(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
2024年10月3日(03.10.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/203302 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 21/064 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
C08K 3/38 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/009642

(22) 国際出願日： 2024年3月12日(12.03.2024)

(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 2023-055192 2023年3月30日(30.03.2023) 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: 松井 隆貴(**MATSUI Ryuki**); 〒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). 野見山 智宏(**NOMIYAMA Tomohiro**); 〒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: 長谷川 芳樹，外(**HASEGAWA Yoshiki** et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目１番１号丸の内 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（明治安田生命ビル） ９階 創英国際特許法律事務所 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, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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)）

WO 2024/203302 A1

(54) **Title:** BORON NITRIDE POWDER AND METHOD FOR PRODUCING BORON NITRIDE POWDER

(54) 発明の名称： 窒化ホウ素粉末、及び、窒化ホウ素粉末の製造方法

(57) **Abstract:** One aspect of the present disclosure provides a boron nitride powder which contains aggregated particles each containing a plurality of primary particles of hexagonal boron nitride, the boron nitride powder having an average particle diameter of 20 μm or more. With respect to this boron nitride powder, the atomic ratio of silicon atoms to boron atoms is 0.10×10^{-2} or more, and the atomic ratio of carbon atoms to boron atoms is 3.00×10^{-2} or more.

(57) 要約：本開示の一側面は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含む、窒化ホウ素粉末であって、平均粒子径が２０μｍ以上であり、ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比が０．１０×１０$^{-2}$以上であり、且つ、ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比が３．００×１０$^{-2}$以上である、窒化ホウ素粉末を提供する。

明　細　書

発明の名称 ： 窒化ホウ素粉末、及び、窒化ホウ素粉末の製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、窒化ホウ素粉末、及び、窒化ホウ素粉末の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 窒化ホウ素粉末は、潤滑性、高熱伝導性、及び絶縁性等を有しており、固体潤滑材、熱伝導性フィラー、及び絶縁性フィラー等の幅広い用途に使用できるよう、種々用途に適するように窒化ホウ素の性状を調整することが検討されている。熱伝導性が要求される放熱部材における充填材として窒化ホウ素粉末の使用検討も行われている。

[0003] 例えば、結晶性に優れる六方晶窒化ホウ素の一次粒子は、比較的薄い鱗片形状を有している。そのため、樹脂等に充填し成形する場合、成形圧力等によって上記一次粒子が樹脂中で一定の方向に配向しやすい傾向にある。例えば、六方晶窒化ホウ素の粉末を樹脂に充填し、押出成形等によってシート状に成形した樹脂シートでは、一般に樹脂シートの主面と、窒化ホウ素の一次粒子の長軸とが平行となるように配向しやすい。また六方晶窒化ホウ素の一次粒子は形状の異方性に起因して、各種物性にも異方性が生じ得る。六方晶窒化ホウ素の一次粒子の面内方向（ａ軸方向）の熱伝導率が４００Ｗ／（ｍ・Ｋ）程度と高いのに対して、厚さ方向（ｃ軸方向）の熱伝導率は２Ｗ／（ｍ・Ｋ）程度に留まり、その方向による物性の異方性が顕著である。

[0004] 上述の理由から、六方晶窒化ホウ素の粉末を樹脂への充填材として利用し、放熱シートを調製する際に、上記一次粒子のａ軸方向と、放熱シートの厚さ方向とが平行となるように配向方向を調整することによって、上記一次粒子のａ軸方向における高い熱伝導率を活かす方法が検討されている。例えば、六方晶窒化ホウ素の一次粒子のａ軸方向と放熱シートの厚み方向とが平行になるように配向させる技術が知られている（例えば、特許文献１等）。

[0005] また上述のような形状に基づく異方性を低減する観点から、複数の一次粒

子を配向させずに凝集させ融着させた凝集体を形成する方法が検討されている。特許文献２では、窒化ホウ素一次粒子が凝集してなる、球形の形状を有する窒化ホウ素凝集粒子が開示されており、所定の成形圧力を加えた場合でも凝集粒子の崩壊が抑制できる程度に上記凝集粒子の強度を高めることによって、窒化ホウ素一次粒子が同一方向に揃って配向することを抑制する旨が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開２０００－１５４２６５号公報

特許文献2：特開２０１６－１３５７３１号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 上述のような球形の形状を有する窒化ホウ素凝集粒子は、複数の上記一次粒子のａ軸がそれぞれランダムな方向を向くように集合して構成される二次粒子であるため、異方性を低減できる一方で、放熱方向も等方的になることで、六方晶窒化ホウ素の一次粒子の面内方向（ａ軸方向）の高い熱伝導率を活かしきれないという側面もある。六方晶窒化ホウ素の一次粒子を凝集させた凝集粒子であって、放熱フィラーとして使用した際に、樹脂シートの厚み方向に沿った放熱性を向上させる観点からは、依然として改善の余地がある。

[0008] 本開示は、厚み方向の放熱性に優れる樹脂シートを調製可能な窒化ホウ素粉末及びその製造方法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

[0009] 本開示は、以下の［１］～［８］を提供する。

[0010] ［１］ 六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含む、窒化ホウ素粉末であって、

平均粒子径が２０μｍ以上であり、

ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比が０．１０×１０$^{-2}$以上であり、且つ、ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比が３．００×１０$^{-2}$以上である、窒化ホウ素粉末。

［２］　ホウ素原子に対する窒素原子の原子数比が１．００以上である、［１］に記載の粉末。

［３］　ケイ素原子に対する炭素原子の原子数比が２０．０以下である、［１］又は［２］に記載の粉末。

［４］　前記一次粒子の平均粒子径が８μｍ以上である、［１］～［３］のいずれかに記載の粉末。

［５］　前記凝集粒子の圧壊強さが０．１～２．０ＭＰａである、［１］～［４］のいずれかにに記載の粉末。

［６］　前記窒化ホウ素粉末の平均粒子径が３０～８０μｍである、［１］～［５］のいずれかに記載の粉末。

［７］　六方晶窒化ホウ素の一次粒子で構成される原料粉末と、アルコキシシリル基を有する化合物とを混合し、加熱処理することで、前記一次粒子を複数含有する凝集粒子を形成すること、を有する、窒化ホウ素粉末の製造方法。

［８］　前記アルコキシシリル基を有する化合物が、一般式（１）：（ＲＯ）$_3$Ｓｉ（ＣＨ$_2$）ｎＭ［前記一般式（１）中、Ｒは炭素数1以上のアルキル基を示し、Ｍはエポキシ基、アミノ基及びヒドロキシシリル基から選ばれる官能基であり、ｎは１０以下である］で表される、［７］に記載の製造方法。

[0011]　本開示の一側面は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含む、窒化ホウ素粉末であって、平均粒子径が２０μｍ以上であり、ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比が１×１０$^{-3}$以上であり、且つ、ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比が３×１０$^{-3}$以上である、窒化ホウ素粉末を提供する。

[0012]　上記窒化ホウ素粉末は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含んでいる。本発明者らは、当該窒化ホウ素粉末がケイ素原子、炭素

原子を含んでおり、これらの元素を含む成分によって上述の一次粒子同士が凝集粒子の形態を維持しているものと推定している。そして、その凝集粒子を含む粉末の平均粒子径が２０μｍ以上と比較的大きなものとなっていることによって、主として一次粒子で構成される粉体に比べて、樹脂に配合した際に樹脂内での配向が抑制されたものとなり得る。このような上記窒化ホウ素粉末であれば、樹脂へのフィラーとして用いて製造される放熱シートにおける厚み方向への熱伝導率により優れたものとなり得る。

[0013] 本開示の一側面は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子で構成される原料粉末と、アルコキシシリル基を有する化合物とを混合し、加熱処理することで、上記一次粒子を複数含有する凝集粒子を形成すること、を有する、窒化ホウ素粉末の製造方法を提供する。

[0014] 上記窒化ホウ素粉末の製造方法では、原料粉末中の六方晶窒化ホウ素の一次粒子と、アルコキシシリル基を有する化合物とを混合し、加熱処理することで、上記化合物の反応を生じさせ、複数の上記一次粒子を凝集させることによって凝集粒子を形成することができる。これによって、上述の窒化ホウ素粉末を提供し得る。

発明の効果

[0015] 本開示によれば、厚み方向の放熱性に優れる樹脂シートを調製可能な窒化ホウ素粉末及びその製造方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]図１は、実施例１において調製した粉末を示す走査型電子顕微鏡写真である。

[図2]図２は、比較例１において調製した粉末を示す走査型電子顕微鏡写真である。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本開示の実施形態を説明する。ただし、以下の実施形態は、本開示を説明するための例示であり、本開示を以下の内容に限定する趣旨ではない。本明細書において、「～」の記号で示される数値範囲は、下限値及び上限

値を含む。すなわち、「ｘ～ｙ」で示される数値範囲は、ｘ以上且つｙ以下を意味する。

[0018] 本明細書において例示する材料は特に断らない限り、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。組成物中の各成分の含有量は、組成物中の各成分に該当する物質が複数存在する場合には、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。

[0019] 窒化ホウ素粉末の一実施形態は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含む。当該窒化ホウ素粉末は平均粒子径が２０μｍ以上であり、ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比が０．１０×１０$^{-2}$以上であり、且つ、ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比が３．００×１０$^{-2}$以上である。

[0020] 上記窒化ホウ素粉末は、主として凝集粒子で構成されてよく、一次粒子として存在する割合は少なくてよい。上記凝集粒子の形状は、全体として扁平形状を有していてよい。

[0021] 六方晶窒化ホウ素の一次粒子は鱗片形状を有する。上記凝集粒子は、複数の上記一次粒子を含む凝集体であり、二次粒子に対応する。一次粒子が２つ又は３つのみが会合しているものは本開示に係る凝集粒子には含まれないものとする。上記凝集粒子を構成する一次粒子は５個以上であってよい。複数存在する上記一次粒子同士の少なくとも一部は、ケイ素及び炭素を構成原子として有する成分によって、化学的に又は物理的に互いに接着して凝集粒子を構成している。上記凝集粒子において、一次粒子同士が主面を対向させるような形で互いに接着したものを含み、そのような状態の一次粒子の割合が大きくてよい。このような場合、当該凝集粒子を構成する一次粒子の中で、その長軸方向（ａ軸方向）が、ひとつの凝集粒子全体の長軸方向に沿うように配向する割合が多くなってよい。

[0022] ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比（Ｓｉの原子数／Ｂの原子数：Ｓｉ／Ｂの値）は、凝集粒子において、六方晶窒化ホウ素の一次粒子間に存在するケイ素原子を含む成分の割合に対応する。上記Ｓｉ／Ｂの値の下限値

は、例えば、０．１０×１０$^{-2}$以上、０．５０×１０$^{-2}$以上、０．６０×１０$^{-2}$以上、０．７０×１０$^{-2}$以上、０．８０×１０$^{-2}$以上、０．９０×１０$^{-2}$以上、１．００×１０$^{-2}$以上、１．１０×１０$^{-2}$以上、１．２０×１０$^{-2}$以上、１．３０×１０$^{-2}$以上、又は１．５０×１０$^{-2}$以上であってよい。Ｓｉ／Ｂの値の下限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の圧壊強さを適度に向上させ得る。上記Ｓｉ／Ｂの値の上限値は、例えば、２０．００×１０$^{-2}$以下、１５．００×１０$^{-2}$以下、１０．００×１０$^{-2}$以下、８．００×１０$^{-2}$以下、６．００×１０$^{-2}$以下、５．００×１０$^{-2}$以下、３．００×１０$^{-2}$以下、又は２．００×１０$^{-2}$以下であってよい。Ｓｉ／Ｂの値の上限値が上記範囲内であることで、凝集粒子を構成する六方晶窒化ホウ素の割合がより大きく、窒化ホウ素粉末を放熱フィラーとして用いた場合の放熱性をより向上し得る。

[0023] ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比（Ｃの原子数／Ｂの原子数：Ｃ／Ｂの値）の下限値は、例えば、３．００×１０$^{-2}$以上、５．００×１０$^{-2}$以上、７．００×１０$^{-2}$以上、８．００×１０$^{-2}$以上、９．００×１０$^{-2}$以上、１０．００×１０$^{-2}$以上、１１．００×１０$^{-2}$以上、１２．００×１０$^{-2}$以上、１３．００×１０$^{-2}$以上、１４．００×１０$^{-2}$以上、又は１５．０×１０$^{-2}$以上であってよい。Ｃ／Ｂの値の下限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の圧壊強さをより向上できる。上記Ｃ／Ｂの値の上限値は、例えば、４０．００×１０$^{-2}$以下、３５．００×１０$^{-2}$以下、３０．００×１０$^{-2}$以下、２０．００×１０$^{-2}$以下、又は１５．００×１０$^{-2}$以下であってよい。Ｃ／Ｂの値の上限値が上記範囲内であることで、樹脂と窒化ホウ素粉末の親和性をより向上できる。

[0024] ホウ素原子に対する窒素原子の原子数比（Ｎの原子数／Ｂの原子数：Ｎ／Ｂの値）の下限値は、例えば、１．００以上、又は１．０１以上であってよい。Ｎ／Ｂの下限値が上記範囲内であることで、窒化ホウ素粉末が適度なアミノ系の反応サイトを有することになり、樹脂との親和性をより向上できる。上記Ｎ／Ｂの値の上限値は、例えば、１．１０以下、又は１．０５以下で

あってよい。Ｎ／Ｂの上限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の粗大化を防ぎ、窒化ホウ素粉末を絶縁フィラーとして用いた場合の絶縁性をより向上させることができる。

[0025] ケイ素原子に対する炭素原子の原子数比（Ｃの原子数／Ｓｉの原子数：Ｃ／Ｓｉの値）の上限値は、例えば、２０．０以下、１５．０以下、又は１２．０以下であってよい。Ｃ／Ｓｉの値の上限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の粗大化を防ぎ、窒化ホウ素粉末を絶縁フィラーとして用いた場合の絶縁性をより向上させることができる。上記Ｃ／Ｓｉの値の下限値は、例えば、１．０以上、５．０以上、８．０以上、又は１０．０以上であってよい。Ｃ／Ｓｉの値の下限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の圧壊強さをより向上できる。

[0026] 本明細書における炭素を除く元素の原子数は、蛍光Ｘ線（ＸＲＦ）分析装置を用いて測定される値を意味する。蛍光Ｘ線分析装置としては、例えば、株式会社リガク製の「Ｐｒｉｍｕｓ ＩＩ」（製品名）等を使用できる。

[0027] 本明細書における炭素の原子数は、炭素／硫黄同時分析計によって測定される値を意味する。炭素／硫黄同時分析計としては、例えば、ＬＥＣＯ社製の「ＩＲ－４１２型」（製品名）等を使用できる。

[0028] 上記窒化ホウ素粉末に含まれる凝集粒子は、ケイ素を含む成分を介して一次粒子が凝集しているものであり、一次粒子同士が焼結するような形で凝集した凝集粒子に比べれば力を加えられた際に崩壊されやすく、その圧壊強さは比較的小さなものとなっている。

[0029] 上記凝集粒子の圧壊強さの上限値は、例えば、２．０ＭＰａ以下、又は１．５ＭＰａ以下であってよい。圧壊強さの上限値が上記範囲内であることで、凝集粒子の凝集力が強固になり過ぎず、窒化ホウ素粉末を放熱フィラーとして用いた場合に、樹脂中で適度に凝集状態が変形又は解れることが可能であり、最密充填に近づけることで得られる樹脂シートの放熱性をより向上できる。上記凝集粒子の圧壊強さの下限値は、例えば、０．１ＭＰａ以上、０．３ＭＰａ以上、又は０．５ＭＰａ以上であってよい。圧壊強さの下限値が

上記範囲内であることで、樹脂に凝集粒子を添加した際に凝集粒子が完全に崩壊することをより十分に抑制できる。上記凝集粒子の圧壊強さは上述の範囲内で調整してよく、例えば、０．１～２．０ＭＰａであってよい。

[0030] 本明細書における凝集粒子の圧壊強さは、ＪＩＳ　Ｒ　１６３９－５：２００７「ファインセラミックス－か（顆）粒特性の測定方法－第５部：単一か粒圧壊強さ」の記載に準拠して測定される値を意味する。凝集粒子１個の圧壊強さσ（単位：ＭＰａ）は、凝集粒子内の位置によって変化する無次元数α（α＝２．４８）、圧壊試験力Ｐ（単位：Ｎ）及び粒子径ｄ（単位：μｍ）の値から、$\sigma = \alpha \times P / (\pi \times d^2)$という式を用いて算出される。測定は、２０個以上の凝集粒子に対して行い、累積破壊率６３．２％時点の値を算出した。測定には、微小圧縮試験器を用いることができる。微小圧縮試験器としては、例えば、株式会社島津製作所製の「ＭＣＴ－Ｗ５００」（製品名）等を使用することができる。

[0031] 上記窒化ホウ素粉末において、その平均粒子径は２０μｍ以上であるが、樹脂シートの厚さ等に応じて調整してよい。上記窒化ホウ素粉末の平均粒子径の下限値は、例えば、３０μｍ以上、３５μｍ以上、３８μｍ以上、４０μｍ以上、４５μｍ以上、４８μｍ以上、又は５０μｍ以上であってよい。平均粒子径の下限値が上記範囲内であることで、窒化ホウ素粉末を放熱フィラーとして用いた場合の放熱性をより向上できる。上記窒化ホウ素粉末の平均粒子径の上限値は、例えば、１００μｍ以下、９０μｍ以下、８０μｍ以下、７０μｍ以下、又は６０μｍ以下であってよい。平均粒子径の上限値が上記範囲内であることで、樹脂シートを調製した際に樹脂シート表面の凹凸をより低減できる。窒化ホウ素粉末の平均粒子径は上述の範囲内で調整してよく、例えば、２０～１００μｍ、３０～１００μｍ、３０～８０μｍ、又は３０～６０μｍであってよい。

[0032] 本明細書における窒化ホウ素粉末の平均粒子径は、体積基準の累積粒度分布における５０％累積径（メジアン径）を意味する。より具体的には、粉末に対するレーザー回折散乱法で得られる体積基準の累積粒度分布における累

積値が５０％となったときの粒子径（Ｄ５０）を意味する。レーザー回折散乱法は、ＪＩＳ　Ｚ　８８２５：２０１３「粒子径解析－レーザー回折・散乱法」に記載の方法に準拠して測定する。測定には、レーザー回折散乱法粒度分布測定装置等を使用することができる。レーザー回折散乱法粒度分布測定装置は、例えば、ベックマンコールター社製の「ＬＳ－１３　３２０」（製品名）等を使用できる。なお、窒化ホウ素粉末の平均粒子径の測定の際には、測定対象となる粉末に対するホモジナイザー等による処理は行わずに測定を行うものとする。

[0033] 上記窒化ホウ素粉末において、六方晶窒化ホウ素の一次粒子の平均粒子径は比較的大きなものであってよい。上記一次粒子の平均粒子径の下限値は、８μｍ以上、１０μｍ、１２μｍ以上、又は１５μｍ以上であってよい。平均粒子径の下限値を上記範囲内とすることで、一次粒子同士の界面抵抗を減らし窒化ホウ素粉末を放熱フィラーとして用いた場合の放熱性をより向上し得る。上記一次粒子の平均粒子径の上限値は、３０μｍ以下、２８μｍ以下、又は２５μｍ以下であってよい。平均粒子径の上限値を上記範囲内とすることで、樹脂に添加した際に樹脂組成物の表面凹凸を低減し得る。六方晶窒化ホウ素の一次粒子の平均粒子径は上述の範囲内で調整してよく、例えば、８～３０μｍ、又は１２～２５μｍであってよい。

[0034] 本明細書における六方晶窒化ホウ素の一次粒子の平均粒子径の測定は、窒化ホウ素粉末の平均粒子径の測定方法と同様の方法で行う。ただし、測定対象となる粉末に対して、ホモジナイザーによる処理を行ったうえで測定を行うものとする。ここで、ホモジナイザー装置としては、家田貿易株式会社製の「ＶＣ－５０５」（製品名）等を使用できる。ホモジナイザーによる処理は、例えば、周波数２０ＫＨｚ、２分間の条件で行うものとする。

[0035] 窒化ホウ素粉末の製造方法の一実施形態は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子で構成される原料粉末と、アルコキシシリル基を有する化合物とを混合し、加熱処理することで、上記一次粒子を複数含有する凝集粒子を形成すること、を有する。

[0036] 原料粉末は、六方晶窒化ホウ素の一次粒子で構成されるものであり、対応する粉末があれば、購入して用いてもよく、また自ら調製してもよい。上記原料粉末は、六方晶窒化ホウ素に対する焼結助剤を含まないものであってよい。

[0037] 原料粉末は、例えば、ホウ酸等のホウ素化合物とメラミン等の窒素を含む化合物との混合物を焼成する方法（特に、ホウ酸及びメラミンを用いる場合、例えば、ホウ酸メラミン法ともいう）を応用する調製方法によって調製することができる。

[0038] ホウ酸メラミン法を応用した原料粉末の調製方法の一例は、ホウ酸を含むホウ素含有化合物とメラミンを含む窒素含有化合物とを含有する原料組成物を、不活性ガス及びアンモニアガスの少なくとも一方を含む雰囲気中、６００～１３００℃で焼成して、低結晶性の窒化ホウ素、及び非晶質の窒化ホウ素からなる群より選ばれる少なくとも一方を含む仮焼物を得る工程（仮焼工程）と、仮焼物とホウ酸と助剤とを含む混合粉末を、不活性ガス及びアンモニアガスの少なくとも一方を含む雰囲気中、１６００℃以上且つ２１００℃未満の温度で焼成して焼成物を得る工程（焼成工程）と、上記焼成物を粉砕して粒度を調整した粉末を得る工程（粉砕工程）と、を有する。上記焼成工程は、複数回繰り返してもよい（以下、それぞれ順に第一焼成工程、第二焼成工程等という）。焼成工程を複数回繰り返し行う場合には、各焼成工程で得られる焼成物を粉砕してもよい。焼成物を粉砕することで第二焼成工程以降の焼成工程における原料組成物中のメラミン等を十分に消費させることができる。また粉砕工程は、粉砕で得られた粉末を洗浄及び乾燥し、乾燥粉末とすることを含んでもよい。

[0039] ホウ素含有化合物は、構成元素としてホウ素原子を有する化合物である。ホウ素含有化合物は、ホウ酸に加えて、例えば、酸化ホウ素及びホウ砂等を更に含んでもよい。窒素含有化合物は、構成元素として窒素原子を有する化合物であり、有機化合物であってよい。窒素含有化合物は、メラミンに加えて、例えば、ジシアンジアミド及び尿素等を更に含んでもよい。原料組成物

は、上記化合物以外の成分を含んでもよい。例えば、仮焼用助剤として、炭酸リチウム、炭酸ナトリウム、及び炭酸カルシウムなどの炭酸塩を含んでよい。また、炭素等の還元性物質を含んでよい。

[0040] 仮焼工程では、上述の原料組成物を、例えば、電気炉を用いて仮焼して仮焼物を得る。仮焼工程は、不活性ガス及びアンモニアガスの少なくとも一方を含む雰囲気中で行う。不活性ガスとしては、例えば、窒素ガス、希ガス等が挙げられる。希ガスは、例えば、ヘリウムガス及びアルゴンガス等であってよい。仮焼工程は、不活性ガス及びアンモニアガスを混合した混合ガス雰囲気中で行ってよい。仮焼温度は、例えば、６００～１３００℃、８００～１２００℃、又は９００～１１００℃であってよい。仮焼時間は、例えば、０．５～５時間、又は１～４時間であってよい。

[0041] 仮焼によって得られる仮焼物は、低結晶性の窒化ホウ素、及び非晶質の窒化ホウ素からなる群より選ばれる少なくとも一方を含み、更に六方晶窒化ホウ素を含んでもよい。仮焼工程は、後述の焼成工程よりも低温で窒化ホウ素の反応を進行させる。仮焼の温度を低くすることによって粒成長を抑制させ、原料粉末の平均粒子径を小さくすることができる。また、仮焼の温度を低くすることによって粒成長を抑制させ、原料粉末の比表面積を大きくすることができる。

[0042] 次に、焼成工程において、上述のようにして得られた仮焼物とホウ酸と助剤とを配合して混合し、混合粉末を調製し、これを焼成する。焼成工程では、ホウ酸及び助剤の存在下、原料組成物を十分に消費させつつ、窒化ホウ素の生成及び結晶化を進行させる。これによって、仮焼物に含まれる窒化ホウ素の結晶性を高め六方晶窒化ホウ素を形成させることができる。焼成工程において、ホウ酸を追加で加えることによって、原料組成物におけるメラミン、原料組成物の反応によって生成するアモルファスカーボン及び黒鉛等を十分に反応させ、その含有量を低減することによって、純度の高い原料粉末を得ることができる。

[0043] 混合粉末におけるホウ酸の含有量は、仮焼物１００質量部に対して、例え

ば、１～３０質量部、１０～３０質量部、１０～２０質量部、又は１～１５質量部であってよい。ホウ酸の含有量の下限値を上記範囲内とすることで、メラミン等の残存をより十分に低減し、純度の高い原料粉末をえることができる。ホウ酸の含有量の上限値を上記範囲内とすることで、ホウ酸残存量が少ない原料粉末を得ることができる。

[0044] 助剤としては、ホウ酸ナトリウム等のホウ酸塩、並びに、炭酸ナトリウム、炭酸カルシウム及び炭酸リチウム等の炭酸塩などが挙げられる。窒化ホウ素を含む仮焼物１００質量部に対する、助剤の配合量は２～２０質量部であってよく、２～８質量部であってもよい。

[0045] 焼成工程において混合粉末は、例えば、電気炉等を用いて焼成して焼成物を得る。焼成工程は、不活性ガス及びアンモニアガスの少なくとも一方を含む雰囲気中で行う。不活性ガスとしては、例えば、窒素ガス、希ガス等が挙げられる。希ガスは、例えば、ヘリウムガス及びアルゴンガス等であってよい。焼成工程は、不活性ガス及びアンモニアガスを含む混合ガス雰囲気中で行ってよい。

[0046] 焼成温度は、１６００℃以上且つ２１００℃未満である。この焼成温度は、１８００～２０５０℃であってよく、１９００～２０００℃であってもよい。焼成時間は、例えば０．５～５時間であってよく、１～４時間であってもよい。

[0047] なお、本明細書における、焼成時間、加熱時間等は、対象物の周囲環境の温度が所定の温度に到達してから当該温度で維持する時間（保持時間）を意味する。

[0048] 焼成温度を比較的高温く保つことによって、原料組成物の消費、原料組成物の反応によって生成するアモルファスカーボン及び黒鉛等の消費、六方晶窒化ホウ素の生成及び結晶化が十分に進行させることができる。原料組成物のうちメラミン等の炭素を含む原料を低減することによって、得られる原料粉末の品質をより向上させることができる。焼成時間を長くすることでも同様の傾向がある。一方、焼成温度が高くなり過ぎると、六方晶窒化ホウ素の

結晶成長が進み過ぎて、微粉砕が困難になる傾向にある。焼成時間が長くなり過ぎたときも同様の傾向にある。

[0049] 焼成工程で得られた焼成物の粉砕は、例えば、粉砕装置を用いてもよい。粉砕装置としては、例えば、衝撃式粉砕機（パルペライザー）等を用いてもよい。衝撃式粉砕機は、例えば、衝撃型スクリーン式微粉砕機等のスクリーンによって粉砕物の粒度調整が可能なものを好適に用いることができる。スクリーンの目開きは、例えば、０．１～１ｍｍ、又は１～３ｍｍであってよい。

[0050] 粉砕工程では、上記焼成物を粉砕して粒度を調整する。焼成物の粉砕によって得られる粉砕粉中には、六方晶窒化ホウ素以外に不純物が含まれ得る。そこで、当該不純物を低減する処理（精製処理）を行ってもよい。不純物としては、残存する原料及び助剤、並びに水溶性ホウ素化合物等が挙げられる。精製処理は、例えば、洗浄等によって、このような不純物の量を低減する。洗浄後、固液分離して乾燥し、乾燥粉末を得る。

[0051] 原料粉末における六方晶窒化ホウ素の一次粒子の平均粒子径は比較的大きなものであってよい。なお、上述の製造方法においては、六方晶窒化ホウ素の一次粒子の溶解及び再結晶、並びに焼結等は抑制されたものとなっていることから、原料粉末における上記一次粒子の平均粒子径は、上記製造方法によって得られる窒化ホウ素粉末における一次粒子の平均粒子径と凡そ一致する。

[0052] 原料粉末における上記一次粒子の平均粒子径の下限値は、８μｍ以上、１０μｍ以上、１１μｍ以上、１２μｍ以上、又は１５μｍ以上であってよい。平均粒子径の下限値を上記範囲内とすることで、一次粒子同士の界面抵抗を減らし窒化ホウ素粉末を放熱フィラーとして用いた場合の放熱性をより向上し得る。上記一次粒子の平均粒子径の上限値は、３０μｍ以下、２８μｍ以下、２６μｍ以下、又は２５μｍ以下であってよい。平均粒子径の上限値を上記範囲内とすることで、樹脂に添加した際に樹脂組成物の表面凹凸を低減し得る。六方晶窒化ホウ素の一次粒子の平均粒子径は上述の範囲内で調整

してよく、例えば、８～３０μｍ、又は１２～２５μｍであってよい。

[0053] 上記アルコキシシリル基を有する化合物は、ケイ素原子及び炭素原子を構成原子として有している。上記アルコキシシリル基を有する化合物は、例えば、下記一般式（１）で表される化合物を含んでよい。

一般式（１）：$(RO)_3Si(CH_2)_nM$

［上記一般式（１）中、Ｒは炭素数1以上のアルキル基を示し、Ｍはエポキシ基、アミノ基及びヒドロキシシリル基から選ばれる官能基であり、ｎは１０以下である］

[0054] 上記一般式（１）中、Ｒは炭素数1以上のアルキル基であるが、例えば、炭素数１～３のアルキル基であってよく、具体的には、メチル基、エチル基及びプロピル基からなる群より選択される少なくとも一種であってよく、メチル基又はエチル基であってよく、メチル基であってよい。一般式（１）中、複数存在するＲは互いに同一であっても異なってもよいが、入手の容易性の観点から、同一であってよい。

[0055] 上記一般式（１）中、Ｍはエポキシ基、アミノ基及びヒドロキシシリル基から選ばれる官能基であるが、例えば、本開示に係る凝集粒子を含む窒化ホウ素粉末を樹脂に充填して用いる際の、対象となる樹脂との親和性等を向上させる観点から、上記官能基を選択することができる。例えば、エポキシ樹脂に充填して用いる場合、上記一般式（１）中におけるＭはエポキシ基を含むことが好ましい。

[0056] 上記一般式（１）中、ｎは１～１０、２～８、又は３～７であってよく、窒化ホウ素粉末中の凝集粒子の大きさと圧壊強さとの双方により優れる観点から、２～８の範囲の整数であることが好ましい。

[0057] 上記アルコキシシリル基を有する化合物は、具体的には、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、及び８－グリシドキシオクチルトリメトキシシラン等が挙げられる。上記アルコキシシリル基を有する化合物としては、３－グリシ

ドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、及び８－グリシドキシオクチルトリメトキシシランを含むことが好ましい。

[0058] 上述の製造方法において、原料粉末に配合するアルコキシシリル基を有する化合物は、必ずしも１種類である必要はなく、複数の化合物を併用してもよい。

[0059] 上述の製造方法における加熱処理の加熱温度の下限値は、例えば、１３０℃以上、１５０℃以上、又は２００℃以上であってよい。上記加熱温度の下限値を上記範囲内とすることで、アルコキシシリル基を有する化合物の反応をより十分なものとし、凝集粒子の圧壊強さをより向上し得る。上記加熱処理の加熱温度の上限値は、例えば、３００℃以下、又は２５０℃以下であってよい。上記加熱温度の上限値を上記範囲内とすることで、アルコキシシリル基を有する化合物の分解をより十分に抑制できる。

[0060] 上述の製造方法における加熱処理の加熱時間の下限値は、例えば、０．５時間以上、又は１時間以上であってよい。上記加熱時間の下限値を上記範囲内とすることで、アルコキシシリル基を有する化合物の反応をより十分なものとし、凝集粒子の圧壊強さをより向上し得る。上記加熱処理の加熱時間の上限値は、例えば、１０時間以下、８時間以下、６時間以下、又は５時間以下であってよい。上記加熱時間の上限値を上記範囲内とすることで、より短時間で加熱処理を終えることができ、生産性の更なる向上を見込み得る。

[0061] 以上、幾つかの実施形態について説明したが、本開示は上記実施形態に何ら限定されるものではない。また、上述した実施形態についての説明内容は、互いに適用することができる。

実施例

[0062] 以下、本開示について、実施例及び比較例を用いてより詳細に説明する。なお、本開示は以下の実施例に限定されるものではない。

[0063] （実施例１）

原料粉末として、一次粒子の平均粒子径が１５μｍである窒化ホウ素粉末

（デンカ株式会社製、グレード：ＳＧＰ）を用いた。

[0064] ［窒化ホウ素粉末の製造］

上述のようにして調製した原料粉末１０質量部と、アルコキシシリル基を有する化合物として３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業株式会社製）０．５質量部とを容器に測り取り、ミキサーを用いて５分間混合し、１３０℃で、２時間、加熱し、乳鉢で解砕して、１５０μｍ網目の篩いでふるうことによって、窒化ホウ素粉末を得た。得られた窒化ホウ素粉末を走査型電子顕微鏡にて観察した画像を図１に示す。

[0065] ＜窒化ホウ素粉末の性状評価＞

上述のようにして得られた窒化ホウ素粉末について、粉末の平均粒子径、粉末を構成する成分の各原子数割合、及び凝集粒子の圧壊強さを後述する方法に沿って評価した。結果を表１に示す。

[0066] ［粉末の平均粒子径の測定］

窒化ホウ素粉末の平均粒子径は、ＪＩＳ　Ｚ　８８２５：２０１３「粒子径解析－レーザー回折・散乱法」に記載の方法に準拠して測定した。測定には、レーザー回折散乱法粒度分布測定装置（マイクロトラック社製、製品名「ＭＴ３３００ＥＸＩＩ」）を用いた。なお、窒化ホウ素粉末の平均粒子径の測定の際には、測定対象となる粉末に対するホモジナイザー等による処理は行わずに測定を行った。

[0067] ［粉末における構成元素の組成測定］

窒化ホウ素粉末における構成元素の組成を測定した。窒化ホウ素粉末中の炭素を除く元素の原子数は、蛍光Ｘ線（ＸＲＦ）分析装置（株式会社リガク製、製品名「Ｐｒｉｍｕｓ ＩＩ」）を用いて測定した。窒化ホウ素粉末中の炭素の原子数は炭素／硫黄同時分析計（ＬＥＣＯ社製、製品名「ＩＲ－４１２型」）を用いて測定した。

[0068] ［凝集粒子の圧壊強さの測定］

凝集粒子の圧壊強さは、ＪＩＳ　Ｒ　１６３９－５：２００７「ファインセラミックス－か（顆）粒特性の測定方法－第５部：単一か粒圧壊強さ」の

記載に準拠して測定した。測定には、微小圧縮試験器（株式会社島津製作所製、製品名「ＭＣＴ－Ｗ５００」）を用いた。なお、測定は、２０個以上の凝集粒子に対して行い、累積破壊率６３．２％時点の値を算出した。

[0069] ＜窒化ホウ素粉末の充填材としての評価＞

得られた窒化ホウ素粉末を樹脂への充填材として用いた際の放熱性の評価を行った。

[0070] ［評価用シートの調製］

ナフタレン型エポキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、商品名：８０６）６．７５質量部と、硬化剤としてイミダゾール化合物（三菱ケミカル株式会社製、商品名：１１３）０．５２質量部との合計量に対して、窒化ホウ素粉末が１０質量部となるように混合して樹脂組成物を得た。樹脂組成物中の上記窒化ホウ素粉末の割合が６５体積％であった。樹脂との混練には株式会社シンキー製のあわとり練太郎を用いた。混練の条件は、１００Ｐａの減圧下で、２０００ｒｐｍで５分間とした。得られた樹脂組成物をＰＥＴフィルム上に厚さが０．３ｍｍになるように塗布した。その後、温度１５０℃、５０ｋｇｆ／ｃｍ^{2}の条件で３０分間の比較的温和な条件で加熱及び加圧を行うことによって、０．３ｍｍの樹脂シート（評価用シート）を作製した。

[0071] ［熱伝導率の測定］

熱伝導率の測定は定常法で、ＡＳＴＭ　Ｄ５４７０に準拠して行った。測定には、樹脂材料熱抵抗測定装置（株式会社日立テクノロジーアンドサービス社製、製品名：ＴＲＭ－０４６ＲＨＨＴ）を用いた。樹脂組成物は幅１０ｍｍ×１０ｍｍに加工し、２Ｎの荷重をかけながら、厚み方向の熱抵抗値の測定を実施した。結果を表１に示す。

[0072] （実施例２，３）

表１に記載のとおり成分及び配合量を調整したこと以外は、実施例１と同様にして、窒化ホウ素粉末を調製した。得られた窒化ホウ素粉末について、実施例１と同様の評価を行った。結果を表１に示す。

[0073] （比較例１）

アルコキシシリル基を有する化合物を用いなかったこと以外は、実施例１と同様にして、窒化ホウ素粉末を調製した。得られた窒化ホウ素粉末について、実施例１と同様の評価を行った。結果を表１に示す。得られた窒化ホウ素粉末を走査型電子顕微鏡にて観察した画像を図２に示す。

[0074] [表1]

			実施例１	実施例２	実施例３	比較例１
原料粉末	一次粒子の平均粒子径[μm]		18	18	18	18
	配合量[質量部]		10	10	10	10
アルコキシシリル基を有する化合物	配合量[質量部]		0.5	1.0	1.5	－
窒化ホウ素粉末	平均粒子径[μm]		35	43	51	18
	XPS測定	ホウ素原子(B)	100	100	100	100
		窒素原子(N)	100	100	100	100
		ケイ素原子(Si)	0.4	0.9	1.3	－
		炭素原子(C)	4.7	9.2	13.7	－
		酸素原子(O)	2.6	5.1	7.6	－
		Si/B	0.40×10^{-2}	0.90×10^{-2}	1.30×10^{-2}	－
		C/B	4.70×10^{-2}	9.20×10^{-2}	13.70×10^{-2}	－
		N/B	1.00	1.00	1.00	1.00
		C/Si	11.7	10.2	10.5	－
	凝集粒子の圧壊強さ[MPa]		0.4	0.8	1.1	－
評価	放熱シートの熱伝導率[W/mK]		5.0	5.8	6.2	3.1

産業上の利用可能性

[0075] 本開示によれば、厚み方向の放熱性に優れる樹脂シートを調製可能な窒化ホウ素粉末及びその製造方法を提供できる。

請求の範囲

[請求項1] 六方晶窒化ホウ素の一次粒子を複数含有する凝集粒子を含む、窒化ホウ素粉末であって、

平均粒子径が２０μｍ以上であり、

ホウ素原子に対するケイ素原子の原子数比が０．１０×１０$^{-2}$以上であり、且つ、ホウ素原子に対する炭素原子の原子数比が３．００×１０$^{-2}$以上である、窒化ホウ素粉末。

[請求項2] ホウ素原子に対する窒素原子の原子数比が１．００以上である、請求項１に記載の粉末。

[請求項3] ケイ素原子に対する炭素原子の原子数比が２０．０以下である、請求項１又は２に記載の粉末。

[請求項4] 前記一次粒子の平均粒子径が１５μｍ以上である、請求項１又は２に記載の粉末。

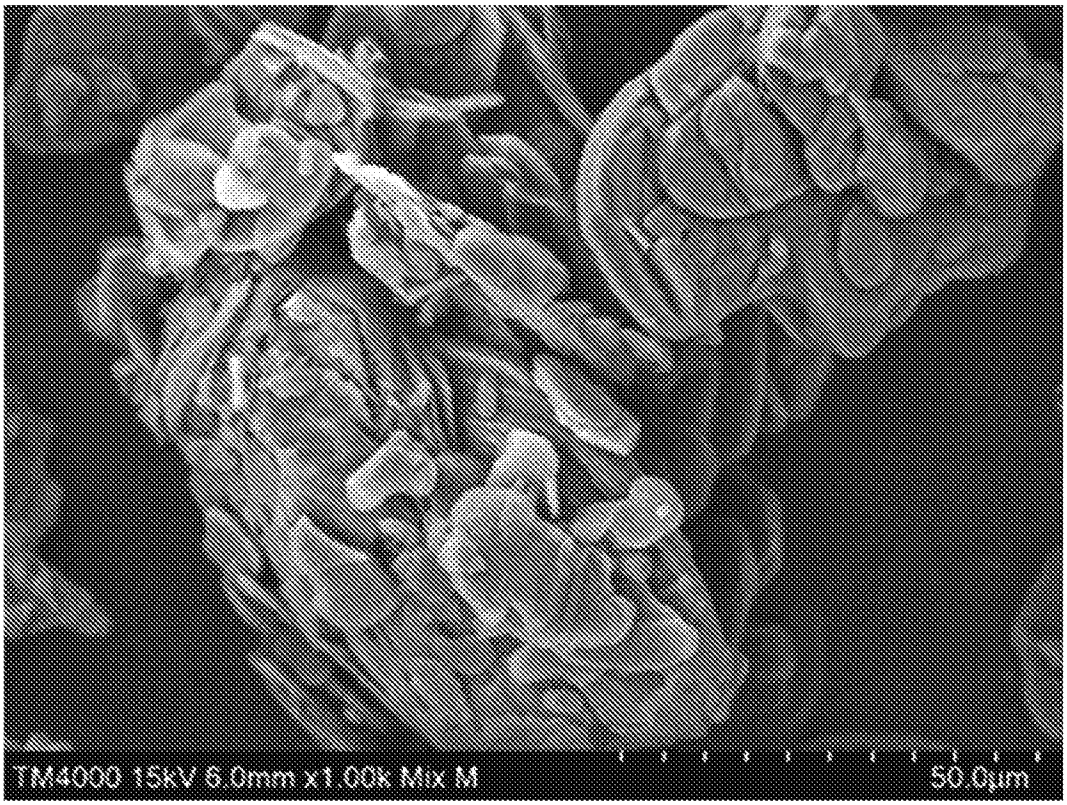
[請求項5] 前記凝集粒子の圧壊強さが０．１～２．０ＭＰａである、請求項１又は２に記載の粉末。

[請求項6] 前記窒化ホウ素粉末の平均粒子径が３０～８０μｍである、請求項１又は２に記載の粉末。

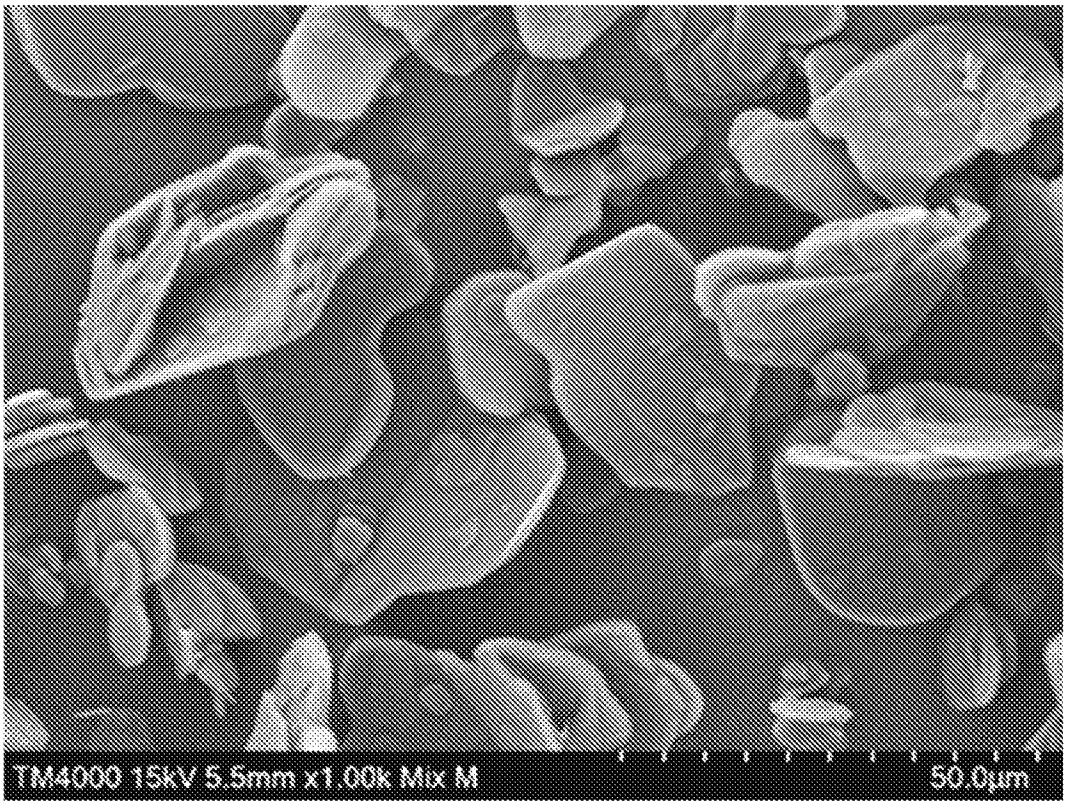
[請求項7] 六方晶窒化ホウ素の一次粒子で構成される原料粉末と、アルコキシシリル基を有する化合物とを混合し、加熱処理することで、前記一次粒子を複数含有する凝集粒子を形成すること、を有する、窒化ホウ素粉末の製造方法。

[請求項8] 前記アルコキシシリル基を有する化合物が、一般式（１）：（ＲＯ）$_3$Ｓｉ（ＣＨ$_2$）ｎＭ［前記一般式（１）中、Ｒは炭素数1以上のアルキル基を示し、Ｍはエポキシ基、アミノ基及びヒドロキシシリル基から選ばれる官能基であり、ｎは１０以下である］で表される、請求項７に記載の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/009642

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 21/064(2006.01)i; ***C08K 3/38***(2006.01)i; ***C08L 101/00***(2006.01)i
FI: C01B21/064 M; C08K3/38; C08L101/00

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)

C01B21/064; C08K3/38; C08L101/00

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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.
X	WO 2018/066277 A1 (DENKA CO., LTD.) 12 April 2018 (2018-04-12) claims, paragraphs [0142]-[0146], [0154], table 3	1-3, 6-8
A		4-5
X	JP 2022-183821 A (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 13 December 2022 (2022-12-13) claims, paragraphs [0025], [0062], [0094], [0096], tables 1-2	1-4, 6
Y		5
A		7-8
X	WO 2022/070718 A1 (FUJIFILM CORPORATION) 07 April 2022 (2022-04-07) claims, paragraphs [0163]-[0172], table 1	1-4, 6
Y		5
A		7-8

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
22 May 2024	**04 June 2024**

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/009642

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2019/188444 A1 (TOKUYAMA CORPORATION) 03 October 2019 (2019-10-03) claims, paragraphs [0034], [0053], [0097], [0103], [0105]-[0107], tables 1-2	1-4, 6-8
A		5
Y	JP 2018-104253 A (DENKA CO., LTD.) 05 July 2018 (2018-07-05) claims, paragraph [0023]	5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/009642

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2018/066277 A1	12 April 2018	US 2020/0040245 A1 claims, paragraphs [0327]-[0334], [0348], table 3 EP 3524573 A1 CN 109790025 A KR 10-2019-0058482 A	
JP 2022-183821 A	13 December 2022	US 2022/0389229 A1 claims, paragraphs [0030], [0069], [0109], [0111], tables 1-2	
WO 2022/070718 A1	07 April 2022	TW 202212251 A	
WO 2019/188444 A1	03 October 2019	TW 201942049 A	
JP 2018-104253 A	05 July 2018	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/009642

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C01B 21/064(2006.01)i; C08K 3/38(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i
FI: C01B21/064 M; C08K3/38; C08L101/00

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））

C01B21/064; C08K3/38; C08L101/00

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４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 2018/066277 A1（デンカ株式会社）12.04.2018（2018-04-12） 請求の範囲，段落0142-0146,0154，表3	1-3,6-8
A		4-5
X	JP 2022-183821 A（スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー）13.12.2022（2022-12-13） 特許請求の範囲，段落0025,0062,0094,0096，表1-2	1-4,6
Y		5
A		7-8
X	WO 2022/070718 A1（富士フイルム株式会社）07.04.2022（2022-04-07） 請求の範囲，段落0163-0172，表1	1-4,6
Y		5
A		7-8

☑ 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
"D" 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
"E" 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L" 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P" 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
"T" 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
"X" 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
"Y" 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
"&" 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
22.05.2024	04.06.2024

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）

宮脇　直也 4G 1588

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2019/188444 A1（株式会社トクヤマ）03.10.2019（2019-10-03） 請求の範囲，段落0034,0053,0097,0103,0105-0107，表1-2	1-4,6-8
A		5
Y	JP 2018-104253 A（デンカ株式会社）05.07.2018（2018-07-05） 特許請求の範囲，段落0023	5

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/JP2024/009642

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2018/066277 A1	12.04.2018	US 2020/0040245 A1 請求の範囲，段落0327-0334,0348，表3 EP 3524573 A1 CN 109790025 A KR 10-2019-0058482 A	
JP 2022-183821 A	13.12.2022	US 2022/0389229 A1 請求の範囲，段落0030,0069,0109,0111，表1-2	
WO 2022/070718 A1	07.04.2022	TW 202212251 A	
WO 2019/188444 A1	03.10.2019	TW 201942049 A	
JP 2018-104253 A	05.07.2018	（ファミリーなし）	