

(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
2018年4月26日(26.04.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/074349 A1

(51) 国際特許分類:

C08F 297/02 (2006.01) C08L 53/00 (2006.01)
C08F 290/06 (2006.01) C09C 3/00 (2006.01)
C08K 3/28 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/037141

(22) 国際出願日: 2017年10月13日(13.10.2017)

(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 2016-205454 2016年10月19日(19.10.2016) 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: 岡戸 俊明 (OKADO, Toshiaki); 〒2900045 千葉県市原市五井南海岸12-54 日本曹達株式会社 千葉研究所内 Chiba (JP). 大隅 祥太 (OSUMI, Shota); 〒2900045 千葉県市原市五井南海岸12-54 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19号 アドレスビル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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

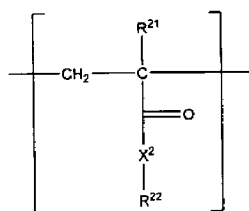
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, 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:

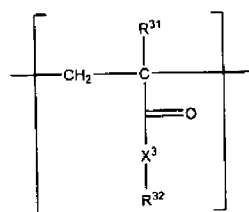
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: DISPERSING AGENT FOR INORGANIC NITRIDES AND INORGANIC NITRIDE DISPERSION COMPOSITION

(54) 発明の名称: 無機窒化物用分散剤、無機窒化物分散組成物



[II]



[III]

(57) Abstract: The present invention addresses the problem of providing a dispersing agent for inorganic nitrides which is capable of well dispersing microparticles of an inorganic nitride such as boron nitride in a dispersion medium such as an organic solvent and which has a high heat resistance. The dispersing agent according to the present invention for inorganic nitrides comprises a block copolymer which comprises: block chain (A) containing a repeating unit having a carboxyl group; and block chain (B) containing at least one member selected from the group consisting of a repeating unit represented by formula [II] (in formula [II]; R²¹ represents a hydrogen atom or a C₁₋₆ alkyl group; X² represents -NH- or -O-; and R²² represents a hydrocarbon group) and a repeating unit represented by formula [III] (in formula [III]; R³¹ represents a hydrogen atom or a C₁₋₆ alkyl group; X³ represents -NH- or -O-; and R³² represents a group having an etheric oxygen atom), provided that the block copolymer is free from a tertiary amino group or a quaternary ammonium base.

(57) 要約：本発明の課題は、窒化ホウ素などの無機窒化物微粒子を、有機溶媒などの分散媒に良好に分散することができ、かつ耐熱性に優れる無機窒化物用分散剤を提供することである。本発明の無機窒化物用分散剤は、カルボキシル基を有する繰り返し単位を含むブロック鎖（A）と、式〔II〕（式〔II〕中、 R^{21} は、水素原子またはC 1～6 アルキル基を示し、 X^2 は、 $-NH-$ または $-O-$ を示し、 R^{22} は、炭化水素基を示す。）で表わされる繰り返し単位及び式〔III〕（式〔III〕中、 R^{31} は、水素原子またはC 1～6 アルキル基を示し、 X^3 は、 $-NH-$ または $-O-$ を示し、 R^{32} は、エーテル性酸素原子を有する基を示す。）で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種を含むブロック鎖（B）を含むブロック共重合体を含む。ただし、前記ブロック共重合体は、3級アミノ基、4級アンモニウム塩基を含まない。

明 細 書

発明の名称：無機窒化物用分散剤、無機窒化物分散組成物

技術分野

[0001] 本発明は、新規の無機窒化物分散剤、無機窒化物分散組成物に関する。本願は、2016年10月19日に出願された日本国特許出願第2016-205454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

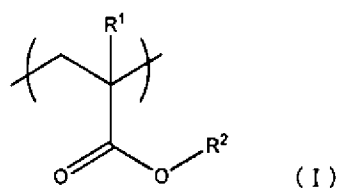
[0002] 微粒子化した物質を樹脂や溶媒に均一に分散させた材料が、様々な分野で求められている。物質を微粒子化すると、一般に凝集体を形成するため、微粒子を樹脂や溶媒に分散させる際には、何らかの方法で凝集体を解砕する必要がある。凝集体を解砕する方法としては、機械的分散や界面化学的方法などがある。界面化学的方法の一つとして、高分子分散剤を用いる方法が知られている。

[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）

[0005]

[化1]

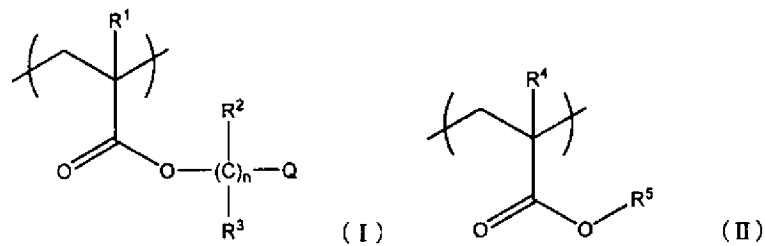


[0006] (式中、 R^1 は、水素原子又はC 1～C 3アルキル基を表し、 R^2 は、脂肪族炭化水素基又は脂環式炭化水素基を表す。)で表される繰り返し単位を含むブロック鎖(B)とを含有し、式(I)で表される繰り返し単位の共重合割合がブロック鎖(B)中90質量%以上である共重合体が提案されている。当該共重合体は、塗料、印刷インク、インクジェットインク、カラーフィルタ用顔料分散物等における顔料分散に有用であると記載されている。

[0007] 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、下記式(II)で表される繰り返し単位の共重合割合が、下記式(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。

[0008]

[化2]



[0009] 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。

[0010] 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、微粒子化した無機粒子を各種溶媒に分散させる必要がある。しかし、無機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。無機粒子のなかでも、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、窒化ホウ素微粒子や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。

また、特許文献6では、窒化ホウ素粒子とエポキシ樹脂とを含むエポキシ樹脂組成物に含有される分散剤であって、少なくとも二種類のアクリル系モノマーにより形成されてなる共重合体である分散剤が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0011] 特許文献1：WO2011/129078パンフレット

特許文献2：WO2012/001945パンフレット

特許文献3：WO 2012／063435パンフレット

特許文献4：WO 2014／109308パンフレット

特許文献5：WO 2014／132445パンフレット

特許文献6：特開2008－266406号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] 窒化ホウ素などの無機窒化物微粒子を、有機溶媒などの分散媒に良好に分散することができる新規の無機窒化物用分散剤が求められていた。また、分散剤を用いて各種分散媒に無機窒化物粒子を分散した材料は、加熱条件下で加工される場合があるため、耐熱性に優れる無機窒化物用分散剤が求められていた。

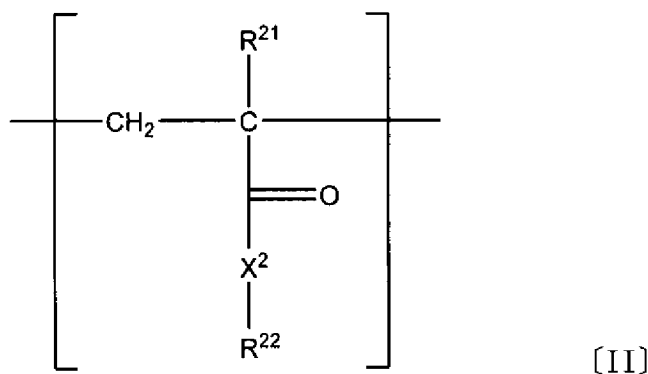
課題を解決するための手段

[0013] 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。

[0014] すなわち本発明は、以下の発明に関する。

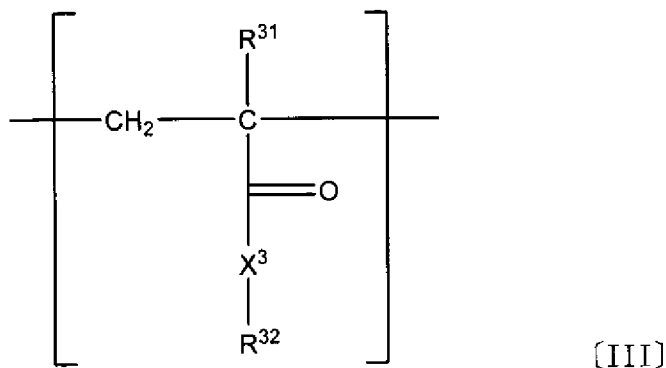
(1) カルボキシル基を有する繰り返し単位を含むブロック鎖(A)と、式〔II〕で表わされる繰り返し単位及び式〔III〕で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種を含むブロック鎖(B)を含むブロック共重合体を含む無機窒化物用分散剤。ただし、前記ブロック共重合体は、3級アミノ基、4級アンモニウム塩基を含まない。

[化3]



(式〔II〕中、 R^{21} は、水素原子またはC 1～6 アルキル基を示し、 X^2 は、 $-NH-$ または $-O-$ を示し、 R^{22} は、炭化水素基を示す。)

[化4]

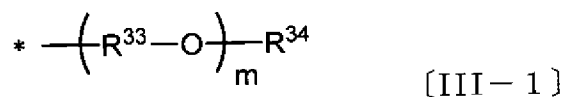


(式〔III〕中、 R^{31} は、水素原子またはC 1～6 アルキル基を示し、 X^3 は、 $-NH-$ または $-O-$ を示し、 R^{32} は、エーテル性酸素原子を有する基を示す。)

(2) 式〔II〕中、 R^{22} の炭化水素基が、アルキル基、アリールアルキル基、ヘテロアリールアルキル基、シクロアルキル基、またはアリル基である(1)に記載の無機窒化物用分散剤。

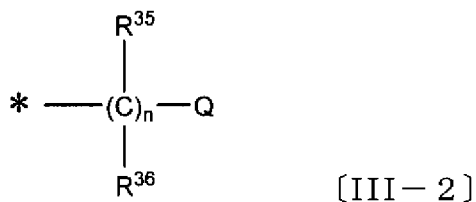
(3) 式〔III〕中 R^{32} のエーテル性酸素原子を有する基が、式〔III-1〕または式〔III-2〕である(1)に記載の無機窒化物用分散剤。

[化5]



(式〔III-1〕中、 R^{33} 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^{34} は、水素原子またはアルキル基を示す。*は結合位置を示す。)

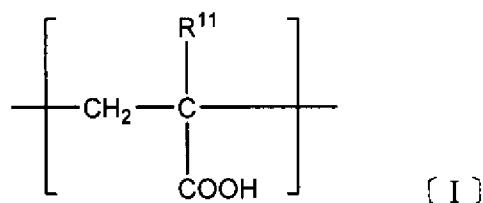
[化6]



(式〔III-2〕中、 R^{35} 及び R^{36} は、それぞれ独立に、水素原子又はC1～C6アルキル基を表し、Qは、置換基としてC1～C6アルキル基を有していてもよい含酸素飽和ヘテロ環基を示し、nは、0～6のいずれかの整数を示す。＊は結合位置を示す。)

(4) カルボキシル基を有する繰り返し単位が、式〔I〕で表される繰り返し単位である(1)に記載の無機窒化物用分散剤。

[化7]



(式〔I〕中、 R^{11} は、水素原子またはC1～6アルキル基を示す。)

(5) ブロック鎖(A)とブロック鎖(B)の総重量に対するブロック鎖(A)の割合が、15重量%以上70重量%以下である(1)～(4)いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。

(6) ブロック共重合体の数平均分子量(M_n)が2,000～100,000である(1)～(5)いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。

(7) 無機窒化物が、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素または窒化ガリウムのいずれかである(1)～(6)いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。

(8) (1)～(6)いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤と、分散媒と、無機窒化物とを含有する組成物。

(9) 無機窒化物が、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素または窒化ガリウムのいずれかである(8)に記載の組成物。

(10) 無機窒化物粒子表面に(1)～(6)いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤が付着した微粒子。

(11) 無機窒化物粒子が、窒化ホウ素微粒子、窒化アルミニウム微粒子、窒化ケイ素微粒子または窒化ガリウム微粒子のいずれかである(10)に記載の微粒子。

発明の効果

[0015] 本発明の無機窒化物用分散剤は、窒化ホウ素などの無機窒化物粒子を分散媒に分散することができる。また、本発明の無機窒化物用分散剤は耐熱性に優れる。

発明を実施するための形態

[0016] (無機窒化物用分散剤)

本発明の無機窒化物用分散剤は、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共重合体を含む。本発明の無機粒子分散剤は、当該ブロック共重合体以外に、公知の高分子分散剤を含有していてもよい。

本発明のブロック共重合体は、3級アミノ基、4級アンモニウム塩基を含まないものであるのが好ましい。

[0017] 本発明に用いるブロック共重合体の数平均分子量(M_n)は、2,000～100,000、2,000～50,000、2,000～30,000とすることができる。また、本発明に係るブロック共重合体の分子量分布は、重量平均分子量/数平均分子量(M_w/M_n)の比で、1.0～2.5、1.0～2.4、1.0～2.3、1.0～2.2、1.0～2.1、1.0～2.0などを選択することができる。

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。

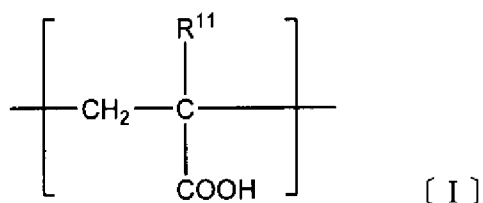
[0018] 本発明のブロック共重合体は、ブロック鎖（A）およびブロック鎖（B）以外に他のブロック鎖を含有していてもよいが、本発明のブロック共重合体中のブロック鎖（A）及び（B）の総含有量は、通常、1～100重量%、好ましくは50～100重量%、特に好ましくは、100重量%である。

ブロック鎖（A）とブロック鎖（B）の総重量に対するブロック鎖（A）の割合は、15重量%～70重量%、15重量%～65重量%、15重量%～60重量%、15重量%～55重量%、15重量%～50重量%、20重量%～70重量%、20重量%～65重量%、20重量%～60重量%、20重量%～55重量%、20重量%～50重量%などを選択することができる。

[0019] （カルボキシル基を有する繰り返し単位を含むブロック鎖（A））

ブロック鎖（A）は、カルボキシル基（—COOH基）を有する繰り返し単位を含む。カルボキシル基を有する繰り返し単位は、繰り返し単位中にカルボキシル基を有する限り特に限定されないが、式〔I〕で表される繰り返し単位であるのが好ましい。

[0020] [化8]



[0021] 式〔I〕中、R¹¹は、水素原子またはC1～6アルキル基を示す。

R¹¹におけるC1～6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-ヘキシルなどを挙げることができる。

[0022] ブロック鎖（A）に含まれるカルボキシル基を有する繰り返し単位の割合は、ブロック鎖（A）の総重量に対して、10～100重量%、20～10

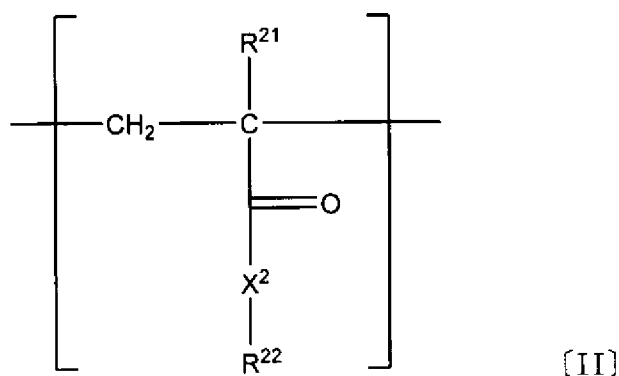
0重量%、30～100重量%、40～100重量%、50～100重量%、60～100重量%、70～100重量%、80～100重量%、90～100重量%、100重量%などを選択することができる。これらのうち、100重量%であるのが好ましい。

[0023] (ブロック鎖 (B))

ブロック鎖 (B) は、式 [II] で表わされる繰り返し単位及び式 [III] で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。

ブロック鎖 (B) は、式 [II] で表される繰り返し単位を有するか、式 [I II] で表される繰り返し単位を有するか、式 [II] および式 [III] で表される繰り返し単位を両方有するもののいずれかである。ここで、式 [II] で表される繰り返し単位及び式 [III] で表される繰り返し単位は、それぞれ、1種でも良いし、2種以上であっても良い。

[0024] [化9]



[0025] 式 [II] 中、 R^{21} は、水素原子またはC 1～6アルキル基を示す。

R^{21} におけるC 1～6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-ヘキシルなどを挙げることができる。

[0026] 式 [II] 中、 X^2 は、-NH-または-O-を示す。

[0027] 式 [II] 中、 R^{22} は、炭化水素基を示す。 R^{22} の炭化水素基として、好ましくは、アルキル基、アリールアルキル基、ヘテロアリールアルキル基、シクロアルキル基、アリル基などを挙げるすることができる。

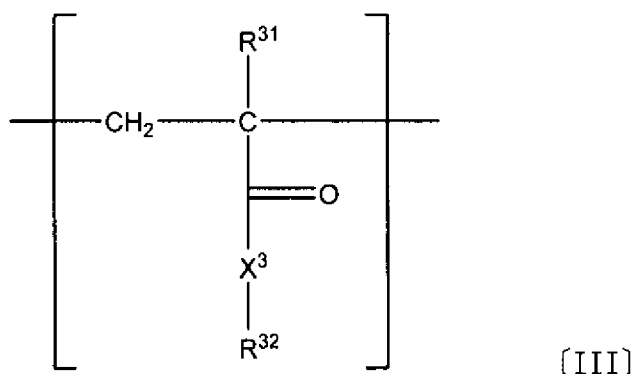
R²²におけるアルキル基としては、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、s-ブチル、i-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシルなどのC 1～6の基を挙げることができる。

R²²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C 6～10のアリール基とC 1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

R²²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C 1～6のアルキル基の結合した基を挙げることができる。

R²²におけるシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などのC 3～6シクロアルキル基を挙げることができる。

[0028] [化10]



[0029] 式 [III] 中、R³¹は、水素原子またはC 1～6アルキル基を示す。

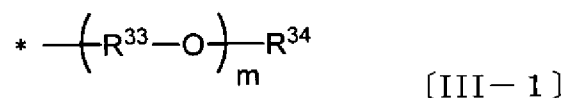
R³¹におけるC 1～6アルキル基としては、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、s-ブチル、i-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシルなどを挙げることができる。

[0030] 式 [III] 中、X³は、-NH-または-O-を表す。

[0031] 式 [III] 中、R³²は、エーテル性酸素原子を有する基を示す。エーテル性

酸素原子を有する基は、エーテル性酸素原子を有する限り特に制限されないが、以下で説明する、式〔III-1〕または式〔III-2〕であるのが好ましい。

[0032] [化11]



[0033] 式〔III-1〕中、 R^{33} は、アルキレン基を示す。 R^{33} 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C1~10の基が挙げられる。

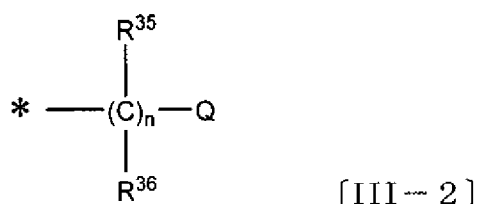
式〔III-1〕中、 m は、1~100のいずれかの整数を表す。

[0034] 式〔III-1〕中、 R^{34} は、水素原子またはアルキル基を表す。

R^{34} 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C1~6の基を挙げることができる。

[0035] 式〔III-1〕中、 $*$ は、 X^3 との結合位置を示す。

[0036] [化12]



[0037] 式〔III-2〕中、 R^{35} 及び R^{36} は、それぞれ独立に、水素原子又はC1~C6アルキル基を示す。 R^{35} および R^{36} におけるC1~6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-ヘキシルなどを挙げることができる。

[0038] 式〔III-2〕中、Qは、置換基としてC1～C6アルキル基を有していてもよい含酸素飽和ヘテロ環基を示す。含酸素飽和ヘテロ環基は、環上の任意の炭素原子に置換基を有していてもよい。含酸素飽和ヘテロ環基とは、酸素原子を少なくとも1個含み、更にN及びSから選ばれるヘテロ原子を1つ含んでいてもよい3～8員飽和ヘテロ環を意味し、好ましくは、3～6員飽和ヘテロ環である。

ここで、含酸素飽和ヘテロ環基としては、オキシラニル基、オキセタニル基、テトラヒドロフラニル基、テトラヒドロピラニル基を例示することができる。

[0039] 式〔III-2〕中、nは、0～6のいずれかの整数を示す。

[0040] 式〔III-2〕中、*は、X³との結合位置を示す。

[0041] ブロック鎖（B）に含まれる式〔II〕および／または式〔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、10～100重量%、20～100重量%、30～100重量%、40～100重量%、50～100重量%、60～100重量%、70～100重量%、80～100重量%、90～100重量%、100重量%などを選択することができる。

[0042] （ブロック鎖（A）及び（B）中の他の含有し得る繰り返し単位、並びにブロック共重合体中の他の含有し得る繰り返し単位）

ブロック鎖（A）及び（B）中の他の含有しうる繰り返し単位、及びブロック共重合体中の他の含有し得る繰り返し単位としては、上記以外の（メタ）アクリル酸エステル系モノマー、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。

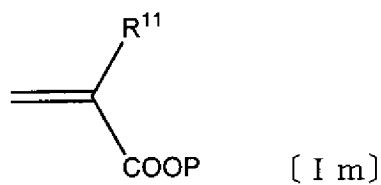
[0043] （ブロック共重合体の製造方法）

本発明のブロック共重合体の製造方法の一例を、以下説明する。

重合開始剤を含む溶媒中に、低温下にて、式〔II_m〕で表される化合物と

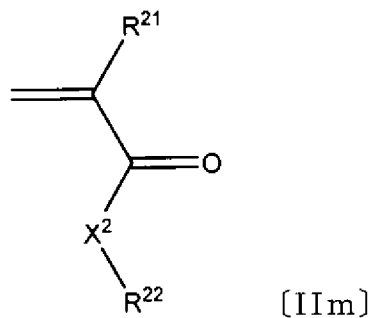
式〔III_m〕で表される化合物の混合物を添加して、リビングアニオン重合する。式〔II_m〕で表される化合物と式〔III_m〕で表される化合物の消失を確認した後、反応系内に式〔I_m〕で表される化合物を滴下し、リビングアニオン重合を行う。反応終了後、保護基Pを脱保護することにより、本発明のブロック共重合体を得ることができる。得られたブロック共重合体は、一般的な精製方法で精製することができる。

[0044] [化13]



[0045] 式〔I_m〕中、R¹¹は、式〔I〕中のR¹¹と同様である。式〔I_m〕中、Pはカルボキシ基の保護基を示す。

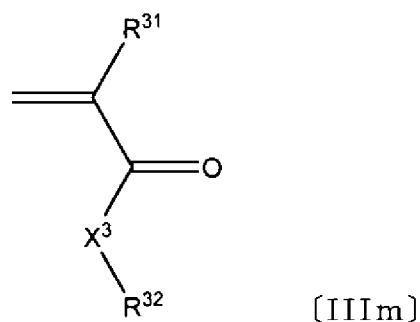
[0046] [化14]



[0047] 式〔II_m〕中、R²¹、X²、及びR²²は、式〔II〕中のR²¹、X²、及びR²²と同様である。

[0048]

[化15]



[0049] 式 [III m] 中、 R^{31} 、 X^3 、及び R^{32} は、式 [III] の R^{31} 、 X^3 、及び R^{32} と同様である。

[0050] 上記のようにして得られるブロック共重合体は、そのまま、あるいは、溶媒に溶解又は分散して無機窒化物用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る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。

本発明の無機窒化物用分散剤は、分散媒に無機窒化物粒子を均一に分散するのに好適である。

[0051] (無機窒化物分散組成物)

本発明の組成物は、無機窒化物粒子と、本発明の無機窒化物用分散剤と、分散媒とを含むものである。本発明の組成物においては、無機窒化物が分散媒に均一に分散していることが好ましい。

[0052] (無機窒化物粒子)

本発明の無機窒化物用分散剤で分散することができる無機窒化物の種類は特に限定されないが、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素または窒化ガリウムなどが挙げられる。これらの物質からなる粒子は1種単独でまたは2種以上を組み合わせで分散対象とすることができる。これらのうち、窒化ホウ素がより好ましい。

[0053] 無機窒化物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。

[0054] 本発明の組成物に含まれる無機窒化物粒子の量は、1～90重量%、5～80重量%、5～70重量%、5～60重量%、5～50重量%、5～40重量%、5～30重量%などを選択することができる。また、本発明の組成物に使用される本発明に係る無機窒化物用分散剤の量は、無機窒化物粒子100重量部に対して、1～200重量部、1～100重量部、1～50重量部などを選択することができる。

[0055] (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る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。

[0056] 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。

[0057] 熱可塑性樹脂としては、シリコーン樹脂、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、無機窒化物および無機窒化物用分散剤と混練または混合することができる。

[0058] 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-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-tert-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。

本発明の無機窒化物用分散剤と、熱可塑性樹脂と、加硫剤と、無機窒化物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、熱可塑性樹脂や無機窒化物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。

[0059] 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。

[0060] 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。

[0061] 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る用いることができる。

[0062] 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（*tert*-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（*tert*-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(登録商標)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(登録商標)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(登録商標)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、*n*-ブチルペルベンゾアート、*n*-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て用いることができる。

[0063] 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。

[0064] 本発明の無機窒化物用分散剤と無機窒化物を接触させることにより、無機窒化物粒子の表面に、本発明の無機窒化物用分散剤を付着させることができる。無機窒化物用分散剤が表面に付着した無機窒化物粒子は、表面処理をした微粒子として各種用途に使用することができる。

[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] <無機窒化物用分散剤の製造>

実施例1

フラスコにテトラヒドロフラン(以下、THF)100g、塩化リチウム0.1gを加え、-60℃まで冷却した。*n*-ブチルリチウム2.2g(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0.5gを加えて10分間攪拌した。さらに、イソ酪酸メチル0.5gを

加えて10分間攪拌した。反応系内にメタクリル酸n-ブチル(以下、nBMA)9.0g、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)9.0gの混合物を10分間かけて滴下した後、5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。次いで、メタクリル酸2-エトキシエチル(以下、EEMA)3.7gを滴下し、滴下後1時間反応継続した。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0.4gを加えて反応を停止した。

反応液をTHFおよびヘキサンで希釈し、二回水洗後、溶媒を留去した。酢酸2-メトキシ-1-メチルエチル(以下、PGMEA)で溶媒置換した後、水を添加した。加熱還流下で6時間反応させた後、水を留去しポリマー濃度が50重量%になるようPGMEAを加え分散剤Aを得た(nBMA/PEGMA-メタクリル酸(以下、MA)=45/45-10重量%)。GPC(移動相THF、PMMAスタンダード)で分析したところ、分子量(Mw)は5200、分子量分布(Mw/Mn)は1.13であった。

[0067] 実施例2

フラスコにTHF100g、塩化リチウム0.1gを加え、-60℃まで冷却した。n-ブチルリチウム2.2g(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0.5gを加えて10分間攪拌した。さらに、イソ酪酸メチル0.5gを加えて10分間攪拌した。反応系内にnBMA8.0g、PEGMA8.0gの混合物を10分間かけて滴下した後、5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。次いで、EEMA7.4gを滴下し、滴下後1時間反応継続した。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0.5gを加えて反応を停止した。

反応液をTHFおよびヘキサンで希釈し、二回水洗後、溶媒を留去した。PGMEAで溶媒置換した後、水を添加した。加熱還流下で6時間反応させた後、水を留去しポリマー濃度が30重量%になるようPGMEAを加え分

散剤Bを得た（ $n\text{BMA}/\text{PEGMA}-\text{MA}=40/40-20$ 重量％）。
GPC（移動相THF、PMMAスタンダード）で分析したところ、分子量（ M_w ）は5300、分子量分布（ M_w/M_n ）は1.13であった。

[0068] 実施例3

フラスコにTHF100g、塩化リチウム0.1gを加え、 -60°C まで冷却した。 n -ブチルリチウム2.2g（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0.5gを加えて10分間撹拌した。さらに、イソ酪酸メチル0.5gを加えて10分間撹拌した。反応系内に $n\text{BMA}$ 7.0g、 PEGMA 7.0gの混合物を10分間かけて滴下した後、5分間撹拌した。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。次いで、 EEMA 11.0gを滴下し、滴下後1時間反応継続した。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。

反応液をTHFおよびヘキサンで希釈し、二回水洗後、溶媒を留去した。 PGMEA で溶媒置換した後、水を添加した。加熱還流下で6時間反応させた後、水を留去しポリマー濃度が40重量％になるよう PGMEA を加え分散剤Cを得た（ $n\text{BMA}/\text{PEGMA}-\text{MA}=35/35-30$ 重量％）。
GPC（移動相THF、PMMAスタンダード）で分析したところ、分子量（ M_w ）は4000、分子量分布（ M_w/M_n ）は1.26であった。

[0069] 比較例1

フラスコにTHF100g、塩化リチウム0.1gを加え、 -60°C まで冷却した。 n -ブチルリチウム2.2g（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0.5gを加えて10分間撹拌した。さらに、イソ酪酸メチル0.5gを加えて10分間撹拌した。反応系内に $n\text{BMA}$ 7.0g、 PEGMA 7.0g、 EEMA 11.0gの混合物を10分間かけて滴下した後、30分間撹拌した。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後、メタノール0.5gを加えて反応を停止した。

反応液をTHFおよびヘキサンで希釈し、二回水洗後、溶媒を留去した。PGMEAで溶媒置換した後、水を添加した。加熱還流下で6時間反応させた後、水を留去しポリマー濃度が33重量%になるようPGMEAを加え分散剤Dを得た（nBMA／PEGMA／MA＝35／35／30重量%）。GPC（移動相THF、PMMAスタンダード）で分析したところ、分子量（Mw）は4400、分子量分布（Mw／Mn）は1.20であった。

[0070] 実施例4

フラスコにTHF 94 g、塩化リチウム 0.25 gを加え、−60℃まで冷却した。n-ブチルリチウム 1.5 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 0.4 gを加えて10分間撹拌した。さらに、イソ酪酸メチル 0.4 gを加えて10分間撹拌した。反応系内にnBMA 3.75 g、PEGMA 3.75 gの混合物を10分間かけて滴下した後、5分間撹拌した。一部をサンプリングし、GCを測定によりモノマー消失を確認した。次いで、t-ブチルメタクリレート（以下、TBMAと略す）12.4 gを滴下し、滴下後1時間反応継続した。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 0.5 gを加えて反応を停止した。

反応液の溶媒を留去し、トルエンで溶媒置換した後、エタノールで希釈し硫酸 2.0 gを添加した。80℃で6時間反応させた後、THFで希釈した。三回水洗後、溶媒を留去し、ポリマー濃度が31重量%になるようTHFを加え分散剤Eを得た（nBMA／PEGMA－MA＝25／25－50重量%）。GPC（移動相THF、PMMAスタンダード）で分析したところ、分子量（Mw）は3100、分子量分布（Mw／Mn）は1.26であった。

[0071] <分散組成物の製造>

[分散条件]

分散機械：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

[0072] [平均粒子径の測定条件]

分散組成物からサンプリングした分散液を、分散媒より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。

[0073] [耐熱性試験の測定条件]

分散組成物を乾燥することで得られた粉体を熱重量測定（METTLER TOLDO製 TGA/DSC、10℃/分、窒素ガス雰囲気）を用いて重量減少率を測定した。

[0074] 実施例 5

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1 平均一次粒子径（D50）500 nm）9重量部と、実施例1で得られた分散剤A2.0重量部と、メチルエチルケトン89.0重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、上記の条件で分散を行い、分散組成物A1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上記の条件で測定した。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、4200 nmであった。また、分散組成物A1を乾燥して得られた粉体の150～250℃の範囲における重量減少率は0%であった。また、前記粉体は300℃まで重量減少が確認されなかった。

[0075] 実施例 6

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1 平均一次粒子径（D50）500 nm）9重量部と、実施例2で得られた分散剤B2.5重量部と、メチルエチルケトン88.5重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、上記の条件で分散を行い、分散組成物B1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上記の条件で測定した。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、1900 nmであった。また、分散組成物B1を乾燥して得られた粉体の150～250

℃の範囲における重量減少率は0%であった。また、前記粉体は300℃まで重量減少が確認されなかった。

[0076] 実施例 7

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1 平均一次粒子径（D50）500nm）9重量部と、実施例3で得られた分散剤C3.3重量部と、メチルエチルケトン87.7重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、上記の条件で分散を行い、分散組成物C1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上記の条件で測定した。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、1200nmであった。また、分散組成物C1を乾燥して得られた粉体の150～250℃の範囲における重量減少率は0%であった。また、前記粉体は300℃まで重量減少が確認されなかった。

[0077] 比較例 2

窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1 平均一次粒子径（D50）500nm）9重量部と、比較例1で得られた分散剤D3.0重量部と、メチルエチルケトン88重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、上記の条件で分散を行い、分散組成物D1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上記の条件で測定した。分散開始後1時間の時点における窒化ホウ素微粒子の平均粒子径は、7400nmであり、2時間後は凝集して回収できなかった。

[0078] 実施例 8

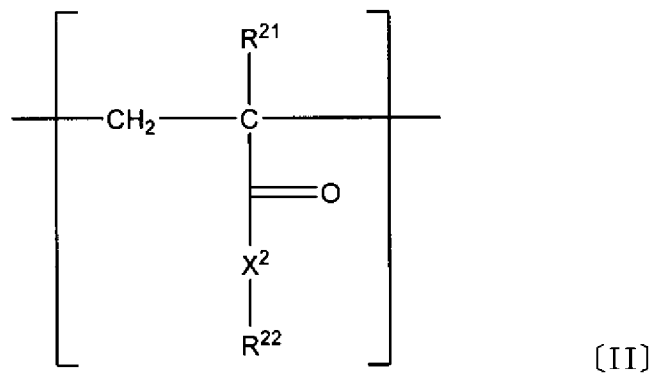
窒化ホウ素粒子（昭和電工株式会社製、UHP-S1 平均一次粒子径（D50）500nm）9重量部と、実施例4で得られた分散剤E2.5重量部と、メチルエチルケトン88.5重量部を混合した。該混合液を分散機に入れ、上記の条件で分散を行い、分散組成物E1を得た。分散開始後、一定時間ごとに、窒化ホウ素粒子の平均粒子径を上記の条件で測定した。分散開始後2時間の時点における窒化ホウ素微粒子の平均粒子径は、820nmであった。また、分散組成物E1を乾燥して得られた粉体の150～250℃

の範囲における重量減少率は０％であった。また、前記粉体は３００℃まで重量減少が確認されなかった。

請求の範囲

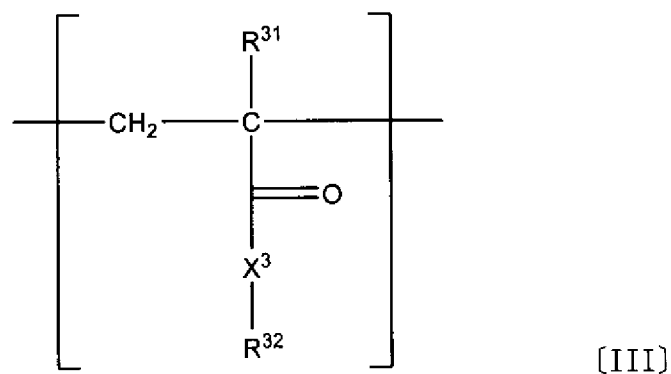
〔請求項1〕 カルボキシル基を有する繰り返し単位を含むブロック鎖（A）と、式〔II〕で表わされる繰り返し単位及び式〔III〕で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる少なくとも1種を含むブロック鎖（B）を含むブロック共重合体を含む無機窒化物用分散剤。ただし、前記ブロック共重合体は、3級アミノ基、4級アンモニウム塩基を含まない。

〔化1〕



（式〔II〕中、 R^{21} は、水素原子またはC 1～6アルキル基を示し、 X^2 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 R^{22} は、炭化水素基を示す。）

〔化2〕



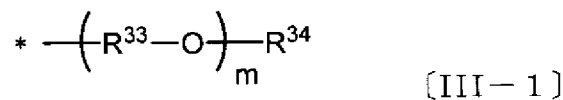
（式〔III〕中、 R^{31} は、水素原子またはC 1～6アルキル基を示し、 X^3 は、 $-\text{NH}-$ または $-\text{O}-$ を示し、 R^{32} は、エーテル性酸素原

子を有する基を示す。)

[請求項2] 式〔II〕中、 R^{22} の炭化水素基が、アルキル基、アリアルアルキル基、ヘテロアリアルアルキル基、シクロアルキル基、またはアリル基である請求項1に記載の無機窒化物用分散剤。

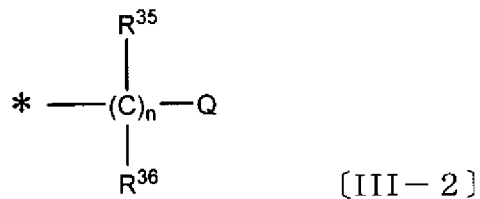
[請求項3] 式〔III〕中 R^{32} のエーテル性酸素原子を有する基が、式〔III-1〕または式〔III-2〕である請求項1に記載の無機窒化物用分散剤。

[化3]



(式〔III-1〕中、 R^{33} 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^{34} は、水素原子またはアルキル基を示す。*は結合位置を示す。)

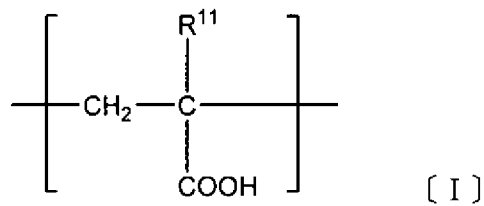
[化4]



(式〔III-2〕中、 R^{35} 及び R^{36} は、それぞれ独立に、水素原子又はC1～C6アルキル基を表し、 Q は、置換基としてC1～C6アルキル基を有していてもよい含酸素飽和ヘテロ環基を示し、 n は、0～6のいずれかの整数を示す。*は結合位置を示す。)

[請求項4] カルボキシル基を有する繰り返し単位が、式〔I〕で表される繰り返し単位である請求項1に記載の無機窒化物用分散剤。

[化5]



(式〔I〕中、 R^{11} は、水素原子またはC 1～6アルキル基を示す。)

- [請求項5] ブロック鎖（A）とブロック鎖（B）の総重量に対するブロック鎖（A）の割合が、15重量%以上70重量%以下である請求項1～4いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。
- [請求項6] ブロック共重合体の数平均分子量（ M_n ）が2,000～100,000である請求項1～5いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。
- [請求項7] 無機窒化物が、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素または窒化ガリウムのいずれかである請求項1～6いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤。
- [請求項8] 請求項1～6いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤と、分散媒と、無機窒化物とを含有する組成物。
- [請求項9] 無機窒化物が、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素または窒化ガリウムのいずれかである請求項8に記載の組成物。
- [請求項10] 無機窒化物粒子表面に請求項1～6いずれか1項に記載の無機窒化物用分散剤が付着した微粒子。
- [請求項11] 無機窒化物粒子が、窒化ホウ素微粒子、窒化アルミニウム微粒子、窒化ケイ素微粒子または窒化ガリウム微粒子のいずれかである請求項10に記載の微粒子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/037141

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08F297/02 (2006.01) i, C08F290/06 (2006.01) i, C08K3/28 (2006.01) i, C08L53/00 (2006.01) i, C09C3/00 (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)

Int.Cl. C08F297/02, C08F290/06, C08K3/28, C08L53/00, C09C3/00

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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	JP 2001-509770 A (NALCO CHEMICAL COMPANY) 24 July 2001, claims, pp. 29, 30, examples & US 5726267 A, claims, column 6, examples & WO 1998/033750 A2 & EP 887316 A1 & KR 10-1999-0007382 A	1-11
X	JP 2016-53161 A (CHIBA UNIVERSITY) 14 April 2016, claims, paragraphs [0007]-[0018], [0023], examples (Family: none)	1, 2, 4-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search
05 January 2018 (05.01.2018)

Date of mailing of the international search report
16 January 2018 (16.01.2018)

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/JP2017/037141

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2016-52613 A (CHIBA UNIVERSITY) 14 April 2016, claims, paragraphs [0010]-[0015], [0021], examples (Family: none)	1, 2, 4-11
X	JP 6-207076 A (HOECHST AG.) 26 July 1994, claims, examples & US 5643996 A, claims, examples & EP 601457 A1	1, 2, 4-11
A	JP 2016-513144 A (BASF SE) 12 May 2016, entire text & US 2015/0344368 A1, whole document & WO 2014/114784 A1 & EP 2759337 A1 & CN 105263614 A	1-11
A	WO 2015/040924 A1 (MURATA MFG. CO., LTD.) 26 March 2015, entire text & TW 201518250 A	1-11
A	US 2013/0041082 A1 (SUNDERLAND, et al.) 14 February 2013, entire text & WO 2011/139580 A2 & EP 2563505 A2 & CN 102958591 A	1-11
A	JP 2011-98323 A (TOAGOSEI CO., LTD.) 19 May 2011, entire text (Family: none)	1-11
A	JP 2008-174504 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 31 July 2008, entire text & US 2008/0175809 A1, whole document & EP 1946799 A2	1-11
A	JP 2008-18368 A (KAO CORP.) 31 January 2008, entire text (Family: none)	1-11
A	JP 9-503243 A (LVMH RECHERCHE) 31 March 1997, entire text & US 5681877 A, whole document & WO 1995/009207 A1	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08F297/02(2006.01)i, C08F290/06(2006.01)i, C08K3/28(2006.01)i, C08L53/00(2006.01)i, C09C3/00(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. C08F297/02, C08F290/06, C08K3/28, C08L53/00, C09C3/00

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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	JP 2001-509770 A (ネルコ ケミカル カンパニー) 2001.07.24, 特許請求の範囲、29, 30頁、実施例 & US 5726267 A, Claims, Column6, Examples & WO 1998/033750 A2 & EP 887316 A1 & KR 10-1999-0007382 A	1-11
X	JP 2016-53161 A (国立大学法人 千葉大学) 2016.04.14, 特許請求の範囲、【0007】-【0018】、【0023】、実施例 (ファミリーなし)	1, 2, 4-11

☑ 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

05.01.2018

国際調査報告の発送日

16.01.2018

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)

大久保 智之

4 J

3446

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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
X	JP 2016-52613 A (国立大学法人 千葉大学) 2016.04.14, 特許請求の範囲、【0010】－【0015】、【0021】、実施例（ファミリーなし）	1, 2, 4-11
X	JP 6-207076 A (ヘキスト・アクチェンゲゼルシャフト) 1994.07.26, 特許請求の範囲、実施例 & US 5643996 A, Claims, Examples & EP 601457 A1	1, 2, 4-11
A	JP 2016-513144 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア) 2016.05.12, 全文 & US 2015/0344368 A1, whole document & WO 2014/114784 A1 & EP 2759337 A1 & CN 105263614 A	1-11
A	WO 2015/040924 A1 (株式会社村田製作所) 2015.03.26, 全文 & TW 201518250 A	1-11
A	US 2013/0041082 A1 (SUNDERLAND et al.) 2013.02.14, 全文 & WO 2011/139580 A2 & EP 2563505 A2 & CN 102958591 A	1-11
A	JP 2011-98323 A (東亜合成株式会社) 2011.05.19, 全文（ファミリーなし）	1-11
A	JP 2008-174504 A (信越化学工業株式会社) 2008.07.31, 全文 & US 2008/0175809 A1, whole document & EP 1946799 A2	1-11
A	JP 2008-18368 A (花王株式会社) 2008.01.31, 全文（ファミリーなし）	1-11
A	JP 9-503243 A (エル. ヴェ. エム. アッシュ. ルシエルシエ) 1997.03.31, 全文 & US 5681877 A, whole document & WO 1995/009207 A1	1-11