野において、微粒子化した物質を樹脂や溶媒に均一に分散させた材料が求められている。物質を微粒子化すると、一般に凝集体を形成するため、微粒子を樹脂や溶媒に分散させる際には、何らかの方法で凝集体を解砕する必要がある。凝集体を解砕する方法としては、機械的分散や界面化学的方法などがある。界面化学的方法の一つとして、高分子分散剤を用いる方法が知られている。

[0003] 従来から、様々な高分子分散剤が提案されている。例えば、特許文献1では、3級アミノ基を有する繰り返し単位及び4級アンモニウム塩基を有する繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種の繰り返し単位を含む重合体からなるブロック鎖（A）と、ポリオキシアルキレン鎖を有する繰り返し単位及び酸性基を有する繰り返し単位を含む共重合体からなるブロック鎖（B）とを含有する共重合体が提案されている。当該共重合体は、塗料、印刷インク、インクジェットインク、カラーフィルタ用顔料分散物等における顔料分散に有用であると記載されている。

[0004] 特許文献2では、3級アミノ基を有する繰り返し単位及び4級アンモニウム塩基を有する繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種の繰り返し

返し単位を含むブロック鎖（A）と、酸性基を有する繰り返し単位及び下記式（I）

[化1]

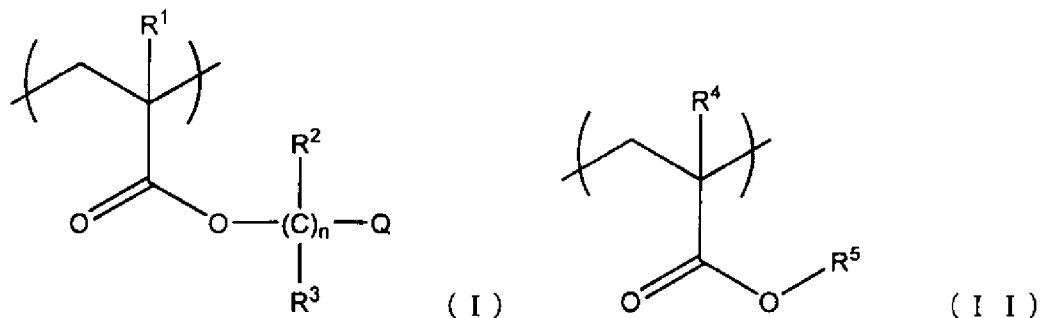


（式中、 R^1 は、水素原子又はC 1～C 3 アルキル基を表し、 R^2 は、脂肪族炭化水素基又は脂環式炭化水素基を表す。）で表される繰り返し単位を含むブロック鎖（B）とを含有し、式（I）で表される繰り返し単位の共重合割合がブロック鎖（B）中90質量%以上である共重合体が提案されている。当該共重合体は、塗料、印刷インク、インクジェットインク、カラーフィルタ用顔料分散物等における顔料分散に有用であると記載されている。

[0005] 特許文献3では、3級アミノ基を有する繰り返し単位及び4級アンモニウム塩基を有する繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種の繰り返し単位を含むブロック鎖（A）と、下記式（I）（式中、 R^1 は、水素原子等を表し、 R^2 及び R^3 は、それぞれ独立に、水素原子等を表し、Qは、置換基としてアルキル基を有していてもよい含酸素飽和ヘテロ環基等を表し、 n は、0～6のいずれかの整数を表す。）で表される繰り返し単位と、下記式（II）（式中、 R^4 は、水素原子等を表し、 R^5 は、飽和脂肪族炭化水素基等を表す。）で表される繰り返し単位を含むブロック鎖（B）を含有し、上記式（II）で表される繰り返し単位の共重合割合が、上記式（I）で表される繰り返し単位を除くブロック鎖（B）中90重量%以上である共重合体が提案されている。当該共重合体は、塗料、印刷インク、インクジェット用インク、カラーフィルター用顔料分散物等における各種の有機顔料の分散を始め、金属酸化物、金属水酸化物、金属炭酸塩、金属硫酸塩、金属ケイ酸塩、金属窒化物等の無機粒子の分散やカーボンナノチューブの分散に有用であ

ると記載されている。

[化2]



[0006] 特許文献4では、3級アミノ基を有する繰り返し単位及び4級アンモニウム塩構造を有する繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種の繰り返し単位を含む重合体ブロック（a）と、架橋性官能基を有する繰り返し単位及び光による酸化で生成するラジカルを捕捉する機能を有する構造を有する繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種の繰り返し単位を含む重合体ブロック（b）とを含有するブロック共重合体からなる無機粒子用分散剤が提案されている。

[0007] 近年、電子機器類の小型化や高性能化に伴って、電子工業に用いられる部材に対しても小型化や高性能化が求められている。前記部材の製造工程において、微粒子化したセラミックス粒子を水や各種溶媒に分散させる必要がある。しかし、セラミックス粒子の粒子径が小さくなればなるほど、分散が困難になってきている。セラミックス微粒子のなかでも、特に、窒化ホウ素微粒子や炭化ケイ素微粒子は分散が困難である。特許文献5では、ローター・ステーター式ホモジナイザーを用いて、炭化ケイ素などの微粒子を分散する機械的分散方法が提案されている。しかし、窒化ホウ素微粒子や炭化ケイ素微粒子を良好に分散することができる高分子分散剤は、知られていなかった。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：WO 2011 / 129078

特許文献2：WO 2012 / 001945

特許文献3：WO 2012 / 063435

特許文献4：WO 2014 / 109308

特許文献5：WO 2014 / 132445

発明の概要

発明が解決しようとする課題

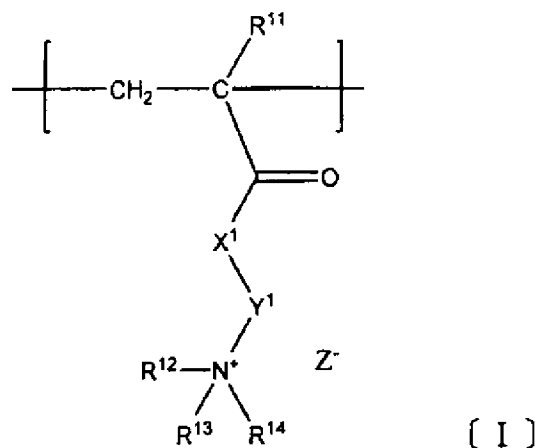
[0009] 本発明の目的は、炭化ケイ素や窒化ホウ素などのセラミックス微粒子を、有機溶媒などの分散媒に分散することができる新規のセラミックス微粒子分散剤を提供することである。また、本発明の目的は、前記のセラミックス微粒子分散剤とセラミックス微粒子と分散媒を含有する組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 上記目的を達成するために検討を重ねた結果、以下の態様を包含する本発明を完成するに至った。

[0011] (1) 式〔I〕

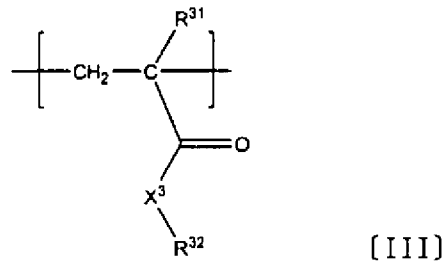
[化3]



(式〔I〕中、R¹¹は、水素原子またはアルキル基を示し、X¹は、—NH—または—O—を示し、Y¹は、二価の連結基を示し、R¹²～R¹⁴は、それぞれ

独立に、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示し、Z⁻はカウンターアニオンを示す。)で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔III〕

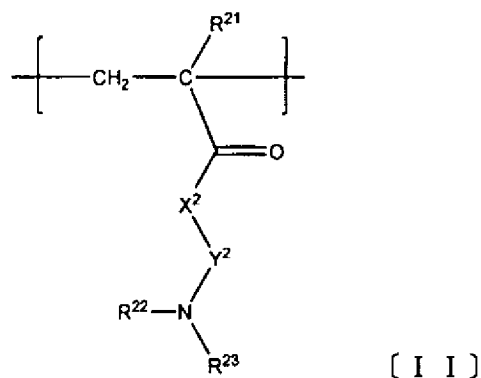
[化4]



(式〔III〕中、R³¹は、水素原子またはアルキル基を示し、X³は、—NH—または—O—を示し、R³²は、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示す。)で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(B)を含むブロックポリマー(ただし、酸性基を含まない)を含有するセラミックス微粒子分散剤。

(2) ブロック鎖(A)が、さらに、式〔II〕

[化5]

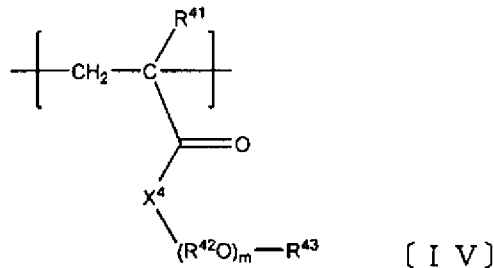


(式〔II〕中、R²¹は、水素原子またはアルキル基を示し、X²は、—NH—または—O—を示し、Y²は、二価の連結基を示し、R²²、R²³は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル

基を示す。)で表される繰り返し単位を含む(1)に記載のセラミックス微粒子分散剤。

(3) ブロック鎖(B)が、さらに、式[IV]

[化6]



(式[IV]中、 R^{41} は、水素原子またはアルキル基を示し、 X^4 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 R^{42} は、アルキレン基を示し、 m は、1~100のいずれかの整数を示し、 R^{43} は、水素原子またはアルキル基を示す。)で表される繰り返し単位を含む(1)に記載のセラミックス微粒子分散剤。

(4) セラミックス微粒子が窒化ホウ素微粒子または炭化ケイ素微粒子である(1)~(3)のいずれか1項に記載のセラミックス微粒子分散剤。

(5) (1)~(4)のいずれか1項に記載のセラミックス微粒子分散剤と、分散媒と、セラミックス微粒子とを含有する組成物。

(6) 分散媒が、熱可塑性樹脂である(5)に記載の組成物。

(7) さらに、加硫剤を含む(5)に記載の組成物、及び

(8) (7)に記載の組成物を加熱成形してなるシート。

発明の効果

[0012] 本発明のセラミックス微粒子分散剤は、炭化ケイ素や窒化ホウ素などのセラミックス微粒子を分散媒に分散することができる。

発明を実施するための形態

[0013] (セラミックス微粒子分散剤)

本発明のセラミックス微粒子分散剤は、以下で説明するブロック鎖(A)およびブロック鎖(B)を、それぞれ少なくとも1個含有するブロックポリ

マーからなるものである。

また、本発明のブロックポリマーは、 $-\text{COOH}$ 基、 $-\text{SO}_3\text{H}$ 基、 $-\text{PO}(\text{OH})_2$ 基などの酸性基を有しない。

[0014] 本発明におけるブロックポリマーは、数平均分子量 (M_n) が、好ましくは 2,000～200,000、より好ましくは 2,000～50,000、さらに好ましくは 3,000～20,000 である。また、本発明に係るブロックポリマーの分子量分布は、重量平均分子量／数平均分子量 (M_w/M_n) の比で、好ましくは 1.0～2.5、より好ましくは 1.0～2.0 である。

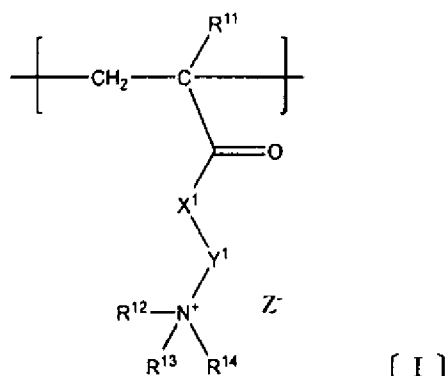
なお、重量平均分子量および数平均分子量は N, N-ジメチルホルムアミドを溶媒とするゲルパーミエーションクロマトグラフィ (GPC) にて測定したデータを標準ポリメタクリル酸メチルの分子量に基づいて換算した値である。

[0015] 本発明のブロックポリマーは、ブロック鎖 (A) およびブロック鎖 (B) 以外に他のブロック鎖を含有していてもよいが、本発明のブロックポリマー中のブロック鎖 (A) 及び (B) の総含有量は、通常、1～100 重量%、好ましくは 10～100 重量%、特に好ましくは、100 重量%である。ブロック鎖 (A) とブロック鎖 (B) との重量比は、特に制限はないが、好ましくは 5/95～95/5 である。

[0016] (ブロック鎖 (A))

ブロック鎖 (A) は、式 [1] で表される繰り返し単位を有するものである。

[化7]



[0017] 式〔I〕中、 R^{11} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{11} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

[0018] 式〔I〕中、 X^1 は、 $-NH-$ または $-O-$ を表す。

[0019] 式〔I〕中、 Y^1 は、二価の連結基を表す。

Y^1 における二価の連結基としては、アルキレン基、アルキレン- O -アルキレン基などを挙げることができる。

アルキレン基としては、メチレン、エチレン、プロパン-1, 3-ジイル、プロパン-1, 2-ジイル、ブタン-1, 4-ジイル、ブタン-2, 3-ジイル、ペンタン-1, 5-ジイル、ペンタン-1, 4-ジイル、2-メチルブタン-1, 4-ジイル、ヘキサン-1, 6-ジイル、オクタン-1, 8-ジイル、デカン-1, 10-ジイルなどの炭素数1～10の基が挙げられる。

アルキレン- O -アルキレン基とは、アルキレン基とアルキレン基が $-O-$ 結合を介して結合している基を意味する。アルキレン- O -アルキレン基としては、エチレン- O -エチレン基、エチレン- O -トリメチレン基などの炭素数2～10の基を挙げることができる。

[0020] $R^{12} \sim R^{14}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基、またはヘテロアリールアルキル基を表す。

$R^{12} \sim R^{14}$ におけるアルキル基としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

$R^{12} \sim R^{14}$ におけるアリールアルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基、3-フェニルプロピル基などの炭素数6～10のアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

$R^{12} \sim R^{14}$ におけるヘテロアリールアルキル基としては、ピリジン-2-イルメチル基、ピリジン-3-イルメチル基、ピリジン-4-イルメチル基などの、ヘテロ原子としてN、O又はSを少なくとも1個有し、員数が5～10のヘテロアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

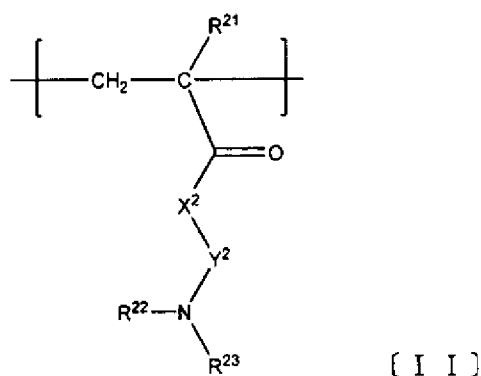
[0021] Z^- は、カウンターアニオンを表す。

カウンターアニオンとしては、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 ClO_4^- 、 BF_4^- 、 CH_3COO^- 、 PF_6^- などが挙げられる。

[0022] ブロック鎖(A)に含まれる式〔I〕で表される繰返し単位の割合は、ブロック鎖(A)の総重量に対して、好ましくは10～100重量%であり、より好ましくは50～100重量%である。ブロック鎖(A)に含まれる式〔I〕で表される繰返し単位の割合が10重量%より小さいと、分散性能が低下する傾向がある。

[0023] 前記式〔I〕で表される繰返し単位以外の繰返し単位としては、次式〔II〕で表される繰返し単位を挙げることができる。

[化8]



[0024] 式 [I I] 中、 R^{21} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{21} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

[0025] 式 [I I] 中、 X^2 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を表す。

[0026] 式 [I I] 中、 Y^2 は、二価の連結基を表す。

Y^2 における二価の連結基としては、アルキレン基、アルキレン- O -アルキレン基などを挙げることができる。

アルキレン基としては、メチレン、エチレン、プロパン-1, 3-ジイル、プロパン-1, 2-ジイル、ブタン-1, 4-ジイル、ブタン-2, 3-ジイル、ペンタン-1, 5-ジイル、ペンタン-1, 4-ジイル、2-メチルブタン-1, 4-ジイル、ヘキサン-1, 6-ジイル、オクタン-1, 8-ジイル、デカン-1, 10-ジイルなどの炭素数1～10の基が挙げられる。

アルキレン- O -アルキレン基とは、アルキレン基とアルキレン基が $-\text{O}-$ を介して結合している基を意味する。アルキレン- O -アルキレン基としては、エチレン- O -エチレン基、エチレン- O -トリメチレン基などの炭素数2～10の基を挙げることができる。

[0027] R^{22} 、 R^{23} は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基、また

はヘテロアリールアルキル基を表す。

R^{22} 、 R^{23} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 s -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 n -ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

R^{22} 、 R^{23} におけるアリールアルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基、3-フェニルプロピル基などの炭素数6～10のアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

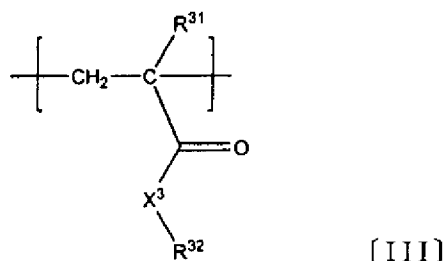
R^{22} 、 R^{23} におけるヘテロアリールアルキル基としては、ピリジン-2-イルメチル基、ピリジン-3-イルメチル基、ピリジン-4-イルメチル基などの、ヘテロ原子としてN、O又はSを少なくとも1個有し、員数が5～10のヘテロアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

[0028] (ブロック鎖(B))

ブロック鎖(B)は、式〔III〕で表される繰り返し単位を有するものである。

ブロック鎖(B)に含まれる式〔III〕で表される繰り返し単位の割合は、ブロック鎖(B)の総重量に対して、好ましくは0.1～100重量%であり、より好ましくは10～100重量%である。

[化9]



[0029] 式〔III〕中、 R^{31} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{31} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 s -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチ

ル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

[0030] 式〔III〕中、 X^3 は、 $-NH-$ または $-O-$ を表す。

[0031] 式〔III〕中、 R^{32} は、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を表す。

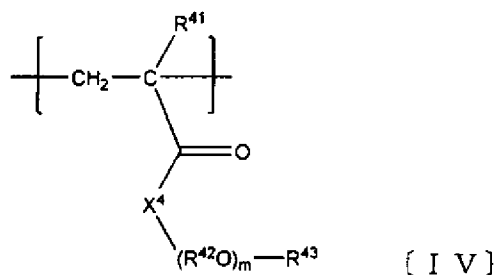
R^{32} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

R^{32} におけるアリールアルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基、3-フェニルプロピル基などの炭素数6～10のアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

R^{32} におけるヘテロアリールアルキル基としては、ピリジン-2-イルメチル基、ピリジン-3-イルメチル基、ピリジン-4-イルメチル基などの、ヘテロ原子としてN、O又はSを少なくとも1個有し、員数が5～10のヘテロアリール基と炭素数1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

[0032] 前記式〔III〕で表される繰り返し単位以外の繰り返し単位としては、次式〔IV〕で表される繰り返し単位を挙げることができる。

[化10]



[0033] 式〔IV〕中、 R^{41} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{41} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシルなどの炭素数1～6の基を挙げることができる。

[0034] 式〔I V〕中、 X^4 は、 $-NH-$ または $-O-$ を表す。

[0035] 式〔I V〕中、 R^{42} は、アルキレン基を表す。

R^{42} におけるアルキレン基としては、メチレン、エチレン、プロパン-1, 3-ジイル、プロパン-1, 2-ジイル、ブタン-1, 4-ジイル、ブタン-2, 3-ジイル、ペンタン-1, 5-ジイル、ペンタン-1, 4-ジイル、2-メチルブタン-1, 4-ジイル、ヘキサン-1, 6-ジイル、オクタン-1, 8-ジイル、デカン-1, 10-ジイルなどの炭素数1~10の基が挙げられる。

アルキレン- O -アルキレン基とは、アルキレン基とアルキレン基が $-O-$ 結合を介して結合している基を意味する。アルキレン- O -アルキレン基としては、エチレン- O -エチレン基、エチレン- O -トリメチレン基などの炭素数2~10の基を挙げることができる。

[0036] 式〔I V〕中、 m は、1~100のいずれかの整数を表す。

[0037] 式〔I V〕中、 R^{43} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{43} におけるアルキル基としては、メチル、エチル、 n -プロピル、 i -プロピル、 n -ブチル、 s -ブチル、 i -ブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、 n -ヘキシルなどの炭素数1~6の基を挙げることができる。

[0038] (ブロック鎖(A)及び(B)中の他の含有し得る繰り返し単位、並びに他の含有し得るブロック中の繰り返し単位)

ブロック鎖(A)及び(B)中の他の含有しうる繰り返し単位、及び他の含有し得るブロック中の繰り返し単位としては、上記以外の(メタ)アクリル酸系モノマー、芳香族ビニル系モノマー、共役ジエン系モノマー等由来の繰り返し単位が挙げられる。

上記繰り返し単位の原料となる(メタ)アクリル酸系モノマー、芳香族ビニル系モノマー、共役ジエン系モノマーとしては以下のものが例示される。

(メタ)アクリル酸系モノマーとしては、(メタ)アクリル酸；(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸 n -プロピル、(メタ)アクリル酸 i -プロピル、(メタ)アクリル酸 n -ブチル

、（メタ）アクリル酸 i-ブチル、（メタ）アクリル酸 s-ブチル、（メタ）アクリル酸 t-ブチル、（メタ）アクリル酸ヘキシル、（メタ）アクリル酸グリシジル、（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、（メタ）アクリル酸 2-エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸 1-エチルシクロヘキシル、（メタ）アクリル酸ベンジル等の（メタ）アクリル酸エステル化合物；2-メトキシエチル（メタ）アクリレート、メトキシポリエチレングリコール（エチレングリコールの単位数は2～100）（メタ）アクリレート、エトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート等を例示することができ、これらは1種単独で、あるいは2種以上混合して、用いることができる。

[0039] 芳香族ビニル系モノマーとしては、スチレン、o-メチルスチレン、p-メチルスチレン、p-t-ブチルスチレン、 α -メチルスチレン、p-t-ブトキシスチレン、m-t-ブトキシスチレン、p-（1-エトキシエトキシ）スチレン、2,4-ジメチルスチレン、ビニルアニリン、ビニル安息香酸、ビニルナフタレン、ビニルアントラセン、2-ビニルピリジン、4-ビニルピリジン、2-ビニルキノリン、4-ビニルキノリン、2-ビニルチオフェン、4-ビニルチオフェン等のヘテロアリアル化合物等を挙げることができ、これらは1種単独で、あるいは2種以上混合して、用いることができる。

[0040] 共役ジエン系モノマーとしては、1,3-ブタジエン、イソプレン、2-エチル-1,3-ブタジエン、2-t-ブチル-1,3-ブタジエン、2-フェニル-1,3-ブタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、2-メチル-1,3-ペンタジエン、3-メチル-1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン、2-メチル-1,3-オクタジエン、4,5-ジエチル-1,3-オクタジエン、3-ブチル-1,3-オクタジエン、1,3-シクロペンタジエン、1,3-シクロヘキサジエン、1,3-シクロオクタジエン、1,3-トリシクロデカジエン、ミルセン、クロロプレン等を挙げることができ、これらは1種単独で、あるいは2

種以上混合して、用いることができる。

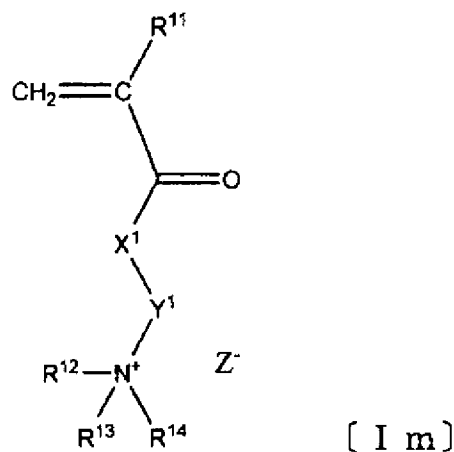
[0041] (セラミックス微粒子分散剤の製造方法)

本発明のセラミックス微粒子分散剤の製造方法を、以下説明する。

[0042] (1) 式〔I〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔I II〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(B)を含むブロックポリマーの製造方法

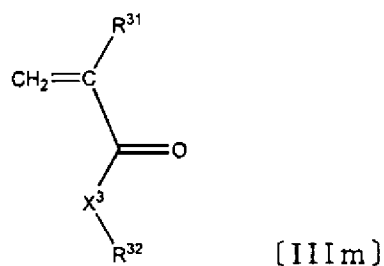
式〔I m〕で表される化合物を公知のリビング重合法で重合し、反応系内に式〔III m〕で表される化合物を添加して公知のリビング重合法を行うことにより製造することができる。

[0043] [化11]



式〔I m〕中の、 R^{11} 、 X^1 、 Y^1 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} は、式〔I〕中の R^{11} 、 X^1 、 Y^1 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} と同様である。

[0044] [化12]



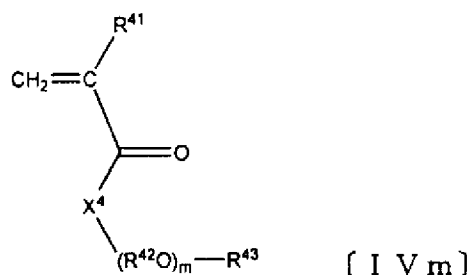
式〔III_m〕中の、 R^{31} 、 X^3 、 R^{32} は、式〔III〕中の R^{31} 、 X^3 、 R^{32} と同様である。

得られたブロックポリマーは、一般的な精製方法で精製することができる。

[0045] (2) 式〔I〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔II〕で表される繰り返し単位および式〔IV〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(B)を含むブロックポリマーの製造方法

前記式〔I_m〕で表される化合物を公知のリビング重合法で重合し、反応系内に前記式〔III_m〕で表される化合物および下記式〔IV_m〕で表される化合物を添加して公知のリビング重合を行うことにより製造することができる。

[0046] [化13]



式〔IV_m〕中の、 R^{41} 、 X^4 、 R^{42} 、 R^{43} は、式〔IV〕中の R^{41} 、 X^4 、 R^{42} 、 R^{43} と同様である。

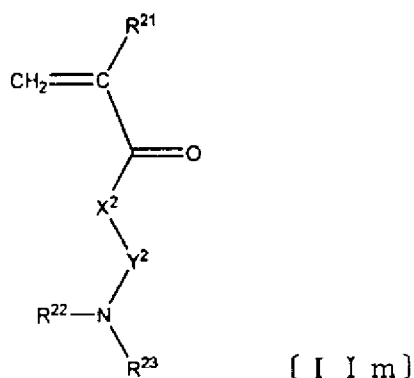
得られたブロックポリマーは、一般的な精製方法で精製することができる。

[0047] (3) 式〔I〕で表される繰り返し単位および式〔II〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔III〕で表される繰り返し単位および式〔IV〕で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(B)を含むブロックポリマーの製造方法

まず、下記式〔II_m〕で表される化合物を公知のリビング重合法で重合し、反応系内に前記式〔III_m〕で表される化合物および前記式〔IV_m〕で

表される化合物を添加して公知のリビング重合を行う。次いで、得られたポリマー中の3級アミノ基の一部を公知の手法により4級化することにより製造することができる。

[0048] [化14]



[0049] 式 [IIm] 中の、 R^{21} 、 X^2 、 Y^2 、 R^{22} 、 R^{23} は、式 [II] 中の R^{21} 、 X^2 、 Y^2 、 R^{22} 、 R^{23} と同様である。

[0050] 上記式 [I] ~ [IV] 以外の繰り返し単位や、他のブロック鎖を含む場合も、上記方法に準じて原料となる化合物を追加してリビング重合することができる。

公知のリビング重合方法としては、リビングアニオン重合法やリビングカチオン重合法を挙げることができる。

公知の4級化方法としては、4級化剤を用いる4級化方法を挙げることができる。

4級化剤としては、塩化ベンジル、臭化ベンジル、ヨウ化ベンジル等や、塩化メチル、塩化エチル、臭化メチル、ヨウ化メチル、硫酸ジメチル、硫酸ジエチル、硫酸ジ-n-プロピルなど一般的な4級化剤を挙げることができる。

得られたブロックポリマーは、一般的な精製方法で精製することができる。

[0051] 上記のようにして得られるブロックポリマーは、そのまま、あるいは、

溶媒に溶解又は分散してセラミックス微粒子分散剤として使用することができる。

溶媒としては、水；ヘキサン、デカン、ドデカン、テトラデカンなどの脂肪族炭化水素溶媒；シクロヘキサンなどの脂環式炭化水素溶媒；トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶媒；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル、プロピレングリコールメチルエーテルアセテートなどのエステル系溶媒；メタノール、エタノール、*n*-プロパノール、イソプロパノール、*n*-ブタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリンなどのアルコール系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコールモノメチルエーテル（メチルセロソルブ）、エチレングリコールモノエチルエーテル（エチルセロソルブ）、エチレングリコールモノブチルエーテル（ブチルセロソルブ）、1-メトキシ-2-プロパノールなどのエーテル系溶媒などを挙げることができる。溶媒は、1種単独でまたは2種以上を組み合わせ用いることができる。用いられる溶媒の量は、適正な分散剤粘度などの観点から適宜設定することができる。本発明の分散剤に含まれる溶媒の量は、好ましくは5～95重量%である。

本発明のセラミックス微粒子分散剤は、分散媒にセラミックス微粒子を均一に分散するのに好適である。

[0052] （セラミックス微粒子分散組成物）

本発明の組成物は、セラミックス微粒子と、本発明のセラミックス微粒子分散剤と、分散媒とを含むものである。本発明の組成物においては、セラミックス微粒子が分散媒に均一に分散していることが好ましい。

[0053] （セラミックス微粒子）

本発明のセラミックス微粒子分散剤で分散することができるセラミックス微粒子の種類は特に限定されないが、炭化ケイ素（SiC）微粒子、窒化ホウ素（BN）微粒子であるのが好ましく、窒化ホウ素（BN）微粒子である

のがより好ましい。セラミックス微粒子の中でも、炭化ケイ素微粒子や窒化ホウ素微粒子は、分散媒中に均一に分散させることが特に困難な微粒子であるため、本発明のセラミックス微粒子分散剤は有用である。

[0054] セラミックス微粒子の一次粒子径は、特に限定されないが、好ましくは1000nm以下、より好ましくは500nm以下である。

[0055] 本発明の組成物に含まれるセラミックス微粒子の量は、好ましくは1～90重量%、より好ましくは5～50重量%であり、さらに好ましくは5～30重量%である。また、本発明の組成物に使用される本発明に係るセラミックス微粒子分散剤の量は、セラミックス微粒子100重量部に対して、好ましくは1～200重量部、より好ましくは1～100重量部、さらに好ましくは1～50重量部である。

[0056] (分散媒)

本発明の組成物においては、分散媒として、液体のものまたは固体のものをを用いることができる。

液体分散媒としては、水；ヘキサン、デカン、ドデカン、テトラデカンなどの脂肪族炭化水素溶媒；シクロヘキサンなどの脂環式炭化水素溶媒；トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶媒；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、酢酸イソブチルなどのエステル系溶媒；メタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリンなどのアルコール系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコールモノメチルエーテル（メチルセロソルブ）、エチレングリコールモノエチルエーテル（エチルセロソルブ）、エチレングリコールモノブチルエーテル（ブチルセロソルブ）などのエーテル系溶媒などを挙げることができる。これら液体分散媒は、1種単独でまたは2種以上を組み合わせ用いることができる。

本発明の組成物に用いられる液体分散媒の量は、適正な組成物粘度などの

観点から適宜設定することができる。本発明の組成物に含まれ得る液体分散媒の量は、好ましくは5～95重量%である。

[0057] 固体分散媒としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、光硬化性樹脂などを挙げることができる。なお、本発明においては光硬化性樹脂および熱硬化性樹脂を硬化性成分と呼ぶことがある。本発明においては硬化性成分を固体分散媒として用いて硬化性組成物とすることもできる。

[0058] 熱可塑性樹脂としては、シリコン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、フッ素樹脂、ABS樹脂、AS樹脂、アクリル樹脂、ポリアミド、ポリアセタール、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、環状ポリオレフィン、ポリフェニレンスルファイド、ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、非晶ポリアリレート、液晶ポリマー、ポリエーテルエーテルケトン、熱可塑性ポリイミド、ポリアミドイミドなどが挙げられる。熱可塑性樹脂は加熱融解させて、または溶媒に溶解させて、セラミック微粒子およびセラミック微粒子用分散剤と混練または混合することができる。

[0059] 熱可塑性樹脂を含む組成物は、さらに加硫剤を含有していてもよい。加硫剤としては、ベンゾイルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、2,5-ジメチルー2,5-ビス(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、t-ブチルクミルパーオキサイド、ジ-t-ブチルパーオキサイド、p-メチルベンゾイルパーオキサイドなどを挙げることができる。

本発明のセラミックス微粒子分散剤と、熱可塑性樹脂と、加硫剤と、セラミックス微粒子を含む分散組成物を加熱成形することにより、シート状材料を製造することができる。加熱成形する条件は、熱可塑性樹脂やセラミックス微粒子の性質などに合わせて適宜条件を設定することができる。

[0060] 熱硬化性樹脂は熱を加えることによって液体から固体に変化するものである。熱硬化性樹脂としては、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ポリウレタン、熱硬

化性ポリイミド、などが挙げられる。また、熱硬化性樹脂として、モノマーおよび必要に応じてオリゴマーと、熱重合開始剤とを少なくとも含有するものが挙げられる。

[0061] また、光硬化性樹脂は、光（紫外線など）を照射することによって液体から固体に変化するものである。光硬化性樹脂として、例えば、モノマーおよび必要に応じてオリゴマーと、光重合開始剤とを少なくとも含有するものが挙げられる。

[0062] 光硬化性樹脂または熱硬化性樹脂において用いられるモノマーまたはオリゴマーとしては、単官能（メタ）アクリレート系モノマー、スチレン、アクリロニトリルなどのモノエチレン性不飽和化合物；ジエ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、トリエチレンジ（メタ）アクリレート、PEG#200ジ（メタ）アクリレート、PEG#400ジ（メタ）アクリレート、PEG#600ジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルジ（メタ）アクリレート、ジメチロールトリシクロデカンジ（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、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、トリメチロールプロパントリアクリレート、トリメチロールプロパンテトラアクリレートなどの多官能（メタ）アクリレート系モノマー；ウレタン（メタ）アクリレート；エポキシ（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

これらのうち、ジペンタエリスリトールヘキサ（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、トリメチロールプロパントリアクリレート、トリメチロールプロパンテトラアクリレートなどの多官能（メタ）アクリレート系モノマーが好ましい。また、これらは1種単独で、または2種以上を組み合わせ用いることができる。

[0063] 重合開始剤としては、光の照射によって重合反応を開始させるもの（光重

合開始剤）と加熱によって重合反応を開始させるもの（熱重合開始剤）とがある。重合開始剤の具体例としては、有機過酸化物、イミダゾール誘導体、ビスイミダゾール誘導体、N-アリールグリシン誘導体、有機アジド化合物、チタノセン類、アルミナート錯体、N-アルコキシピリジニウム塩、チオキサントン誘導体などが挙げられる。

有機過酸化物としては、t-ブチルヒドロパーオキシド、p-メンタンヒドロパーオキシド、クメンヒドロパーオキシド、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシドなどのヒドロパーオキシド類；t-ブチルパーオキシラウレート、t-ブチルパーオキシベンゾエート、t-ブチルパーオキシデカノエートなどのパーオキシエステル類；1, 5-ジ-t-ブチルパーオキシ-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサンなどのパーオキシケタール類；アセト酢酸エチルパーオキシドなどのケトンパーオキシド類；過酸化ベンゾイルなどのジアシルパーオキシド類が挙げられる。

その他、ベンゾイン、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、2, 2-ジエトキシアセトフェノン、2, 2-ジメトキシフェニルアセトフェノン、2-エチルアントラキノン、1, 3-ジ(t-ブチルジオキシカルボニル)ベンゾフェノン、4, 4'-テトラキス(t-ブチルジオキシカルボニル)ベンゾフェノン、3-フェニル-5-イソオキサゾロン、2-メルカプトベンズイミダゾール、ビス(2, 4, 5-トリフェニル)イミダゾール、2, 2-ジメトキシ-1, 2-ジフェニルエタン-1-オン（商品名イルガキュア651、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ（株）製）、1-ヒドロキシシクロヘキシル-フェニル-ケトン（商品名イルガキュア184、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ（株）製）、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォリノフェニル)-ブタン-1-オン（商品名イルガキュア369、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ（株）製）、ビス(2, 4-シクロペンタジエン-1-イル)-ビス(2, 6-ジフルオロ-3-(1H-ピロール-1-イル)-フェニル)チタニウム（商品名イルガキュア784、チバ・スペシャルティ・

ケミカルズ（株）製）、ジクミルペルオキシド、*t*-ブチルペルベンゾエート、*t*-ブチルペロキシヘキシン-3などが挙げられる。これら重合開始剤は、1種単独でまたは2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0064] 本発明に係る組成物は、各成分を適宜混合することにより調製することができる。

[0065] [実施例]

以下実施例を用いて本発明を詳細に説明するが、本発明の技術的範囲はこれらの例示に限定されるものではない。

[0066] <分散剤の製造>

(実施例1-1)

1000 mL フラスコにテトラヒドロフラン300 g、塩化リチウム0.3 gを加え、-60℃まで冷却した。*n*-ブチルリチウム9.5 g (15.4重量%濃度ヘキサン溶液)を加えた後、さらに、ジイソプロピルアミン2.1 gを加えて10分間攪拌した。反応系内に、メタクリル酸N,N-ジメチルアミノエチル（以下、DMAEMAと略す）23.2 gを5分間かけて滴下した後、15分間攪拌した。一部をサンプリングし、GC測定によりモノマー消失を確認した。反応系内に、メタクリル酸ブチル（以下、BMAと略す）53.5 gを30分間かけて滴下した。一部をサンプリングし、GC測定によりモノマー消失を確認した後、メタノール2.0 gを加えて反応を停止した。

得られたブロックポリマーを、GPC（移動相N,N-ジメチルホルムアミド、PMMAスタンダード）で分析したところ、重量平均分子量（ M_w ）は5500、分子量分布（ M_w/M_n ）は1.24であった。

反応液を酢酸エチルで希釈し、三回水洗後、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート（以下、PGMEAと略す）で溶媒置換した。DMAEMAに対して0.8当量の塩化ベンジル（以下、BzClと略す）を加えた。さらに、PGMEAと1-メトキシ-2-プロパノール（以下、PGME

と略す)の重量比が7対3である混合溶液を、ブロックポリマーの濃度が35重量%になるように加えた。その後、80℃で5時間熟成し、分散剤Aを得た。

[0067] (実施例2-1)

500mLフラスコにテトラヒドロフラン190g、塩化リチウム0.3gを加え、-60℃まで冷却した。n-ブチルリチウム5.8g(15.4重量%濃度ヘキサン溶液)を加えた後、さらに、ジイソプロピルアミン1.1gを加えて10分間攪拌した。反応系内に、DMAEMA15.1gを5分間かけて滴下した後、15分間攪拌した。一部をサンプリングし、GC測定によりモノマー消失を確認した。反応系内に、BMA17.1gと、メトキシポリエチレングリコールモノメタクリレート(PME-200 日油株式会社製)(以下、PEGMAと略すことがある)17.1gの混合物を30分間かけて滴下した。一部をサンプリングし、GC測定によりモノマー消失を確認した後、メタノール1.5gを加えて反応を停止した。

得られたブロックポリマーを、GPC(移動相N,N-ジメチルホルムアミド、PMMAスタンダード)で分析したところ、重量平均分子量(Mw)は5600、分子量分布(Mw/Mn)は1.20であった。

反応液を酢酸エチルで希釈し、三回水洗後、PGMEAで溶媒置換した。DMAEMAに対して0.8当量のBzClを加えた。さらに、PGMEAとPGMEの重量比が7対3である混合溶液を、ブロックポリマーの濃度が35重量%になるように加えた。その後、80℃で5時間熟成し、分散剤Bを得た。

[0068] <組成物の製造>

[0069] (実施例1-2)

窒化ホウ素粒子(昭和電工株式会社製、UHP-S1)9重量部と、実施例1-1で得られた分散剤A2.7重量部と、メチルエチルケトン88.3重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、下記の条件で分散を行い、組成物Aを得た。分散開始後、一定時間ごとに、窒化ホウ素粒子の平均粒子径

を下記の条件で測定した。分散開始後 2 時間で、平均粒子径は一定となった。分散開始後 2 時間の時点における窒化ホウ素微粒子の平均粒子径は、470 nm であった。

[分散条件]

分散機：アイメックス株式会社製 RBM 型バッチ式レディーミル

回転数：1500 rpm

スラリー量：30 g

分散ビーズ充填量：ジルコニアビーズ（ビーズ径 0.1 mm）90 g

[平均粒子径の測定条件]

組成物からサンプリングした分散液を、メチルエチルケトンにより 10 倍希釈した後、粒子径分析装置（マルバーン社製、ゼータサイザーナノ S）を用いて平均粒子径を測定した。

[0070]（実施例 2-2）

実施例 1-1 で得られた分散剤 A のかわりに、実施例 2-1 で得られた分散剤 B を使用する以外は、実施例 1-2 と同様にして組成物 B を得た。分散開始後、一定時間ごとに、窒化ホウ素粒子の平均粒子径を下記の条件で測定した。分散開始後 2 時間で、平均粒子径は一定となった。分散開始後 2 時間の時点における窒化ホウ素微粒子の平均粒子径は、420 nm であった。

[0071]（実施例 3）

実施例 2-2 で得られた組成物 B（250 重量部、窒化ホウ素粒子を 22.5 重量部含む）と、シリコーン樹脂（100 重量部：KE-971-U 信越化学工業社製）と、加硫剤（2 重量部：C-8 信越化学工業社製）を電気熱式高温ロール機（池田機械工業社製）に投入した。50℃にて 1 時間混練し、組成物 C を得た。得られた組成物 C を 170℃にて、10 分間、プレス成形し、膜厚 1 mm のシートを得た。得られたシートの熱伝導率（W/m・K）は、0.465 であった。

[0072]（熱伝導率の測定方法）

熱伝導率（W/m・K）は、水中置換法を用いて測定した密度（kg/m³

）と、示差走査熱量計（DSC）を用いて測定した比熱（ $\text{J/kg} \cdot \text{K}$ ）と、レーザーフラッシュ法熱物性測定装置により測定した熱拡散率（ m^2/S ）の乗算により算出することができる。

[0073]（実施例4）

実施例2-2で得られた組成物B（500重量部、窒化ホウ素粒子を45重量部含む）と、シリコン樹脂（100重量部：KE-971-U 信越化学工業社製）と、加硫剤（2重量部：C-8 信越化学工業社製）を電気熱式高温ロール機（池田機械工業社製）に投入した。50℃にて1時間混練し、組成物Dを得た。得られた組成物を170℃にて、10分間、プレス成形し、膜厚1mmのシートを得た。得られたシートの熱伝導率（ $\text{W/m} \cdot \text{K}$ ）は、0.612であった。

[0074]（比較例1）

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1）25重量部と、シリコン樹脂（100重量部：KE-971-U 信越化学工業社製）と、加硫剤（2,5-ジメチル-2,5-ビス（*t*-ブチルパーオキシ）ヘキサン、2重量部：C-8 信越化学工業社製）を電気熱式高温ロール機（池田機械工業社製）に投入した。50℃にて1時間混練し、組成物を得た。得られた組成物を170℃にて、10分間、プレス成形し、膜厚1mmのシートを得た。得られたシートの熱伝導率（ $\text{W/m} \cdot \text{K}$ ）は、0.457であった。

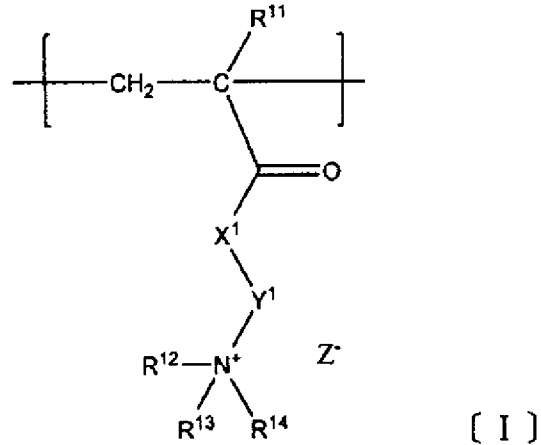
[0075]（比較例2）

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1）50重量部と、シリコン樹脂（100重量部：KE-971-U 信越化学工業社製）と、加硫剤（2重量部：C-8 信越化学工業社製）を電気熱式高温ロール機（池田機械工業社製）に投入した。50℃にて1時間混練し、組成物を得た。得られた組成物を170℃にて、10分間、プレス成形し、膜厚1mmのシートを得た。得られたシートの熱伝導率（ $\text{W/m} \cdot \text{K}$ ）は、0.552であった。

請求の範囲

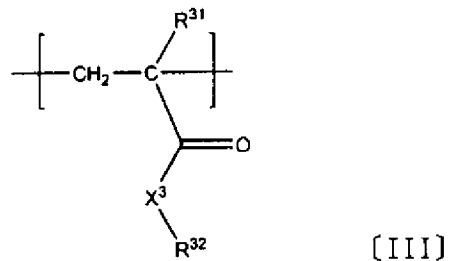
[請求項1] 式〔I〕

[化1]



(式〔I〕中、 R^{11} は、水素原子またはアルキル基を示し、 X^1 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 Y^1 は、二価の連結基を示し、 $\text{R}^{12} \sim \text{R}^{14}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示し、 Z^- はカウンターアニオンを示す。) で表される繰り返し単位を有するブロック鎖(A)と、式〔III〕]

[化2]

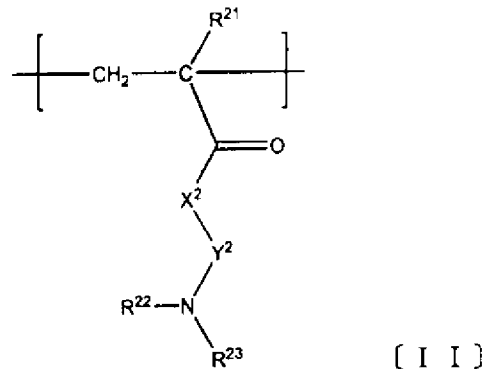


(式〔III〕中、 R^{31} は、水素原子またはアルキル基を示し、 X^3 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 R^{32} は、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示す。) で表される繰り

返し単位を有するブロック鎖（Ｂ）を含むブロックポリマー（ただし、酸性基を含まない）を含有するセラミックス微粒子分散剤。

〔請求項２〕 ブロック鎖（Ａ）が、さらに、式〔ⅠⅠ〕

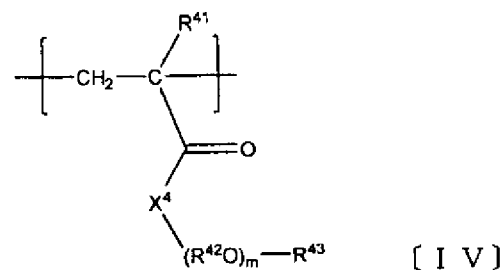
〔化３〕



（式〔ⅠⅠ〕中、 R^{21} は、水素原子またはアルキル基を示し、 X^2 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 Y^2 は、二価の連結基を示し、 R^{22} 、 R^{23} は、それぞれ独立に、アルキル基、アリールアルキル基またはヘテロアリールアルキル基を示す。）で表される繰り返し単位を含む請求項１に記載のセラミックス微粒子分散剤。

〔請求項３〕 ブロック鎖（Ｂ）が、さらに、式〔ⅠⅤ〕

〔化４〕



（式〔ⅠⅤ〕中、 R^{41} は、水素原子またはアルキル基を示し、 X^4 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 R^{42} は、アルキレン基を示し、 m は、１～１００のいずれかの整数を示し、 R^{43} は、水素原子またはアルキル基を示す。）で表される繰り返し単位を含む請求項１に記載

のセラミックス微粒子分散剤。

- [請求項4] セラミックス微粒子が窒化ホウ素微粒子または炭化ケイ素微粒子である請求項1～3いずれか1項に記載のセラミックス微粒子分散剤。
- [請求項5] 請求項1～4いずれか1項に記載のセラミックス微粒子分散剤と、分散媒と、セラミックス微粒子とを含有する組成物。
- [請求項6] 分散媒が、熱可塑性樹脂である請求項5に記載の組成物。
- [請求項7] さらに、加硫剤を含む請求項5に記載の組成物。
- [請求項8] 請求項7に記載の組成物を加熱成形してなるシート。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/002038

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01F17/52(2006.01)i, B01F17/18(2006.01)i, B01F17/42(2006.01)i,
C01B21/064(2006.01)i, C01B31/36(2006.01)i, C04B35/622(2006.01)i,
C08F8/44(2006.01)i, C08F290/12(2006.01)i, C08F297/02(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)

B01F17/52, B01F17/18, B01F17/42, C01B21/064, C01B31/36, C04B35/622,
C08F8/44, C08F290/12, C08F297/02, C08K3/34, C08K3/38, C08L53/00

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-266406 A (Nitto Denko Corp.), 06 November 2008 (06.11.2008), claims; paragraphs [0003] to [0004], [0018] to [0037]; examples (Family: none)	1-8
Y	JP 2000-229233 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 22 August 2000 (22.08.2000), claims; paragraphs [0001] to [0002], [0019] (Family: none)	1-8



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
10 June 2016 (10.06.16)

Date of mailing of the international search report
21 June 2016 (21.06.16)

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/JP2016/002038

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/063435 A1 (Nippon Soda Co., Ltd.), 18 May 2012 (18.05.2012), claims; paragraphs [0018] to [0037], [0050] to [0053], [0067]; examples 1, 3, 5; comparative examples 1 to 3 & JP 5778686 B & US 2013/0217832 A1 claims; paragraphs [0020] to [0045], [0066] to [0071], [0104] to [0105]; examples 1, 3, 5; comparative examples 1 to 3 & EP 2617746 A1 & CN 103180354 A & KR 10-2013-0059441 A & TW 201219431 A	1-8
Y	JP 2010-134419 A (JSR Corp.), 17 June 2010 (17.06.2010), claims; paragraph [0024]; examples (dispersants B1, b1, B2) & JP 2014-58672 A & KR 10-2010-0048874 A & CN 101726999 A & TW 201027243 A	1-8
Y	JP 2012-37654 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 23 February 2012 (23.02.2012), claims; paragraphs [0042], [0055], [0068]; examples (pigment dispersants 1 to 8) (Family: none)	1-8
Y	JP 62-223057 A (Nitto Electric Industrial Co., Ltd.), 01 October 1987 (01.10.1987), claims; page 1, lower right column, lines 5 to 20; page 2, upper right column, lines 13 to 15 (Family: none)	6-8
Y	JP 6-56501 A (Tokuyama Soda Co., Ltd.), 01 March 1994 (01.03.1994), claims; paragraphs [0009] to [0017] (Family: none)	6-8
Y	JP 3-279256 A (Taiyo Yuden Co., Ltd.), 10 December 1991 (10.12.1991), claims; page 2, upper right column, line 16 to lower right column, line 6; examples (Family: none)	6-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/002038

Continuation of A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

(International Patent Classification (IPC))

C08K3/34(2006.01)i, C08K3/38(2006.01)i, C08L53/00(2006.01)i

(According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01F17/52(2006.01)i, B01F17/18(2006.01)i, B01F17/42(2006.01)i, C01B21/064(2006.01)i, C01B31/36(2006.01)i, C04B35/622(2006.01)i, C08F8/44(2006.01)i, C08F290/12(2006.01)i, C08F297/02(2006.01)i, C08K3/34(2006.01)i, C08K3/38(2006.01)i, C08L53/00(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 (IPC))

Int.Cl. B01F17/52, B01F17/18, B01F17/42, C01B21/064, C01B31/36, C04B35/622, C08F8/44, C08F290/12, C08F297/02, C08K3/34, C08K3/38, C08L53/00

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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2008-266406 A (日東電工株式会社) 2008.11.06, 特許請求の範囲, 段落[0003]-[0004], [0018]-[0037], 実施例 (ファミリーなし)	1-8
Y	JP 2000-229233 A (電気化学工業株式会社) 2000.08.22, 特許請求の範囲, 段落[0001]-[0002], [0019] (ファミリーなし)	1-8

☑ 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

10.06.2016

国際調査報告の発送日

21.06.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号 100-8915
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)

松本 直子

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

4D

9546

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	WO 2012/063435 A1 (日本曹達株式会社) 2012. 05. 18, 請求の範囲, 段落[0018]-[0037], [0050]-[0053], [0067], 実施例 1, 3, 5, 比較例 1-3 & JP 5778686 B & US 2013/0217832 A1, 請求の範囲, 段落 [0020]-[0045], [0066]-[0071], [0104]-[0105], 実施例 1, 3, 5, 比較例 1-3 & EP 2617746 A1 & CN 103180354 A & KR 10-2013-0059441 A & TW 201219431 A	1-8
Y	JP 2010-134419 A (J S R株式会社) 2010. 06. 17, 特許請求の範囲, 段落[0024], 実施例 (分散剤 B1, b1, B2) & JP 2014-58672 A & KR 10-2010-0048874 A & CN 101726999 A & TW 201027243 A	1-8
Y	JP 2012-37654 A (大日本印刷株式会社) 2012. 02. 23, 特許請求の範囲, 段落[0042], [0055], [0068], 実施例 (顔料分散剤 1-8) (ファミリーなし)	1-8
Y	JP 62-223057 A (日東電気工業株式会社) 1987. 10. 01, 特許請求の範囲, 1 頁右下欄 5-20 行, 2 頁右上欄 13-15 行 (ファミリーなし)	6-8
Y	JP 6-56501 A (徳山曹達株式会社) 1994. 03. 01, 特許請求の範囲, 段落[0009]-[0017] (ファミリーなし)	6-8
Y	JP 3-279256 A (太陽誘電株式会社) 1991. 12. 10, 特許請求の範囲, 2 頁右上欄 16 行-右下欄 6 行, 実施例 (ファミリーなし)	6-8