





202144449

## 【發明摘要】

【中文發明名稱】硬化性組成物、導熱材料、導熱片、附導熱層的器件、化合物

【英文發明名稱】 CURABLE COMPOSITION, THERMALLY CONDUCTIVE MATERIAL, THERMALLY CONDUCTIVE SHEET, DEVICE WITH THERMALLY CONDUCTIVE LAYER, COMPOUND

### 【中文】

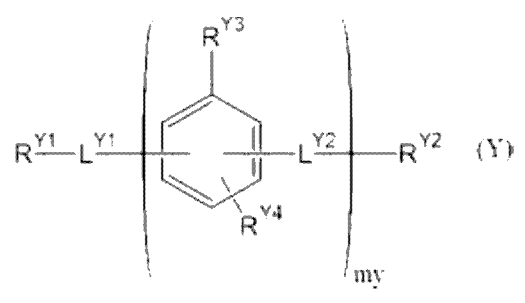
本發明提供一種能夠賦予導熱性優異之導熱材料之硬化性組成物。還提供一種有關上述硬化性組成物之導熱材料、導熱片、附導熱層的器件及化合物。本發明的硬化性組成物係包含酚化合物、環氧化合物、硬化促進劑及無機物之硬化性組成物，其中，上述酚化合物係滿足要件 1 及要件 2 中的至少一者之特定酚化合物，上述無機物的含量相對於總固體成分超過 10 質量%。要件 1：上述酚化合物係通式 (Y) 所表示之化合物。要件 2：上述酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物，該芳香環基具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基。

【指定代表圖】 無。

【代表圖之符號簡單說明】

無。

【特徵化學式】



## 【發明說明書】

【中文發明名稱】硬化性組成物、導熱材料、導熱片、附導熱層的器件、化合物

【英文發明名稱】 CURABLE COMPOSITION, THERMALLY CONDUCTIVE MATERIAL, THERMALLY CONDUCTIVE SHEET, DEVICE WITH THERMALLY CONDUCTIVE LAYER, COMPOUND

### 【技術領域】

【0001】 本發明有關一種硬化性組成物、導熱材料、導熱片、附導熱層的器件及化合物。

### 【先前技術】

【0002】 近年來，在個人電腦、普通家用電器及汽車等各種各樣的電子設備中所使用之功率半導體器件的小型化發展迅速。隨著小型化而難以控制從高密度化之功率半導體器件產生之熱量。

為了解決這種問題，使用促進從功率半導體器件散熱之導熱材料。

例如，在專利文獻 1 中，作為 B 階段狀態下的操作性及硬化物的導熱性優異之環氧樹脂組成物，公開了以預定的條件含有預定的環氧樹脂、硬化劑、填料之環氧樹脂組成物。

【0003】 [專利文獻 1]國際公開第 2017/145413 號

【0004】 本發明人等對專利文獻 1 中所記載之環氧樹脂組成物進行研究之結果，發現所獲得之硬化物的導熱性尚有改善的餘地。

## 【發明內容】

【0005】 因此，本發明的課題在於提供一種能夠賦予導熱性優異之導熱材料之硬化性組成物。

又，本發明的課題還在於提供一種有關上述硬化性組成物之導熱材料、導熱片、附導熱層的器件及化合物。

【0006】 本發明人等為了解決上述課題而進行了深入研究之結果，發現了藉由以下結構能夠解決上述課題。

## 【0007】 (1)

一種硬化性組成物，其包含酚化合物、環氧化合物、硬化促進劑及無機物，其中

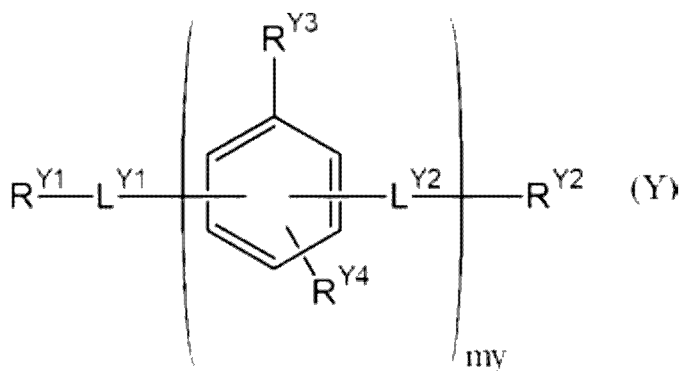
上述酚化合物滿足要件 1 及要件 2 中的至少一者，

上述無機物的含量相對於總固體成分超過 10 質量%。

要件 1：上述酚化合物係通式 (Y) 所表示之化合物。

要件 2：上述酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物，該芳香環基具有酚性羥基及配置於上述酚性羥基的鄰位之取代基。

## [化學式 1]



通式 (Y) 中，my 表示 0 以上的整數。

$R^{Y1}$  及  $R^{Y2}$  分別獨立地表示具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基。

$L^{Y1}$  及  $L^{Y2}$  分別獨立地表示  $-C(R^{Y5})(R^{Y6})-$  或  $-CO-$ 。

$R^{Y3} \sim R^{Y6}$  分別獨立地表示氫原子或取代基。

[ 2 ]

如 [ 1 ] 所述之硬化性組成物，其中，

用差示掃描測熱計測量使用上述硬化性組成物而形成之半硬化片之情況下，檢測出發熱峰之溫度為 140°C 以上。

[ 3 ]

如 [ 1 ] 或 [ 2 ] 所述之硬化性組成物，其中，

上述環氧化合物的分子量為 300 以上。

[ 4 ]

如 [ 1 ] 至 [ 3 ] 之任一項所述之硬化性組成物，其中，

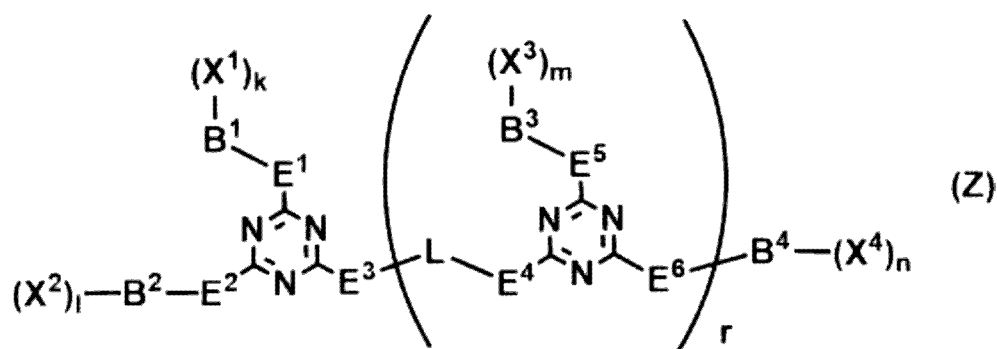
上述無機物包含平均粒徑為 20 $\mu$ m 以上的凝聚狀氮化硼。

[ 5 ]

如 [ 1 ] 至 [ 4 ] 之任一項所述之硬化性組成物，其中，

上述酚化合物包含通式 (Z) 所表示之化合物。

[化學式 2]



通式 (Z) 中， $r$  表示 0 以上的整數。

$k$ 、 $l$ 、 $m$  及  $n$  分別獨立地表示 0 以上的整數。

其中， $k$ 、 $l$ 、 $r \times m$  及  $n$  的合計為 2 以上，

$L$  表示 2 價的有機基團。

$E^1 \sim E^6$  分別獨立地表示單鍵、 $-NH-$  或  $-NR-$ 。R 表示取代基。

$B^1$  表示單鍵或  $k+1$  價的有機基團。

$B^2$  表示單鍵或  $l+1$  價的有機基團。

$B^3$  表示單鍵或  $m+1$  價的有機基團。

$B^4$  表示單鍵或  $n+1$  價的有機基團。

$X^1 \sim X^4$  分別獨立地表示具有酚性羥基之芳香環基。

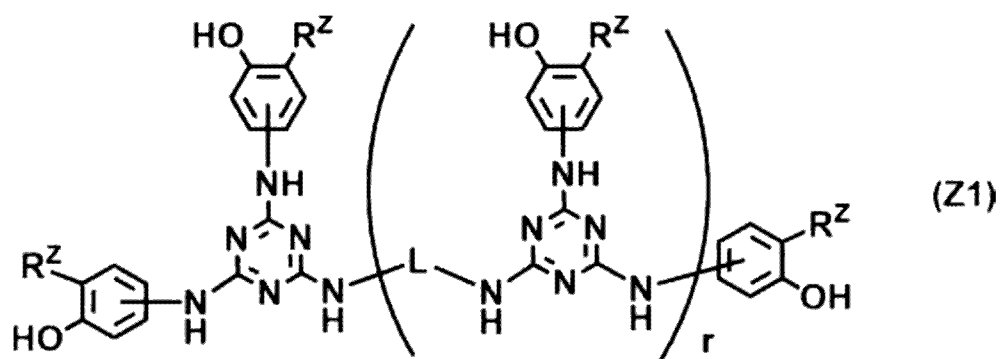
其中，存在  $k$  個之  $X^1$ 、存在 1 個之  $X^2$ 、存在  $r \times m$  個之  $X^3$  及存在  $n$  個之  $X^4$  中的至少 1 個表示具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基。

[6]

如 [1] 至 [5] 之任一項所述之硬化性組成物，其中，

上述酚化合物包含通式 (Z1) 所表示之化合物。

[化學式 3]



通式 (Z1) 中， $r$  表示 0 以上的整數。

$L$  表示 2 價的有機基團。

$R^Z$  表示氫原子或取代基。

其中，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示取代基。

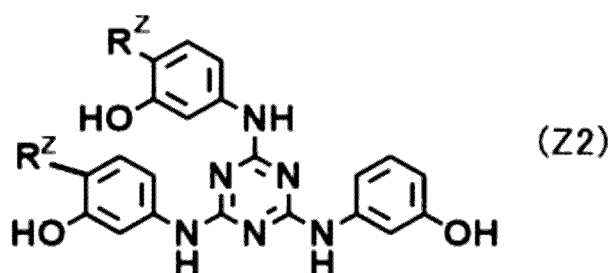
又，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示氫原子。

[ 7 ]

如 [ 1 ] 至 [ 6 ] 之任一項所述之硬化性組成物，其中，

上述酚化合物包含通式 (Z2) 所表示之化合物。

[化學式 4]



通式 (Z2) 中， $R^Z$  表示氫原子或取代基。

其中，存在 2 個之  $R^Z$  中的至少一者表示取代基。

[ 8 ]

如 [ 1 ] 至 [ 7 ] 之任一項所述之硬化性組成物，其中，

上述硬化促進劑包含含有磷原子之化合物。

〔9〕

如〔1〕至〔8〕之任一項所述之硬化性組成物，其中，  
上述硬化促進劑包含磷鹽。

〔10〕

一種導熱材料，其藉由硬化〔1〕至〔9〕之任一項所述之硬化性組成物而獲得。

〔11〕

一種導熱片，其由〔10〕所述之導熱材料構成。

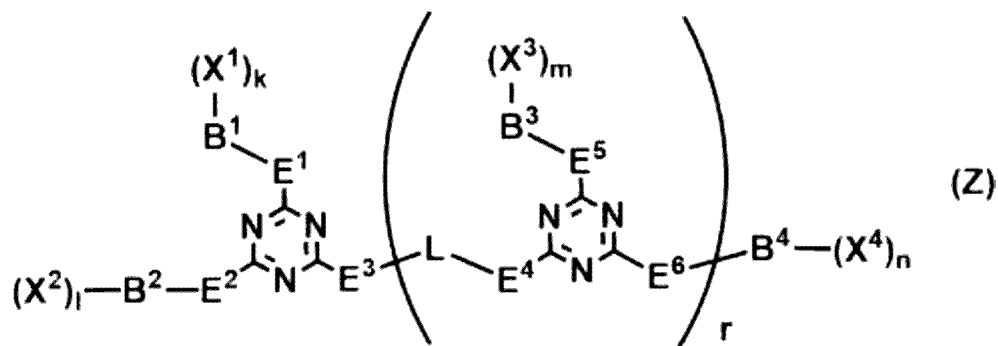
〔12〕

一種附導熱層的器件，其具有器件及配置於前述器件上之包含〔11〕所述之導熱片之導熱層。

〔13〕

一種化合物，其由通式（Z）表示。

〔化學式 5〕



通式（Z）中，r 表示 0 以上的整數。

k、l、m 及 n 分別獨立地表示 0 以上的整數。

其中，k、l、r×m 及 n 的合計為 2 以上，

L 表示 2 價的有機基團。

$E^1 \sim E^6$  分別獨立地表示單鍵、-NH-或-NR-。R 表示取代基。

$B^1$  表示單鍵或  $k+1$  價的有機基團。

$B^2$  表示單鍵或  $l+1$  價的有機基團。

$B^3$  表示單鍵或  $m+1$  價的有機基團。

$B^4$  表示單鍵或  $n+1$  價的有機基團。

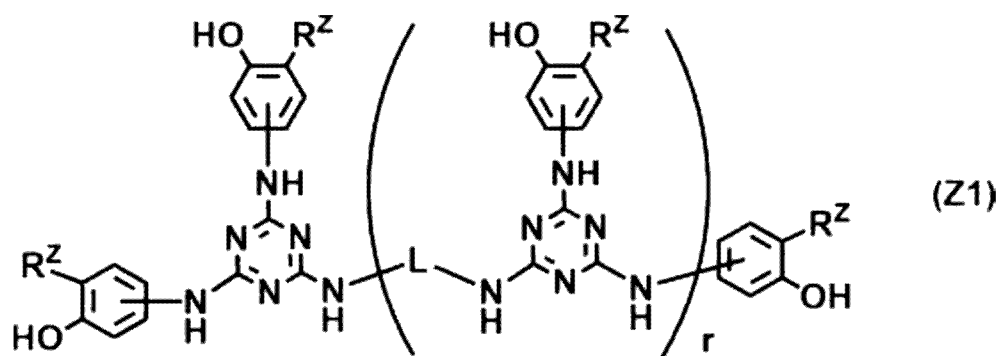
$X^1 \sim X^4$  分別獨立地表示具有酚性羥基之芳香環基。

其中，存在  $k$  個之  $X^1$ 、存在 1 個之  $X^2$ 、存在  $r \times m$  個之  $X^3$  及存在  $n$  個之  $X^4$  中的至少 1 個表示具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基。

[ 14 ]

如 [ 13 ] 所述之化合物，其由通式 (Z1) 表示。

[化學式 6]



通式 (Z1) 中， $r$  表示 0 以上的整數。

L 表示 2 價的有機基團。

$R^Z$  表示氫原子或取代基。

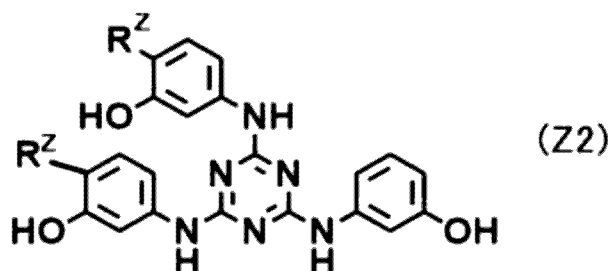
其中，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示取代基。

又，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示氫原子。

[ 15 ]

如〔13〕或〔14〕所述之化合物，其由通式（Z2）表示。

[化學式 7]



通式（Z2）中， $R^Z$ 表示氫原子或取代基。

其中，通式（Z2）中存在 2 個之  $R^Z$  中的至少一者表示取代基。

[發明效果]

**【0008】** 依本發明，能夠提供一種能夠賦予導熱性優異之導熱材料之硬化性組成物。

又，依本發明，能夠提供一種有關上述硬化性組成物之導熱材料、導熱片、附導熱層的器件及化合物。

**【實施方式】**

**【0009】** 以下，對本發明的硬化性組成物、導熱材料、導熱片、附導熱層的器件及化合物進行詳細說明。

以下所記載之構成要件的說明，有時基於本發明的代表性實施態樣來進行，但本發明並不限制於該種實施形態。

另外，本說明書中，使用“~”表示之數值範圍係指包含記載於“~”的前後之數值作為下限值及上限值之範圍。

**【0010】** 又，本說明書中，“（甲基）丙烯醯基”的記載表示“丙烯醯

基及甲基丙烯醯基中的任一者或兩者”。又，“（甲基）丙烯醯胺基”的記載表示“丙烯醯胺基及甲基丙烯醯胺基中的任一者或兩者”。

**【0011】** 本說明書中，酸酐基可以係 1 價的基團，亦可以係 2 價的基團。另外，在酸酐基表示 1 價的基團之情況下，可以舉出從順丁烯二酸酐、鄰苯二甲酸酐、均苯四甲酸酐及偏苯三甲酸酐等酸酐中去除任意的氫原子而獲得之取代基。又，在酸酐基表示 2 價的基團之情況下，意指由  $^*-CO-O-CO-^*$  表示之基團（\*表示鍵結位置）。

**【0012】** 另外，在本說明書中，關於未明確記載經取代或未經取代之取代基等，如果可能，在不損害作為目標之效果之範圍內，該基團還可以具有取代基（例如，後述之取代基群組 Y）。例如，在不損害作為目標之效果之範圍內，“烷基”之標記係指經取代或未經取代之烷基（可以具有取代基之烷基）。

又，在本說明書中，在“可以具有取代基”之情況下的取代基的種類、取代基的位置及取代基的數量並沒有特別限制。作為取代基的數量，例如，可以舉出 1 個或 2 個以上。作為取代基，例如，可以舉出除了氫原子以外的 1 價的非金屬原子團，選自以下取代基群組 Y 之基團為較佳。

本說明書中，作為鹵素原子，例如，可以舉出氟原子、氯原子、溴原子及碘原子。

**【0013】** 取代基群組 Y：

鹵素原子（-F、-Br、-Cl、-I 等）、羥基、胺基、羧酸基及其共軛鹼基、羧酸酐基、氰酸酯基、不飽和聚合性基、環氧基、氧雜環丁基、氮丙啶基、硫醇基、異氰酸酯基、硫代異氰酸酯基、醛基、烷氧基、烯丙氧基、烷硫

基、芳硫基、烷基二硫基、芳基二硫基、N-烷基胺基、N,N-二烷基胺基、N-芳基胺基、N,N-二芳基胺基、N-烷基-N-芳基胺基、醯氧基、胺甲醯氧基、N-烷基胺甲醯氧基、N-芳基胺甲醯氧基、N,N-二烷基胺甲醯氧基、N,N-二芳基胺甲醯氧基、N-烷基-N-芳基胺甲醯氧基、烷基次硫酸基、芳基次硫酸基、醯硫基、醯胺基、N-烷基醯胺基、N-芳基醯胺基、脲基、N'-烷基脲基、N',N'-二烷基脲基、N'-芳基脲基、N',N'-二芳基脲基、N'-烷基-N'-芳基脲基、N-烷基脲基、N-芳基脲基、N'-烷基-N-烷基脲基、N'-烷基-N-芳基脲基、N',N'-二烷基-N-烷基脲基、N',N'-二烷基-N-芳基脲基、N'-芳基-N-烷基脲基、N'-芳基-N-芳基脲基、N',N'-二芳基-N-烷基脲基、N',N'-二芳基-N-芳基脲基、N'-烷基-N'-芳基-N-烷基脲基、N'-烷基-N'-芳基-N-芳基脲基、烷氧基羰基胺基、烯丙氧基羰基胺基、N-烷基-N-烷氧基羰基胺基、N-烷基-N-烯丙氧基羰基胺基、N-芳基-N-烷氧基羰基胺基、N-芳基-N-烯丙氧基羰基胺基、甲醯基、醯基、烷氧基羰基、烯丙氧基羰基、胺甲醯基、N-烷基胺甲醯基、N,N-二烷基胺甲醯基、N-芳基胺甲醯基、N,N-二芳基胺甲醯基、N-烷基-N-芳基胺甲醯基、烷基亞磺醯基、芳基亞磺醯基、烷基磺醯基、芳基磺醯基、磺基(-SO<sub>3</sub>H)及其共軛鹼基、烷氧基磺醯基、烯丙氧基磺醯基、胺亞磺醯基、N-烷基胺亞磺醯基、N,N-二烷基胺亞磺醯基、N-芳基胺亞磺醯基、N,N-二芳基胺亞磺醯基、N-烷基-N-芳基胺亞磺醯基、胺磺醯基、N-烷基胺磺醯基、N,N-二烷基胺磺醯基、N-芳基胺磺醯基、N,N-二芳基胺磺醯基、N-烷基-N-芳基胺磺醯基、N-醯基胺磺醯基及其共軛鹼基、N-烷基磺醯基胺磺醯基(-SO<sub>2</sub>NHSO<sub>2</sub>(烷基))及其共軛鹼基、N-芳基磺醯基胺磺醯基(-SO<sub>2</sub>NHSO<sub>2</sub>(芳基))及其共軛鹼基、N-烷基磺醯基胺甲醯基(-CONHSO<sub>2</sub>(烷基))及

其共軛鹼基、N-芳基磺醯基胺甲醯基 (-CONHSO<sub>2</sub>(芳基)) 及其共軛鹼基、烷氧基甲矽烷基 (-Si(O-烷基)<sub>3</sub>)、烯丙氧基甲矽烷基 (-Si(O-芳基)<sub>3</sub>)、羥基甲矽烷基 (-Si(OH)<sub>3</sub>) 及其共軛鹼基、磷醯基 (-PO<sub>3</sub>H<sub>2</sub>) 及其共軛鹼基、二烷基磷醯基 (-PO<sub>3</sub>(烷基)<sub>2</sub>)、二芳基磷醯基 (-PO<sub>3</sub>(芳基)<sub>2</sub>)、烷基芳基磷醯基 (-PO<sub>3</sub>(烷基)(芳基))、單烷基磷醯基 (-PO<sub>3</sub>H(烷基)) 及其共軛鹼基、單芳基磷醯基 (-PO<sub>3</sub>H(芳基)) 及其共軛鹼基、磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>H<sub>2</sub>) 及其共軛鹼基、二烷基磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>(烷基)<sub>2</sub>)、二芳基磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>(芳基)<sub>2</sub>)、烷基芳基磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>(烷基)(芳基))、單烷基磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>H(烷基)) 及其共軛鹼基、單芳基磷醯氧基 (-OPO<sub>3</sub>H(芳基)) 及其共軛鹼基、氰基、硝基、芳基、烯基、炔基及烷基。又，如果可能，上述各基團可以進一步具有取代基（例如，上述各基團中的 1 個以上的基團）。例如，作為能夠選自取代基群組 Y 之基團還包含可以具有取代基之芳基。

選自取代基群組 Y 之基團具有碳原子之情況下，作為上述基團所具有之碳數，例如為 1~20。

作為選自取代基群組 Y 之基團所具有之除了氫原子以外的原子的數，例如為 1~30。

又，如果可能，該等取代基可以由取代基彼此鍵結或與經取代之基團鍵結而形成環，亦可以不形成環。例如，烷基（或者，如烷氧基那樣，作為部分結構而包含烷基之基團中的烷基部分）可以係環狀的烷基（環烷基），亦可以係作為部分結構而具有 1 個以上的環狀結構之烷基。

#### 【0014】 [組成物]

本發明的硬化性組成物（以下，亦簡稱為“組成物”）係包含酚化合物、環氧化合物、硬化促進劑及無機物之硬化性組成物，其中

上述酚化合物滿足要件 1 及要件 2 中的至少一者，

上述無機物的含量相對於總固體成分超過 10 質量%。

要件 1：上述酚化合物係後述之通式（Y）所表示之化合物。

要件 2：上述酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物，該芳香環基具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基。

**【0015】** 雖然本發明的組成物以如上所述的結構來解決本發明的課題之機制尚不明確，但本發明人等推測為如下。

本發明的組成物含有之酚化合物（以下，亦稱為“特定酚化合物”）作為酚性羥基而具有在鄰位存在取代基之酚性羥基，並且具有預定的結構。認為：藉由特定酚化合物具有這樣的特徵，由組成物形成之硬化物能夠具有剛性結構，硬化物中的熱傳遞變得更加迅速，其結果，所形成之導熱材料的導熱性得到了改善。

又，本發明的組成物將其製成半硬化膜之後的保存穩定性亦良好，所製作之導熱材料的絕緣破壞電壓亦高且良好，亦能夠使藉由所製作之導熱材料而接著之材料彼此的剝離強度良好。

以下，亦可以將上述導熱性、上述保存穩定性、上述絕緣破壞電壓及/或上述剝離強度優異稱為本發明的效果優異。

**【0016】** 以下，對組成物中所包含之成分進行詳細敘述。

**【0017】** 〔酚化合物〕

本發明的組成物包含酚化合物。

上述酚化合物係滿足下述要件 1 及要件 2 中的至少一者之特定酚化合物。

特定酚化合物可以僅滿足下述要件 1，亦可以僅滿足下述要件 2，亦可以均滿足下述要件 1 及下述要件 2 這兩者。

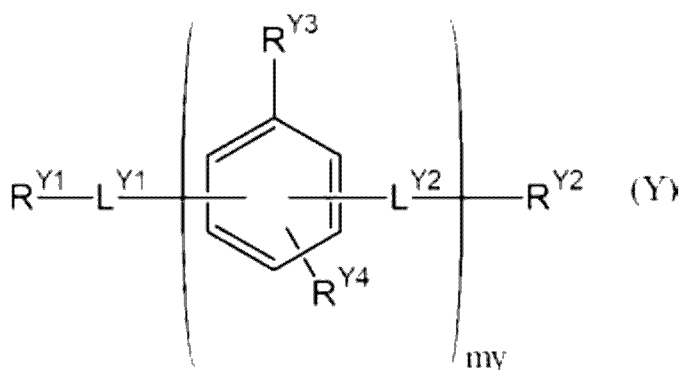
要件 1：特定酚化合物係通式 (Y) 所表示之化合物。

要件 2：特定酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物，該芳香環基具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基。

【0018】 <要件 1>

滿足要件 1 之特定酚化合物係通式 (Y) 所表示之化合物。

【0019】 [化學式 8]



【0020】 上述通式 (Y) 中，由相同符號表示之基團存在複數個之情況下，只要沒有特別說明，則存在複數個之由相同符號表示之基團可以分別相同亦可以不同。

【0021】 通式 (Y) 中，my 表示 0 以上的整數。

my 為 0~10 的整數為較佳，0~1 的整數為更佳，1 為進一步較佳。

【0022】 通式 (Y) 中，R<sup>Y1</sup> 及 R<sup>Y2</sup> 分別獨立地表示具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基。

亦即， $R^{Y1}$  及  $R^{Y2}$  所表示之上述芳香環基具有在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基。

“在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基”係指直接鍵結於芳香環（較佳為芳香族烴環，更佳為苯環）之羥基（酚性羥基），並且係指在上述芳香環中的與上述羥基相鄰之位置（鄰位）的一方或兩方存在碳數 1~6 的取代基之羥基。

上述芳香環基只要具有 1 個以上（例如，1~3 個）“在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基”即可，亦可以具有或不具有除了“在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基”以外的酚性羥基。

上述芳香環基可以係單環，亦可以係多環，作為環員原子，亦可以具有雜原子。

上述芳香環基的環員原子的數為 5~15 為較佳，6~10 為更佳，6 為進一步較佳。

配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基只要在酚性羥基的鄰位的至少一方存在即可，亦可以存在於兩方。

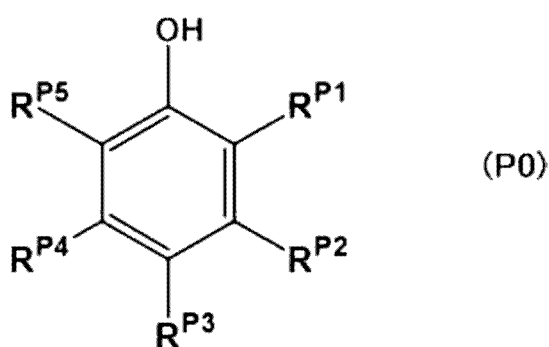
碳數 1~6 的取代基中的碳數為 1~6，1~4 為較佳，1 為更佳。

碳數 1~6 的取代基為碳數 1~6 的羥基為較佳，碳數 1~6 的烷基為更佳。

上述烷基可以係直鏈狀，亦可以係支鏈狀。上述烷基未經取代亦較佳。

**【0023】**  $R^{Y1}$  及  $R^{Y2}$ （亦即，具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基）分別獨立地為通式（P0）所表示之基團為較佳。

【0024】 [化學式 9]



【0025】 通式 (P0) 中， $R^{P1} \sim R^{P5}$  分別獨立地表示氫原子或取代基。

其中， $R^{P1} \sim R^{P5}$  中的 1 個係鍵結位置，並且  $R^{P1}$  及  $R^{P5}$  中的一者或兩者係上述碳數 1~6 的取代基。

【0026】 在  $R^{P1}$  及  $R^{P5}$  中，一者係上述碳數 1~6 的取代基，並且，另一者係除了上述碳數 1~6 的取代基以外的情況下，上述另一者為氫原子亦較佳。

$R^{P2} \sim R^{P4}$  中的任一者為鍵結位置亦較佳。

$R^{P2} \sim R^{P4}$  中的 1 個以上（例如，1~3 個）為取代基之情況下，上述取代基為上述碳數 1~6 的取代基亦較佳。

【0027】 通式 (Y) 中， $R^{Y3}$  表示氫原子或取代基。

$R^{Y3}$  表示氫原子或羥基為較佳。

$R^{Y3}$  存在複數個之情況下，至少 1 個  $R^{Y3}$  表示羥基為較佳，所有的  $R^{Y3}$  均表示羥基為更佳。

【0028】 通式 (Y)、 $R^{Y4}$  表示氫原子或取代基。

$R^{Y4}$  為氫原子、烷基、苯基、鹵素原子、羧酸基、硼酸基、醛基、烷氧基或烷氧基羰基為較佳。

上述烷基可以係直鏈狀，亦可以係支鏈狀。上述烷基的碳數為 1~10

為較佳。上述烷基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

上述烷氧基中的烷基部分及上述烷氧基羰基中的烷基部分與上述烷基相同。

上述苯基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

$R^{Y4}$  相對於  $R^{Y4}$  所鍵結之苯環基能夠具有之羥基 ( $R^{Y3}$ )，在對位鍵結為較佳。

**【0029】** 通式 (Y) 中， $L^{Y1}$  及  $L^{Y2}$  分別獨立地表示  $-C(R^{Y5})(R^{Y6})-$  或  $-CO-$ 。

$R^{Y5}$  及  $R^{Y6}$  分別獨立地表示氫原子或取代基。

$R^{Y5}$  及  $R^{Y6}$  分別獨立地為氫原子、羥基、苯基、鹵素原子、羧酸基、硼酸基、醛基、烷基、烷氧基或烷氧基羰基為較佳。

上述烷基可以係直鏈狀，亦可以係支鏈狀。上述烷基的碳數為 1~10 為較佳。上述烷基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

上述烷氧基中的烷基部分及上述烷氧基羰基中的烷基部分與上述烷基相同。

上述苯基可以具有取代基，亦可以不具有取代基，例如，具有取代基之情況下，可以具有 1~3 個羥基。

$L^{Y1}$  及  $L^{Y2}$  分別獨立地為  $-CH_2-$ 、 $-CH(OH)-$  或  $-CO-$  為較佳。

**【0030】** 滿足要件 1 之特定酚化合物可以具有除了“在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基”以外的羥基。其中，滿足要件 1 之特定酚化合物所具有之所有羥基中，“在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基”的比例〔(在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性羥基的個數/特定酚化合物所具有

之所有羥基的個數) × 100] 為 30~100% 為較佳, 50~100% 為更佳, 65~100% 為進一步較佳。

**【0031】** <要件 2>

滿足要件 2 之特定酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物, 該芳香環基具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基。

滿足要件 2 之特定酚化合物“具有三吡啶骨架”係指, 在化合物中具有 1 個以上(例如, 1~5 個)三吡啶環基。

**【0032】** 滿足要件 2 之特定酚化合物具有“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”。

換言之, 滿足要件 2 之特定酚化合物具有芳香環基, 上述芳香環基具有在鄰位存在取代基之酚性羥基。

“在鄰位存在取代基之酚性羥基”係指直接鍵結於芳香環(較佳為苯環)之羥基(酚性羥基), 並且係指在上述芳香環中的與上述羥基相鄰之位置(鄰位)的一方或兩方存在取代基(較佳為有機基團, 更佳為碳數 1~6 的取代基)之羥基。

上述芳香環基只要具有 1 個以上(例如, 1~3 個)的“在鄰位存在取代基之酚性羥基”即可, 可以具有或不具有除了“在鄰位存在取代基之酚性羥基”以外的酚性羥基。

上述芳香環基可以係單環, 亦可以係多環, 作為環員原子, 亦可以具有雜原子。

上述芳香環基的環員原子的數為 5~15 為較佳, 6~10 為更佳, 6 為進一步較佳。

配置於酚性羥基的鄰位之取代基只要在酚性羥基的鄰位中的至少一方存在即可，亦可以存在於兩方。

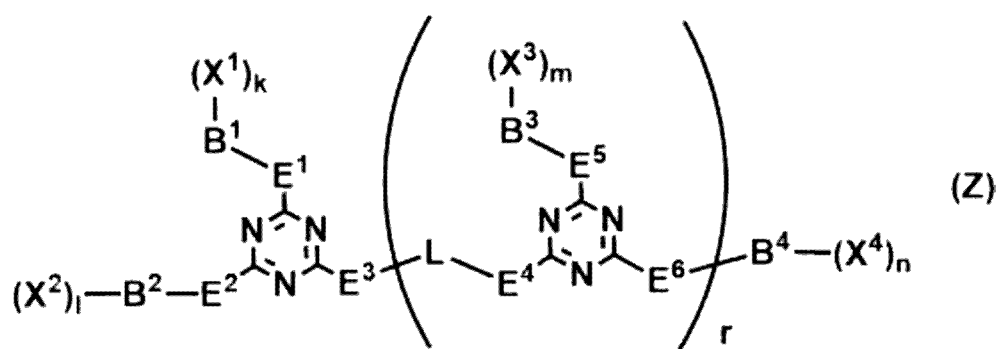
配置於酚性羥基的鄰位之取代基為有機基團為較佳，碳數 1~6 的取代基為更佳。

關於“碳數 1~6 的取代基”，與在有關要件 1 的說明中敘述之“碳數 1~6 的取代基”相同。

滿足要件 2 之特定酚化合物具有 1 個以上具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基（較佳為上述通式 (P0) 所表示之基團）為較佳，具有 2 個以上為更佳，具有 2~12 個為進一步較佳，具有 4~8 個為特佳。

**【0033】** 滿足要件 2 之特定酚化合物係通式 (Z) 所表示之化合物為較佳。特定酚化合物包含通式 (Z) 所表示之化合物為較佳，特定酚化合物可以係通式 (Z) 所表示之化合物本身。通式 (Z) 所表示之化合物的含量相對於特定酚化合物的總質量為 10~100 質量%為較佳，25~100 質量%為更佳，50~100 質量%為進一步較佳。

**【0034】** [化學式 10]



**【0035】** 上述通式 (Z) 中，由相同符號表示之基團存在複數個之情況下，只要沒有特別說明，則存在複數個之由相同符號表示之基團可以分

別相同亦可以不同。

**【0036】** 通式 (Z) 中， $E^1 \sim E^6$  分別獨立地表示單鍵、-NH-或-NR-。

R 表示取代基。作為由 R 表示之取代基，例如，可以舉出碳數 1~5 的直鏈狀或支鏈狀的烷基。

$E^1 \sim E^6$  分別獨立地為-NH-或-NR-為較佳，-NH-為更佳。

**【0037】** 通式 (Z) 中， $B^1$  表示單鍵或  $k+1$  價的有機基團。

$B^2$  表示單鍵或  $l+1$  價的有機基團。

$B^3$  表示單鍵或  $m+1$  價的有機基團。

$B^4$  表示單鍵或  $n+1$  價的有機基團。

上述  $k+1$  價的有機基團、 $l+1$  價的有機基團、 $m+1$  價的有機基團及  $n+1$  價的有機基團中的  $k$ 、 $l$ 、 $m$  及  $n$  的值與通式 (Z) 中所明確表示之  $k$ 、 $l$ 、 $m$  及  $n$  的值一致。

另外， $r$  為 2 以上且存在複數個之  $m$  的值不同之情況下， $B^3$  所表示之  $m+1$  價的有機基團中的  $m$  的值與表示其  $B^3$  所鍵結之  $X^3$  的數之  $m$  的值相同。

**【0038】** 作為  $B^1 \sim B^4$  所表示之有機基團，例如，可以舉出從可以具有碳數 1~20 的雜原子之烴中去除  $j$  個氫原子之基團等。另外， $j$  個係指  $k+1$  個、 $l+1$  個、 $m+1$  個或  $n+1$  個。

其中，作為在去除  $j$  個氫原子之前的烴，例如，可以舉出選自包括可以具有取代基之碳數 1~20 的脂肪族烴、可以具有取代基之碳數 3~20 的脂肪族環及可以具有取代基之碳數 3~20 的芳香環之群組中的 1 個以上的烴。

又，對於上述 1 個以上的烴，可以係進一步將選自包括-O-、-S-、-CO-、-NR<sup>N</sup>-

(RN 係氫原子或取代基) 及-SO<sub>2</sub>-之群組中的 2 價的連結基的 1 個以上進行組合而成之烴。

作為碳數 1~20 的脂肪族烴，例如，可以舉出甲烷、乙烷、丙烷、丁烷、戊烷、己烷及庚烷等。

作為碳數 3~20 的脂肪族環，例如，可以舉出環己烷環、環庚烷環、降莖烷環及金剛烷環等。

作為碳數 3~20 的芳香環，例如，可以舉出碳數 6~20 的芳香族烴及碳數 3~20 的芳香族雜環等。

作為碳數 6~20 的芳香族烴，例如，可以舉出苯環、萘環、蔥環等，作為碳數 3~20 的芳香族雜環，例如，可以舉出咪喃環、吡咯環、噻吩環、吡啶環、噻唑環、呋唑環、吡啶環及苯并噻唑環等。

**【0039】** 通式(Z)中，k、l、m 及 n 分別獨立地表示 0 以上的整數。其中，存在 k、l、r 個之 m (亦即 r×m) 及 n 的合計為 2 以上，2~12 的整數為較佳，4~8 的整數為更佳。

k、l、m 及 n 分別獨立地為 0~5 為較佳，1~2 為更佳。

例如，k 為 1 以上 (更佳為 1~2) 為較佳，l 為 1 以上 (更佳為 1~2) 為較佳，m 為 1 以上 (更佳為 1~2) 為較佳，n 為 1 以上 (更佳為 1~2) 為較佳。

另外，k 為 0 之情況下，B<sup>1</sup> 不具有 X<sup>1</sup>。l 為 0 之情況下，B<sup>2</sup> 不具有 X<sup>2</sup>。m 為 0 之情況下，B<sup>3</sup> 不具有 X<sup>3</sup>。n 為 0 之情況下，B<sup>4</sup> 不具有 X<sup>4</sup>。

又，B<sup>1</sup> 為單鍵之情況下，k 為 1。B<sup>2</sup> 為單鍵之情況下，l 為 1。B<sup>3</sup> 為單鍵之情況下，m 為 1。B<sup>4</sup> 為單鍵之情況下，n 為 1。

**【0040】** L 表示 2 價的有機基團。

作為有機基團，例如，可以舉出可以具有取代基之 2 價的芳香環基、可以具有取代基之 2 價的脂肪族烴基、可以具有取代基之 2 價的脂肪族環基、-O-、-S-、-N(R<sup>N</sup>)-或-CO-及將該等組合而成之基團。

R<sup>N</sup> 表示取代基。作為由 R<sup>N</sup> 表示之取代基，例如，可以舉出碳數 1~5 的直鏈狀或支鏈狀的烷基等。

又，作為可以具有芳香環基、脂肪族烴基及脂肪族環基之取代基，例如，可以舉出碳數 1~5 的直鏈狀或支鏈狀的烷基等。

**【0041】** 作為芳香環基，例如，可以舉出碳數 6~20 的芳香族烴基及碳數 3~20 的芳香族雜環基等。

作為碳數 6~20 的芳香族烴基，例如，可以舉出苯環基等單環式芳香環基；萘環基及蒽環基等多環式芳香環基；等，作為碳數 3~20 的芳香族雜環基，例如，可以舉出呋喃環基、吡咯環基、噻吩環基、吡啶環基及噁唑環基等單環式芳香環基；苯并噁唑環基、咪唑環基及吡啶環基等多環式芳香環基；等。

**【0042】** 作為脂肪族烴基，例如，可以舉出碳數 1~12 的伸烷基等，具體而言，可以舉出亞甲基、伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基、甲基伸己基及伸庚基等。

**【0043】** 作為脂肪族環基，例如，可以舉出環己烷環基、環庚烷環基、降莖烷環基及金剛烷環基等。

**【0044】** 作為可以具有取代基之芳香環基、可以具有取代基之脂肪族烴基、可以具有取代基之脂肪族環基或將-O-、-S-、-NR<sup>N</sup>-或-CO-組合而成

之基團，不僅可以係由該等的 2 個以上的組合構成之 2 價的連結基，而且可以係將相同種類的基團（例如，芳香環基）藉由單鍵組合 2 個以上而成之 2 價的連結基。

**【0045】** 本發明中，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，L 的兩個末端為碳原子為較佳。具體而言，“-E<sup>3</sup>-C-”並且“-C-E<sup>4</sup>-”為較佳。另外，上述 C（碳原子）係構成 L 之原子。末端的碳原子可以係環狀結構的一部分。

又，本發明中，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，上述通式（P2）中的 L 為具有選自包括可以具有取代基之 2 價的芳香環基、可以具有取代基之 2 價的脂肪族環基及可以具有碳數 2 以上的支鏈之伸烷基之群組中的至少一種之 2 價的有機基團為較佳，從導熱性更加優異之原因考慮，具有可以具有取代基之 2 價的芳香環基之 2 價的有機基團為更佳。

**【0046】** 通式（Z）中，r 為 0 以上的整數。

r 為 0~20 的整數為較佳，0~10 的整數為更佳。

**【0047】** 通式（Z）中，X<sup>1</sup>~X<sup>4</sup> 分別獨立地表示具有酚性羥基之芳香環基。

“具有酚性羥基之芳香環基”只要係具有 1 個以上（例如，1~4 個）直接鍵結於芳香環之羥基（酚性羥基）之芳香環基即可。上述芳香環基可以具有或不具有除了上述羥基以外的取代基。上述芳香環基可以係單環，亦可以係多環，作為環員原子，亦可以具有雜原子。上述芳香環基的環員原子的數為 5~15 為較佳，6~10 為更佳，6 為進一步較佳。

**【0048】** 其中，通式（Z）中，存在 k 個之 X<sup>1</sup>、存在 1 個之 X<sup>2</sup>、存在

$r \times m$  個之  $X^3$  及存在  $n$  個之  $X^4$  中的至少 1 個表示具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基。另外，“ $r \times m$ ”中的  $m$  的值係能夠存在複數個之  $m$  的平均值。

換言之，存在  $(k+l+r \times m+n)$  個之  $X^1 \sim X^4$  中的任一個所表示之“具有酚性羥基之芳香環基”中，至少 1 個表示“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”。

其中，存在  $(k+l+r \times m+n)$  個之  $X^1 \sim X^4$  中的任一個所表示之“具有酚性羥基之芳香環基”中，“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”的比例〔（“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”的個數/存在  $(k+l+r \times m+n)$  個之  $X^1 \sim X^4$  中的任一個所表示之“具有酚性羥基之芳香環基”的個數） $\times 100$ 〕為 30%以上為較佳，50%以上為更佳，65%以上為進一步較佳。上限為 100%以下為較佳，90%以下為更佳，80%以下為進一步較佳。

上述“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”例如可以舉出關於通式（Y）進行說明之“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基”中，“碳數 1~6 的取代基”取代成並沒有特別限制之“取代基（可以係羥基，除了羥基以外的基團為較佳）”之形態。

**【0049】** “具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”分別獨立地為“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基”為較佳。

上述“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之

芳香環基”與上述的關於通式 (Y) 進行說明之“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基”相同，係上述通式 (P0) 所表示之基團為較佳。

**【0050】** 在具有  $X^1 \sim X^4$  所表示之酚性羥基之芳香環基中，除了“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”以外的芳香環基可以具有或不具有除了羥基（酚性羥基）以外的取代基。

除了“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”以外的芳香環基例如可以舉出羥基苯基。

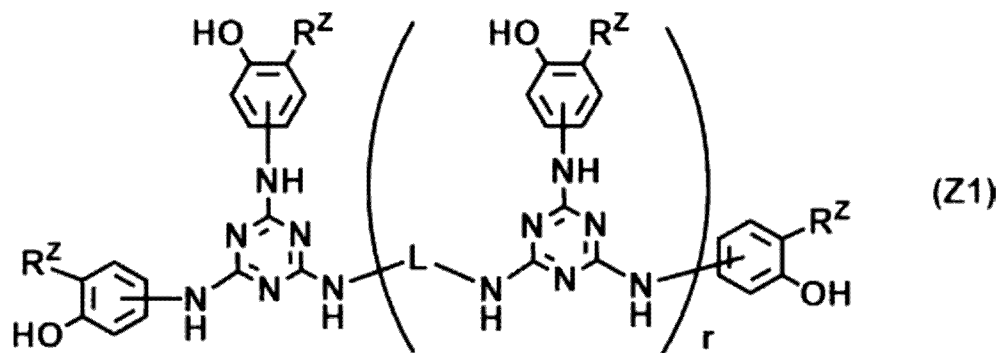
存在  $(k+l+r \times m+n)$  個之  $X^1 \sim X^4$  中的任一個所表示之“具有酚性羥基之芳香環基”中，至少 1 個（例如，1~2 個）係除了“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”以外的芳香環基亦較佳。

在具有  $X^1 \sim X^4$  所表示之酚性羥基之芳香環基中，藉由還存在除了“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”以外的芳香環基，從而會破壞作為化合物整體的對稱性、降低化合物的熔點及提高操作性。又，將這樣的形態的化合物與環氧化合物進行組合而形成組成物之情況下，用 DSC（差示掃描測熱計）測量組成物而檢測之發熱峰增寬（半寬度增大或發熱峰的溫度與反應開始溫度之差增大）。當發生這種增寬時，能夠以寬範圍的溫度硬化組成物，因此認為較佳。

**【0051】** 滿足要件 2 之特定酚化合物為通式 (Z1) 所表示之化合物亦較佳。特定酚化合物包含通式 (Z1) 所表示之化合物為較佳，特定酚化合物可以係通式 (Z1) 所表示之化合物其本身。通式 (Z1) 所表示之化合物的含量相對於特定酚化合物的總質量為 10~100 質量%為較佳，25~100

質量%為更佳，50~100 質量%為進一步較佳。

【0052】 [化學式 11]



【0053】 通式 (Z1) 中， $r$  表示 0 以上的整數。 $r$  為 0~20 的整數為較佳，0~10 的整數為更佳。

$L$  表示 2 價的有機基團。通式 (Z1) 中的  $L$  所表示之 2 價的有機基團例如與通式 (Z1) 中的  $L$  所表示之 2 價的有機基團相同。

$R^Z$  表示氫原子或取代基。

$R^Z$  所表示之取代基為碳數 1~6 的取代基為較佳，碳數 1~6 的烴基為更佳，碳數 1~6 的烷基為進一步較佳。

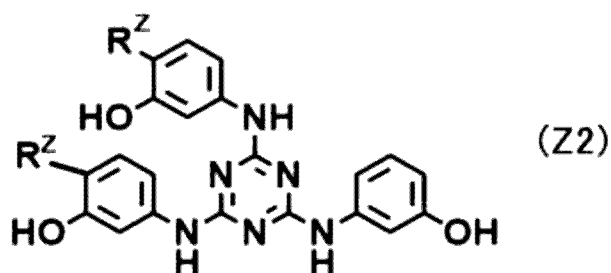
其中，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示取代基。存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中，表示取代基之  $R^Z$  的比例  $\left[ \frac{\text{表示取代基之 } R^Z \text{ 的個數}}{\text{存在 } (3+r) \text{ 個之 } R^Z \text{ 的個數}} \times 100 \right]$  為 30% 以上為較佳，50% 以上為更佳，65% 以上為進一步較佳。上限為 90% 以下為較佳，80% 以下為更佳。

通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個 (例如，1~2 個) 表示氫原子。

通式 (Z1) 中的  $R^Z$  (較佳為取代基  $R^Z$ ) 及 OH 所鍵結之苯環基中，上述  $R^Z$  (較佳為取代基  $R^Z$ ) 在相對上述苯環基所鍵結之 NH 之對位存在亦較佳。

【0054】 滿足要件 2 之特定酚化合物為通式 (Z2) 所表示之化合物亦較佳。特定酚化合物包含通式 (Z2) 所表示之化合物為較佳，特定酚化合物可以係通式 (Z2) 所表示之化合物其本身。通式 (Z2) 所表示之化合物的含量相對於特定酚化合物的總質量為 10~100 質量%為較佳，25~100 質量%為更佳，50~100 質量%為進一步較佳。

【0055】 [化學式 12]



【0056】 通式 (Z2) 中， $R^Z$  表示氫原子或取代基。

其中，存在 2 個之  $R^Z$  中的至少一者表示取代基。存在 2 個之  $R^Z$  兩者表示取代基為較佳。

$R^Z$  所表示之取代基為碳數 1~6 的取代基為較佳，碳數 1~6 的烴基為更佳，碳數 1~6 的烷基為進一步較佳。

上述烷基可以係直鏈狀，亦可以係支鏈狀。上述烷基未經取代亦較佳。

通式 (Z2) 中的 2 個  $R^Z$  可以分別相同亦可以不同。

【0057】 滿足要件 2 之特定酚化合物可以具有除了“在鄰位存在取代基（較佳為碳數 1~6 的取代基）之酚性烴基”以外的烴基。其中，滿足要件 2 之特定酚化合物所具有之所有烴基中，“在鄰位存在取代基（較佳為碳數 1~6 的取代基）之酚性烴基”的比例〔(在鄰位存在碳數 1~6 的取代基之酚性烴基的個數/特定酚化合物所具有之所有烴基的個數)×100〕為 30%

以上為較佳，50%以上為更佳，65%以上為進一步較佳。上述數為 100%以下為較佳，90%以下為更佳，80%以下為進一步較佳。

**【0058】** 特定酚化合物的分子量為 225~2000 為較佳，225~1000 為更佳。

**【0059】** 特定酚化合物的羥基含量為 2.0mmol/g 以上為較佳，4.0mmol/g 以上為更佳。上限值為 25.0mmol/g 以下為較佳，10.0mmol/g 以下為更佳。

另外，上述羥基含量意指酚化合物 1g 所具有之羥基(較佳為酚性羥基)的數。

又，特定酚化合物除了羥基以外亦可以具有或不具有能夠與環氧化合物進行聚合反應之含有活性氫之基團(羧酸基等)。酚化合物的活性氫的含量(羥基及羧酸基等中的氫原子的合計含量)的下限值為 2.0mmol/g 以上為較佳，4.0mmol/g 以上為更佳。上限值為 25.0mmol/g 以下為較佳，10.0mmol/g 以下為更佳。

**【0060】** 特定酚化合物可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

其中，特定酚化合物係通式 (Z) 所表示之化合物，且相對於特定酚化合物的總質量，將由存在  $(k+1+r \times m+n)$  個之  $X^1 \sim X^4$  中的任一個所表示之“具有酚性羥基之芳香環基”中的至少 1 個(例如，1~2 個)係除了“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”以外的芳香環基之化合物(例如，通式 (Z2) 所表示之化合物)，包含 10~100 質量%為較佳，包含 25~100 質量%為更佳，包含 50~100 質量%為進一步較佳。

另外，本發明的組成物除了特定酚化合物以外，還可以包含具有能夠

與後述的環氧化合物反應之基團之化合物（亦稱為“其他含有活性氫之化合物”）。

作為其他含有活性氫之化合物，例如，可以係除了特定酚化合物以外的酚化合物。

其中，在本發明的組成物中，其他含有活性氫之化合物的含量與特定酚化合物的含量的質量比為 0~1 為較佳，0~0.1 為更佳，0~0.05 為進一步較佳。

#### 【0061】〔環氧化合物〕

本發明的組成物包含環氧化合物。

環氧化合物係在 1 個分子中具有至少 1 個環氧基（環氧乙烷基）之化合物。

上述環氧基係從環氧乙烷環中去除 1 個以上的氫原子（較佳為 1 個氫原子）而成之基團。如果可能，上述環氧基可以進一步具有取代基（直鏈狀或支鏈狀的碳數 1~5 的烷基等）。

【0062】 環氧化合物所具有之環氧基的數在 1 個分子中為 2 以上為較佳，2~1000 為更佳，2~40 為進一步較佳。

【0063】 環氧化合物的分子量為 150 以上為較佳，300 以上為更佳。上述分子量的上限並無限制，例如，100000 以下為較佳，10000 以下為更佳。

另外，上述分子量存在分子量分佈之情況下，上述分子量為數量平均分子量。

本說明書中，數量平均分子量及重量平均分子量係藉由基於凝膠滲透

層析法（GPC）之聚苯乙烯換算而求得之重量平均分子量。

【0064】 環氧化合物的環氧基含量為 2.0~20.0mmol/g 為較佳，5.0~15.0mmol/g 為更佳。

另外，上述環氧基含量意指環氧化合物 1g 所具有之環氧基的數。

環氧化合物具有芳香環基（較佳為芳香族烴環基）亦較佳。

【0065】 環氧化合物可以顯示液晶性，亦可以不顯示液晶性。

亦即，環氧化合物可以係液晶化合物。換言之，可以係具有環氧基之液晶化合物。

作為環氧化合物（亦可以係液晶性的環氧化合物），例如，可以舉出至少部分地包含棒狀結構之化合物（棒狀化合物）及至少部分地包含圓盤狀結構之化合物（圓盤狀化合物）。

以下，對棒狀化合物及圓盤狀化合物進行詳細敘述。

【0066】 （棒狀化合物）

作為成為棒狀化合物的環氧化合物，可以舉出偶氮次甲基類、氧偶氮類、氰基聯苯類、氰基苯基酯類、苯甲酸酯類、環己烷羧酸苯基酯類、氰基苯基環己烷類、氰基取代苯基嘧啶類、烷氧基取代苯基嘧啶類、苯基二噁烷類、二苯乙炔類及烯基環己基卞腈類。不僅能夠使用如上所述之低分子化合物，亦能夠使用高分子化合物。上述高分子化合物係由具有低分子的反應性基之棒狀化合物聚合而成之高分子化合物。

作為較佳的棒狀化合物，可以舉出下述通式（XXI）所表示之棒狀化合物。

通式（XXI）： $Q^1-L^{111}-A^{111}-L^{113}-M-L^{114}-A^{112}-L^{112}-Q^2$

**【0067】** 通式 (XXI) 中， $Q^1$  及  $Q^2$  分別獨立地為環氧基， $L^{111}$ 、 $L^{112}$ 、 $L^{113}$  及  $L^{114}$  分別獨立地表示單鍵或 2 價的連結基。 $A^{111}$  及  $A^{112}$  分別獨立地表示碳數 1~20 的 2 價的連結基 (間隔基)。 $M$  表示液晶基。

$Q^1$  及  $Q^2$  的環氧基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

**【0068】** 通式 (XXI) 中， $L^{111}$ 、 $L^{112}$ 、 $L^{113}$  及  $L^{114}$  分別獨立地表示單鍵或 2 價的連結基。

作為  $L^{111}$ 、 $L^{112}$ 、 $L^{113}$  及  $L^{114}$  所表示之 2 價的連結基，分別獨立地為選自包括 -O-、-S-、-CO-、-NR<sup>112</sup>-、-CO-O-、-O-CO-O-、-CO-NR<sup>112</sup>-、-NR<sup>112</sup>-CO-、-O-CO-、-CH<sub>2</sub>-O-、-O-CH<sub>2</sub>-、-O-CO-NR<sup>112</sup>-、-NR<sup>112</sup>-CO-O- 及 -NR<sup>112</sup>-CO-NR<sup>112</sup>- 之群組中的 2 價的連結基為較佳。上述 R<sup>112</sup> 為碳數 1~7 的烷基或氫原子。

其中， $L^{113}$  及  $L^{114}$  分別獨立地為 -O- 為較佳。

$L^{111}$  及  $L^{112}$  分別獨立地為單鍵為較佳。

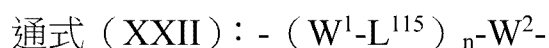
**【0069】** 通式 (XXI) 中， $A^{111}$  及  $A^{112}$  分別獨立地表示碳數 1~20 的 2 價的連結基。

2 價的連結基可以包含未相鄰之氧原子及硫原子等雜原子。其中，碳數 1~12 的伸烷基、伸烯基或伸炔基為較佳。上述伸烷基、伸烯基或伸炔基可以具有酯基，亦可以不具有酯基。

2 價的連結基為直鏈狀為較佳，並且上述 2 價的連結基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。作為取代基，例如，可以舉出鹵素原子 (氟原子、氯原子及溴原子)、氰基、甲基以及乙基。

其中， $A^{111}$  及  $A^{112}$  分別獨立地為碳數 1~12 的伸烷基為較佳，亞甲基為更佳。

【0070】 通式 (XXI) 中，M 表示液晶基，作為上述液晶基，可以舉出公知的液晶基。其中，下述通式 (XXII) 所表示之基團為較佳。



【0071】 通式 (XXII) 式中， $\text{W}^1$  及  $\text{W}^2$  分別獨立地表示 2 價的環狀伸烷基、2 價的環狀伸烯基、伸芳基或 2 價的雜環基。 $\text{L}^{115}$  表示單鍵或 2 價的連結基。 $n$  表示 1~4 的整數。

【0072】 作為  $\text{W}^1$  及  $\text{W}^2$ ，例如，可以舉出 1,4-環己烯二基、1,4-環己烷二基、1,4-伸苯基、嘓啶-2,5-二基、吡啶-2,5-二基、1,3,4-噻二唑-2,5-二基、1,3,4-噁二唑-2,5-二基、萘-2,6-二基、萘-1,5-二基、噻吩-2,5-二基及嗒咩-3,6-二基。在 1,4-環己烷二基的情況下，可以為反式體及順式體的結構異構物中的任一異構物，亦可以為任意比例的混合物。其中，反式體為較佳。

$\text{W}^1$  及  $\text{W}^2$  可以分別具有取代基。作為取代基，例如，可以舉出上述取代基群組 Y 中所例示之基團，更具體而言，可以舉出鹵素原子（氟原子、氯原子、溴原子及碘原子）、氰基、碳數 1~10 的烷基（例如，甲基、乙基及丙基等）、碳數 1~10 的烷氧基（例如，甲氧基及乙氧基等）、碳數 1~10 的醯基（例如，甲醯基及乙醯基等）、碳數 1~10 的烷氧基羰基（例如，甲氧基羰基及乙氧基羰基等）、碳數 1~10 的醯氧基（例如，乙醯氧基及丙醯氧基等）、硝基、三氟甲基以及二氟甲基等。

在  $\text{W}^1$  存在複數個之情況下，存在複數個之  $\text{W}^1$  可以分別相同亦可以不同。

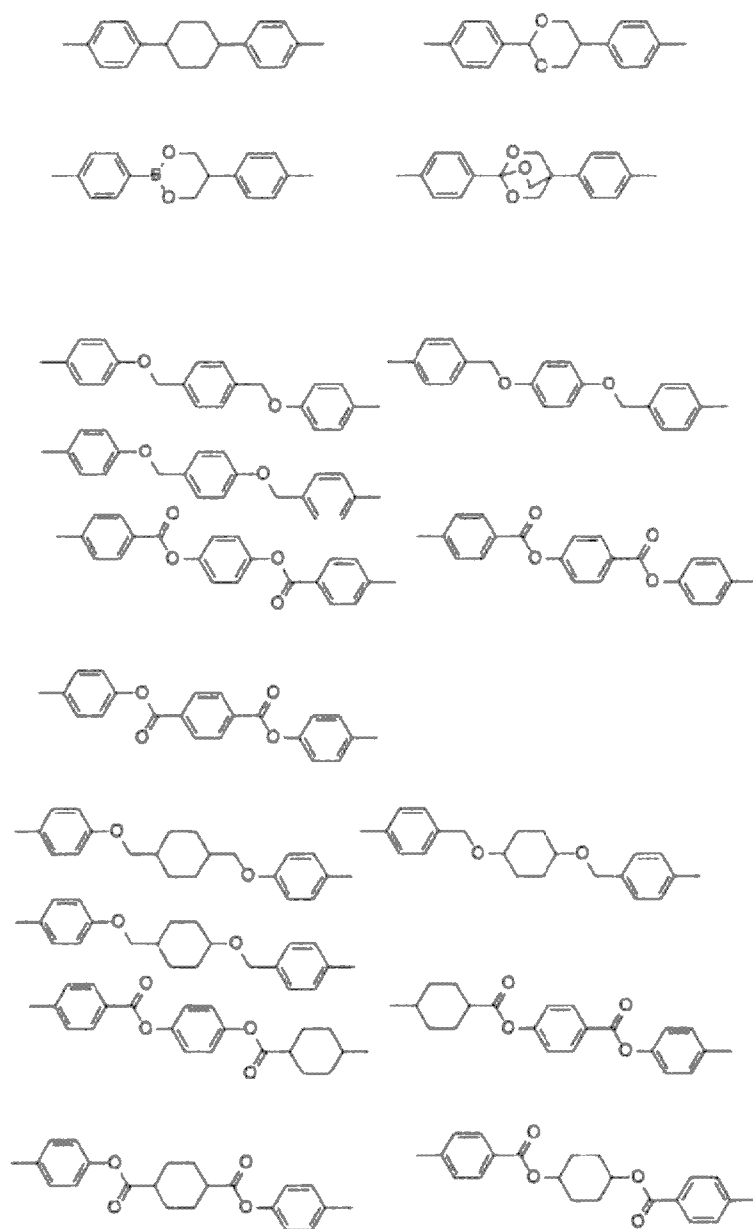
【0073】 通式 (XXII) 式中， $\text{L}^{115}$  表示單鍵或 2 價的連結基。作為  $\text{L}^{115}$  所表示之 2 價的連結基，可以舉出上述  $\text{L}^{111} \sim \text{L}^{114}$  所表示之 2 價的連結

基的具體例，例如，可以舉出 $-\text{CO}-\text{O}-$ 、 $-\text{O}-\text{CO}-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{O}-$ 及 $-\text{O}-\text{CH}_2-$ 。

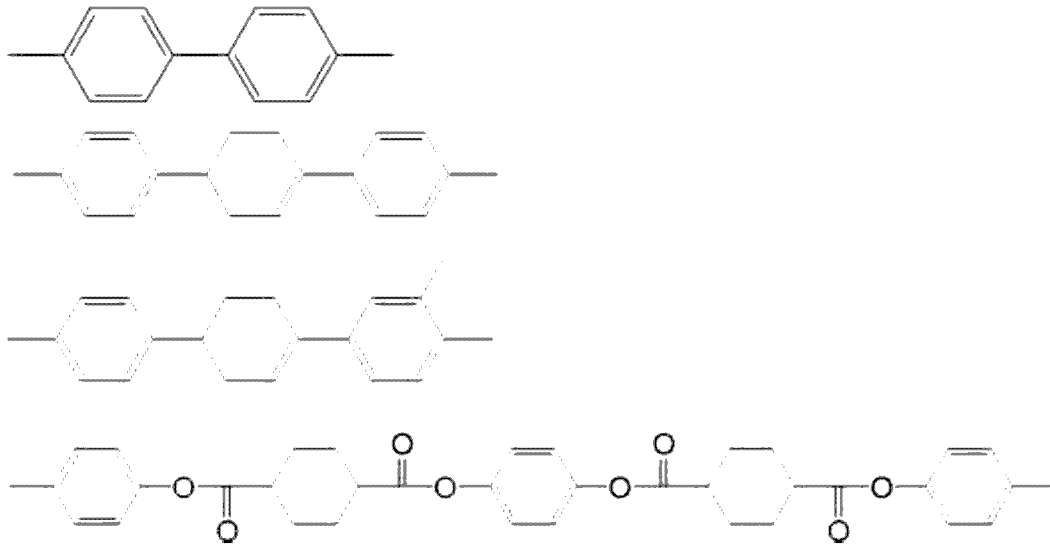
$\text{L}^{115}$  存在複數個之情況下，存在複數個之  $\text{L}^{115}$  可以分別相同亦可以不同。

【0074】 將上述通式 (XXII) 所表示之液晶基的基本骨架中較佳之骨架例示於以下。上述液晶基亦可以在該等骨架取代有取代基。

【0075】 [化學式 13]



【0076】 [化學式 14]



【0077】 上述骨架中，在所獲得之導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，聯苯骨架為較佳。

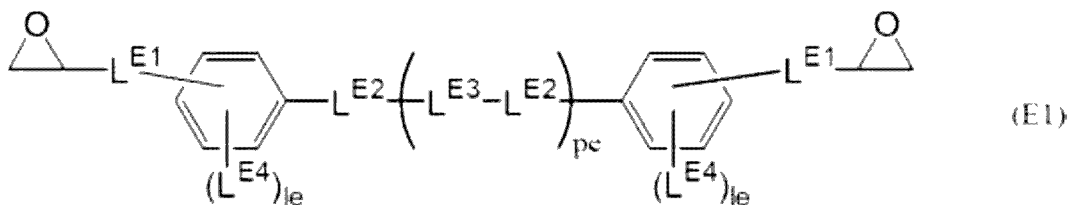
另外，通式 (XXI) 所表示之化合物能夠參閱日本特表平 11-513019 號公報 (WO97/00600) 中記載之方法來合成。

棒狀化合物可以為具有日本特開平 11-323162 號公報及日本專利 4118691 號中所記載之液晶基之單體。

【0078】 又，在通式 (XXI) 所表示之化合物中，“ $Q^1-L^{111}$ ”及“ $-L^{112}-Q^2$ ”中的一者或兩者取代為二環氧丙基胺基之化合物亦較佳。

【0079】 其中，棒狀化合物為通式 (E1) 所表示之化合物為較佳。

【0080】 [化學式 15]



【0081】 通式 (E1) 中， $L^{E1}$  分別獨立地表示單鍵或 2 價的連結基。其中， $L^{E1}$  為 2 價的連結基為較佳。

2 價的連結基為  $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-CH=CH-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $-CH=N-$ 、

-N=CH-、-N=N-、可以具有取代基之伸烷基或由 2 個以上的該等組合構成之基團為較佳，-O-伸烷基-或-伸烷基-O-為更佳。

另外，上述伸烷基可以為直鏈狀、支鏈狀及環狀中的任一種，碳數 1~2 的直鏈狀伸烷基為較佳。

存在複數個之  $L^{E1}$  可以分別相同亦可以不同。

**【0082】** 通式(E1)中， $L^{E2}$  分別獨立地表示單鍵、-CH=CH-、-CO-O-、-O-CO-、-C(-CH<sub>3</sub>)=CH-、-CH=C(-CH<sub>3</sub>)-、-CH=N-、-N=CH-、-N=N-、-C≡C-、-N=N<sup>+</sup>(-O<sup>-</sup>)-、-N<sup>+</sup>(-O<sup>-</sup>)=N-、-CH=N<sup>+</sup>(-O<sup>-</sup>)-、-N<sup>+</sup>(-O<sup>-</sup>)=CH-、-CH=CH-CO-、-CO-CH=CH-、-CH=C(-CN)-或-C(-CN)=CH-。

其中， $L^{E2}$  分別獨立地為單鍵、-CO-O-或-O-CO-為較佳。

$L^{E2}$  存在複數個之情況下，存在複數個之  $L^{E2}$  可以分別相同亦可以不同。

**【0083】** 通式(E1)中， $L^{E3}$  分別獨立地表示單鍵或可以具有取代基之 5 員環、或者 6 員環的芳香族環基或者 5 員環或 6 員環的非芳香族環基、或者由該等環構成之多環基。

作為  $L^{E3}$  所表示之芳香族環基及非芳香族環基的例子，可以舉出可以具有取代基之 1,4-環己烷二基、1,4-環己烯二基、1,4-伸苯基、嘧啶-2,5-二基、吡啶-2,5-二基、1,3,4-噁二唑-2,5-二基、1,3,4-噁二唑-2,5-二基、嘧啶-2,6-二基、嘧啶-1,5-二基、噁吩-2,5-二基及吡-3,6-二基。在 1,4-環己烷二基的情況下，可以為反式體及順式體的結構異構物中的任一異構物，亦可以為任意比例的混合物。其中，反式體為較佳。

其中， $L^{E3}$  為單鍵、1,4-伸苯基或 1,4-環己烯二基為較佳。

$L^{E3}$  所表示之基團所具有之取代基分別獨立地為烷基、烷氧基、鹵素原子、氰基、硝基或乙醯基為較佳，烷基（較佳為碳數 1）為更佳。

另外，取代基存在複數個之情況下，取代基可以分別相同亦可以不同。

$L^{E3}$  存在複數個之情況下，存在複數個之  $L^{E3}$  可以分別相同亦可以不同。

**【0084】** 通式 (E1) 中， $pe$  表示 0 以上的整數。

$pe$  為 2 以上的整數之情況下，存在複數個之 ( $-L^{E3}-L^{E2}-$ ) 可以分別相同亦可以不同。

其中， $pe$  為 0~2 為較佳，0 或 1 為更佳，0 為進一步較佳。

**【0085】** 通式 (E1) 中， $L^{E4}$  分別獨立地表示取代基。

取代基分別獨立地為烷基、烷氧基、鹵素原子、氰基、硝基或乙醯基為較佳，烷基（較佳為碳數 1）為更佳。

存在複數個  $L^{E4}$  可以分別相同亦可以不同。又，在接著進行說明之  $le$  為 2 以上的整數之情況下，在相同的 ( $L^{E4}$ )<sub>le</sub> 中存在複數個之  $L^{E4}$  亦可以分別相同亦可以不同。

**【0086】** 通式 (E1) 中， $le$  分別獨立地表示 0~4 的整數。

其中， $le$  分別獨立地為 0~2 為較佳。

存在複數個之  $le$  可以分別相同亦可以不同。

**【0087】** 又，在通式 (E1) 所表示之化合物中，存在 2 個之“環氧基  $-L^{E1}-$ ”中的一者或兩者取代為二環氧丙基胺基伸烷基（較佳為二環氧丙基胺基亞甲基）之化合物亦較佳。

**【0088】** 在所獲得之導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，棒狀化

合物具有聯苯骨架為較佳。

換言之，環氧化合物具有聯苯骨架為較佳，此時的環氧化合物為棒狀化合物為更佳。

**【0089】** （圓盤狀化合物）

作為圓盤狀化合物之環氧化合物至少部分地具有圓盤狀結構。

圓盤狀結構至少具有脂環或芳香族環。尤其，在圓盤狀結構具有芳香族環之情況下，圓盤狀化合物能夠藉由基於分子之間的  $\pi$ - $\pi$  相互作用形成堆疊結構來形成柱狀結構。

作為圓盤狀結構，具體而言，可以舉出 *Angew.Chem.Int. Ed.* 2012, 51, 7990-7993 或日本特開平 7-306317 號公報中記載之聯三伸苯結構以及日本特開 2007-2220 號公報及日本特開 2010-244038 號公報中記載之三取代苯構造等。

**【0090】** 作為環氧化合物，若使用圓盤狀化合物，則可獲得顯示高導熱性之導熱材料。作為其原因，認為：由於棒狀化合物只能線性地（一維地）導熱，而圓盤狀化合物能夠沿法線方向平面地（二維地）導熱，因此導熱路徑增加，並且導熱率得以提高。

**【0091】** 上述圓盤狀化合物具有 3 個以上的環氧基為較佳。包含具有 3 個以上的環氧基之圓盤狀化合物之組成物的硬化物存在玻璃轉移溫度高且耐熱性高之傾向。

圓盤狀化合物所具有之環氧基的數為 8 以下為較佳，6 以下為更佳。

**【0092】** 作為圓盤狀化合物的具體例，可以舉出 C. Destrade et al., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, vol. 71, page 111 (1981); 日本化學會編、季刊化學

總說、No.22、液晶化學、第 5 章、第 10 章第 2 節 (1994)；B. Kohne et al., *Angew. Chem. Soc. Chem. Comm.*, page 1794 (1985)；J. Zhang et al., *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 116, page 2655 (1994)、及日本專利第 4592225 號中所記載之化合物等中將末端中的至少 1 個 (較佳為 3 個以上) 設為環氧基之化合物。

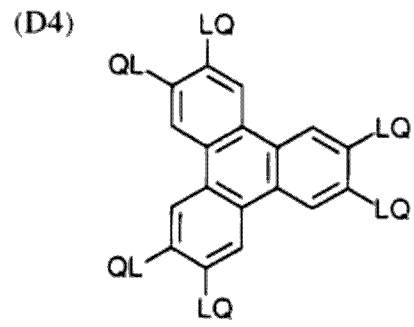
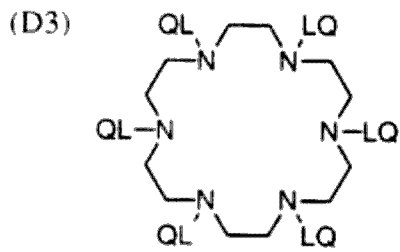
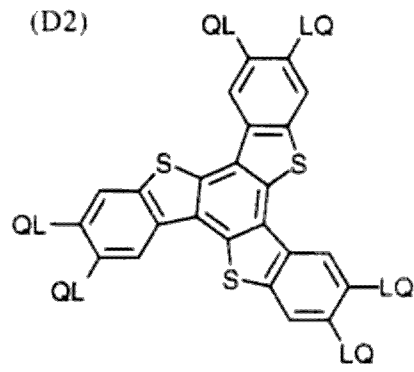
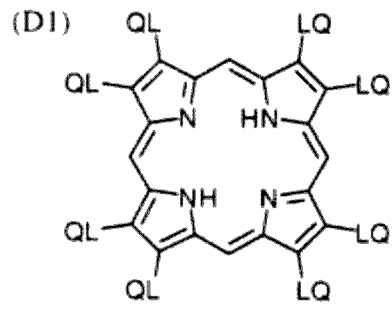
作為圓盤狀化合物，可以舉出 *Angew. Chem. Int. Ed.* 2012, 51, 7990-7993 及日本特開平 7-306317 號公報中記載之聯三伸苯結構以及日本特開 2007-2220 號公報以及日本特開 2010-244038 號公報中記載之三取代苯結構中將末端中的至少 1 個 (較佳為 3 個以上) 設為環氧基之化合物等。

**【0093】** 作為圓盤狀化合物，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，在以下示出之式 (D1) ~ (D16) 中的任一個所表示之化合物為較佳。

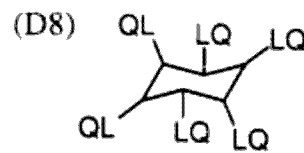
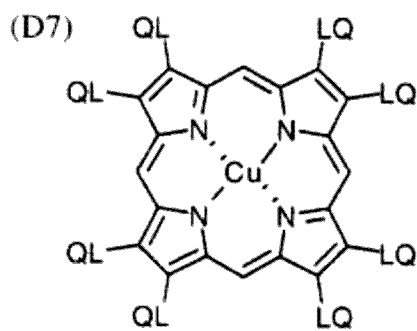
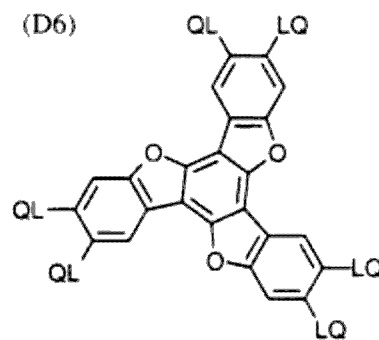
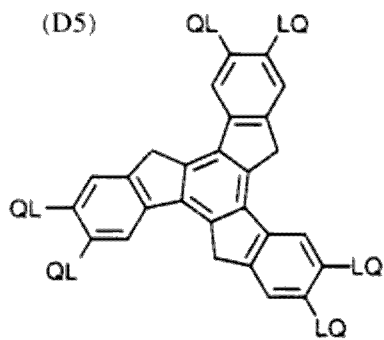
首先，對式 (D1) ~ (D15) 進行說明，然後，對式 (D16) 進行說明。

另外，以下式中，“-LQ”表示“-L-Q”，“QL-”表示“Q-L-”。

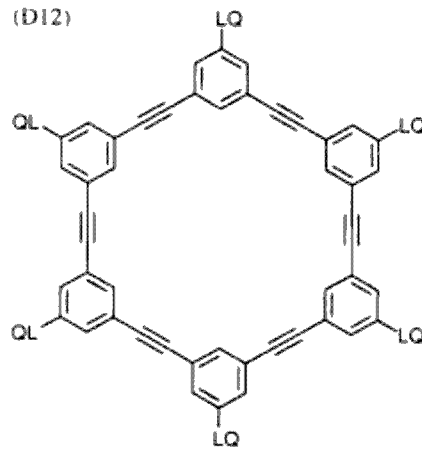
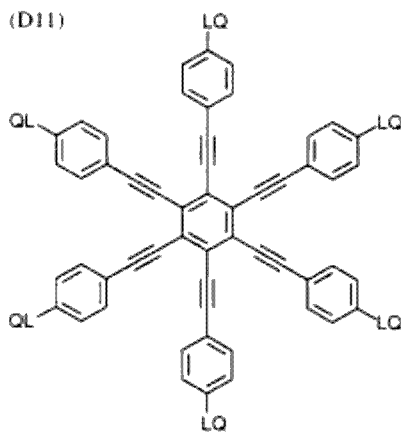
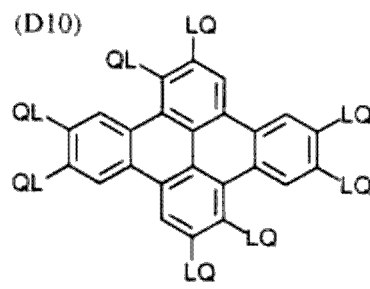
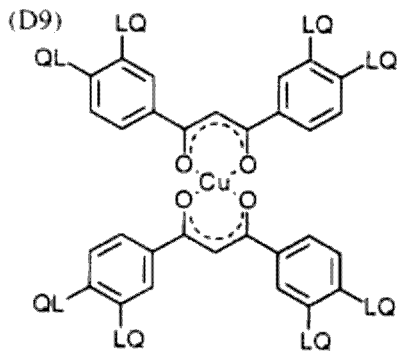
**【0094】** [化學式 16]



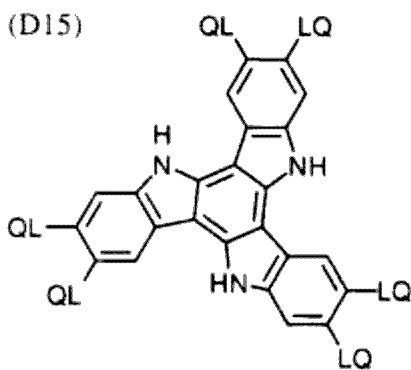
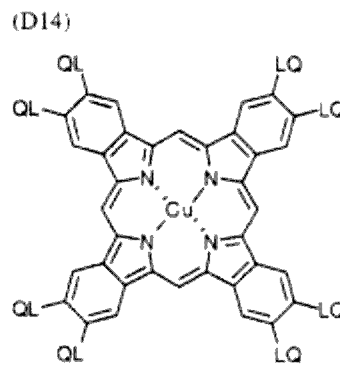
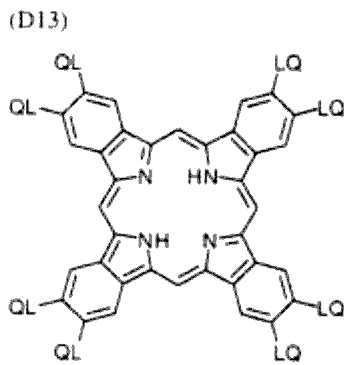
【0095】 [化學式 17]



【0096】 [化學式 18]



【0097】 [化學式 19]



**【0098】** 式 (D1) ~ (D15) 中，L 表示 2 價的連結基。

從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，L 分別獨立地為伸烷基、伸烯基、伸芳基、-CO-、-NH-、-O-、-S-及選自包括該等組合之群組中的基團為較佳，組合 2 個以上選自包括伸烷基、伸烯基、伸芳基、-CO-、-NH-、-O-及-S-之群組中的基團而成之基團為更佳。

上述伸烷基的碳數為 1~12 為較佳。上述伸烯基的碳數為 2~12 為較佳。上述伸芳基的碳數為 10 以下為較佳。

伸烷基、伸烯基及伸芳基可以具有取代基（較佳為烷基、鹵素原子、氰基、烷氧基及醯氧基等）。

**【0099】** 以下，示出 L 的例子。在以下例子中，左側的鍵結鍵結於式 (D1) ~ (D15) 中的任一個所表示之化合物的中心結構（以下，亦簡稱為“中心環”），右側的鍵結鍵結於 Q。

AL 表示伸烷基或伸烯基，AR 表示伸芳基。

**【0100】** L101：-AL-CO-O-AL-

L102：-AL-CO-O-AL-O-

L103：-AL-CO-O-AL-O-AL-

L104：-AL-CO-O-AL-O-CO-

L105：-CO-AR-O-AL-

L106：-CO-AR-O-AL-O-

L107：-CO-AR-O-AL-O-CO-

L108：-CO-NH-AL-

L109：-NH-AL-O-

L110 : -NH-AL-O-CO-

L111 : -O-AL-

L112 : -O-AL-O-

L113 : -O-AL-O-CO-

**【0101】** L114 : -O-AL-O-CO-NH-AL-

L115 : -O-AL-S-AL-

L116 : -O-CO-AL-AR-O-AL-O-CO-

L117 : -O-CO-AR-O-AL-CO-

L118 : -O-CO-AR-O-AL-O-CO-

L119 : -O-CO-AR-O-AL-O-AL-O-CO-

L120 : -O-CO-AR-O-AL-O-AL-O-AL-O-CO-

L121 : -S-AL-

L122 : -S-AL-O-

L123 : -S-AL-O-CO-

L124 : -S-AL-S-AL-

L125 : -S-AR-AL-

L126 : -O-CO-AL-

L127 : -O-CO-AL-O-

L128 : -O-CO-AR-O-AL-

L129 : -O-CO-

L130 : -O-CO-AR-O-AL-O-CO-AL-S-AR-

L131 : -O-CO-AL-S-AR-

L132 : -O-CO-AR-O-AL-O-CO-AL-S-AL-

L133 : -O-CO-AL-S-AR-

L134 : -O-AL-S-AR-

L135 : -AL-CO-O-AL-O-CO-AL-S-AR-

L136 : -AL-CO-O-AL-O-CO-AL-S-AL-

L137 : -O-AL-O-AR-

L138 : -O-AL-O-CO-AR-

L139 : -O-AL-NH-AR-

L140 : -O-CO-AL-O-AR-

L141 : -O-CO-AR-O-AL-O-AR-

L142 : -AL-CO-O-AR-

L143 : -AL-CO-O-AL-O-AR-

**【0102】** 式(D1)~(D15)中，Q分別獨立地表示氫原子或取代基。

作為取代基，可以舉出在上述之取代基群組 Y 中例示之基團。更具體而言，作為取代基，可以舉出上述反應性官能基、鹵素原子、異氰酸酯基、氰基、不飽和聚合性基、環氧基、氧雜環丁基、氮丙啶基、硫代異氰酸酯基、醛基及磺基。

其中，Q為除了環氧基以外的基團之情況下，Q對環氧基穩定為較佳。

另外，式(D1)~(D15)中，1個以上（較佳為2個以上）的Q表示環氧基。其中，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，所有的Q均表示環氧基為較佳。

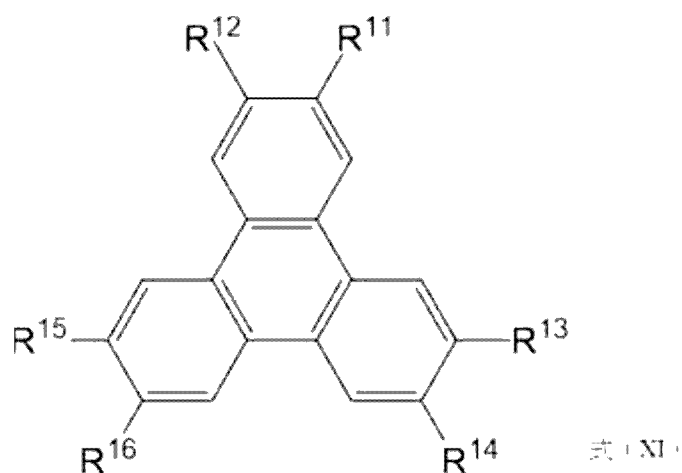
另外，從環氧基的穩定性的觀點考慮，式(D1)~(D15)所表示之

化合物不具有-NH-為較佳。

【0103】 式 (D1) ~ (D15) 所表示之化合物中，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，式 (D4) 所表示之化合物為較佳。換言之，圓盤狀化合物的中心環為聯伸三苯環為較佳。

從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，作為式 (D4) 所表示之化合物係式 (XI) 所表示之化合物為較佳。

【0104】 [化學式 20]



【0105】 式 (XI) 中， $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$  及  $R^{16}$  分別獨立地表示  $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$  或  $*-X^{12}-L^{12}-Y^{12}$ 。

另外，\*表示與聯伸三苯環的鍵結位置。

$R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$  及  $R^{16}$  中，2 個以上為  $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ ，3 個以上為  $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$  為較佳。

其中，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮， $R^{11}$  及  $R^{12}$  中的任意 1 個以上、 $R^{13}$  及  $R^{14}$  中的任意 1 個以上以及  $R^{15}$  及  $R^{16}$  中的任意 1 個以上為  $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$  為較佳。

$R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$  及  $R^{16}$  均為  $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$  為更佳。此外， $R^{11}$ 、

$R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$  及  $R^{16}$  均為相同為進一步較佳。

**【0106】**  $X^{11}$  分別獨立地表示單鍵、-O-、-CO-、-NH-、-O-CO-、-O-CO-O-、-O-CO-NH-、-O-CO-S-、-CO-O-、-CO-NH-、-CO-S-、-NH-CO-、-NH-CO-O-、-NH-CO-NH-、-NH-CO-S-、-S-、-S-CO-、-S-CO-O-、-S-CO-NH-或-S-CO-S-。

其中， $X^{11}$  分別獨立地為-O-、-O-CO-、-O-CO-O-、-O-CO-NH-、-CO-O-、-CO-NH-、-NH-CO-或-NH-CO-O-為較佳，-O-、-O-CO-、-CO-O-、-O-CO-NH-或-CO-NH-為更佳，-O-CO-或-CO-O-為進一步較佳。

**【0107】**  $L^{11}$  分別獨立地表示單鍵或 2 價的連結基。

作為 2 價的連結基的例子，可以舉出-O-、-O-CO-、-CO-O-、-S-、-NH-、伸烷基（碳數為 1~10 為較佳，1~8 為更佳，1~7 為進一步較佳。）、伸芳基（碳數為 6~20 為較佳，6~14 為更佳，6~10 為進一步較佳。）、或者由該等組合構成之基團。

作為上述伸烷基，可以舉出亞甲基、伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基及伸庚基。

作為上述伸芳基，可以舉出 1,4-伸苯基、1,3-伸苯基、1,4-伸萘基、1,5-伸萘基及伸蒽基，1,4-伸苯基為較佳。

**【0108】** 上述伸烷基及上述伸芳基可以分別具有取代基。取代基的數為 1~3 為較佳，1 為更佳。取代基的取代位置並沒有特別限制。作為取代基，鹵素原子或碳數 1~3 的烷基為較佳，甲基為更佳。

上述伸烷基及上述伸芳基未經取代亦較佳。其中，伸烷基未經取代為較佳。

【0109】 作為-X<sup>11</sup>-L<sup>11</sup>-的例子，可以舉出上述 L 例子，亦即 L101～L143。

【0110】 P<sup>11</sup> 表示環氧基。上述環氧基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

【0111】 X<sup>12</sup> 與 X<sup>11</sup> 相同，較佳條件亦相同。

L<sup>12</sup> 與 L<sup>11</sup> 相同，較佳條件亦相同。

作為-X<sup>12</sup>-L<sup>12</sup>-的例子，可以舉出上述 L 的例子，亦即 L101～L143。

【0112】 Y<sup>12</sup> 表示氫原子、碳數 1～20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基、或者碳數 1～20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基中 1 個或 2 個以上的亞甲基被-O-、-S-、-NH-、-N(CH<sub>3</sub>)-、-CO-、-O-CO-或-CO-O-取代而成之基團。

Y<sup>12</sup> 為碳數 1～20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基、或者碳數 1～20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基中 1 個或 2 個以上的亞甲基被-O-、-S-、-NH-、-N(CH<sub>3</sub>)-、-CO-、-O-CO-或-CO-O-取代而成之基團之情況下，Y<sup>12</sup> 中所包含之 1 個以上的氫原子可以被鹵素原子取代。

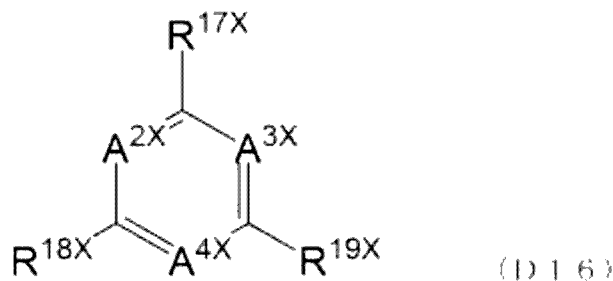
【0113】 關於式 (XI) 所表示之化合物的具體例，可以舉出日本特開平 7-281028 號公報的 0028～0036 段、日本特開平 7-306317 號公報、日本特開 2005-156822 號公報的 0016～0018 段、日本特開 2006-301614 號公報的 0067～0072 段及液晶便覽 (2000 年 Maruzen Company,Limited 出版) 330 頁～333 頁中記載之化合物中，將末端中的至少 1 個(較佳為 3 個以上) 作為環氧基之化合物。

【0114】 式 (XI) 所表示之化合物能夠依據日本特開平 7-306317 號

公報、日本特開平 7-281028 號公報、日本特開 2005-156822 號公報及日本特開 2006-301614 號公報中記載之方法來合成。

【0115】 又，從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，作為圓盤狀化合物，式 (D16) 所表示之化合物亦較佳。

【0116】 [化學式 21]



【0117】 式(D16)中， $A^{2X}$ 、 $A^{3X}$  及  $A^{4X}$  分別獨立地表示-CH=或-N=。其中， $A^{2X}$ 、 $A^{3X}$  及  $A^{4X}$  分別獨立地為-CH=為較佳。

$R^{17X}$ 、 $R^{18X}$  及  $R^{19X}$  分別獨立地表示 $^*X^{211X}-(Z^{21X}-X^{212X})_{n21X}-L^{21X}-Q^*$ 表示與中心環的鍵結位置。

$X^{211X}$ 及 $X^{212X}$ 分別獨立地表示單鍵、-O-、-CO-、-NH-、-O-CO-、-O-CO-O-、-O-CO-NH-、-O-CO-S-、-CO-O-、-CO-NH-、-CO-S-、-NH-CO-、-NH-CO-O-、-NH-CO-NH-、-NH-CO-S-、-S-、-S-CO-、-S-CO-O-、-S-CO-NH-或-S-CO-S-。

$Z^{21X}$ 分別獨立地表示 5 員環或 6 員環的芳香族環基、或者 5 員環或 6 員環的非芳香族環基。

$L^{21X}$ 表示單鍵或 2 價的連結基。

Q 與式(D1)~(D15)中的 Q 的含義相同，較佳條件亦相同。式(D16)中，存在複數個之 Q 中，至少 1 個（較佳為全部）Q 表示環氧基。

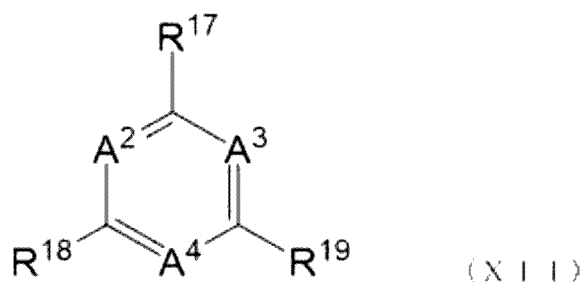
$n21X$  表示 0~3 的整數。 $n21X$  為 2 以上之情況下，存在複數個之

( $Z^{21X}-X^{212X}$ ) 可以相同亦可以不同。

其中，從環氧基的穩定性的觀點考慮，式 (D16) 所表示之化合物不具有-NH-為較佳。

【0118】 作為式 (D16) 所表示之化合物，式 (XII) 所表示之化合物為較佳。

【0119】 [化學式 22]



【0120】 式 (XII) 中， $A^2$ 、 $A^3$  及  $A^4$  分別獨立地表示-CH=或-N=。其中， $A^2$ 、 $A^3$  及  $A^4$  為-CH=為較佳。換言之，圓盤狀化合物的中心環為苯環亦較佳。

【0121】  $R^{17}$ 、 $R^{18}$  及  $R^{19}$  分別獨立地表示 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$  或 $*-X^{221}-(Z^{22}-X^{222})_{n22}-Y^{22}$ 。 $*$ 表示與中心環的鍵結位置。

$R^{17}$ 、 $R^{18}$  及  $R^{19}$  中 2 個以上為 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$ 。從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮， $R^{17}$ 、 $R^{18}$  及  $R^{19}$  均為 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$  為較佳。

此外， $R^{17}$ 、 $R^{18}$  及  $R^{19}$  均相同為較佳。

【0122】  $X^{211}$ 、 $X^{212}$ 、 $X^{221}$  及  $X^{222}$  分別獨立地表示單鍵、-O-、-CO-、-NH-、-O-CO-、-O-CO-O-、-O-CO-NH-、-O-CO-S-、-CO-O-、-CO-NH-、-CO-S-、-NH-CO-、-NH-CO-O-、-NH-CO-NH-、-NH-CO-S-、-S-、-S-CO-、

-S-CO-O-、-S-CO-NH-或-S-CO-S-。

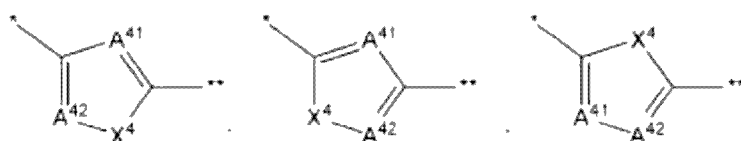
其中，作為  $X^{211}$ 、 $X^{212}$ 、 $X^{221}$  及  $X^{222}$ ，分別獨立地為單鍵、-O-、-CO-O- 或 -O-CO- 為較佳。

【0123】  $Z^{21}$  及  $Z^{22}$  分別獨立地表示 5 員環或 6 員環的芳香族環基或 5 員環或 6 員環的非芳香族環基，例如，可以舉出 1,4-伸苯基、1,3-伸苯基及芳香族雜環基。

【0124】 上述芳香族環基及上述非芳香族環基可以具有取代基。取代基的數為 1 或 2 為較佳，1 為更佳。取代基的取代位置並沒有特別限制。作為取代基，鹵素原子或甲基為較佳。上述芳香族環基及上述非芳香族環基未經取代亦較佳。

【0125】 作為芳香族雜環基，例如，可以舉出以下芳香族雜環基。

[化學式 23]



【0126】 式中，\*表示與  $X^{211}$  或  $X^{221}$  鍵結之部位。\*\*表示與  $X^{212}$  或  $X^{222}$  鍵結之部位。 $A^{41}$  及  $A^{42}$  分別獨立地表示次甲基或氮原子。 $X^4$  表示氧原子、硫原子或亞胺基。

$A^{41}$  及  $A^{42}$  中的至少一者為氮原子為較佳，兩者均為氮原子為更佳。又， $X^4$  為氧原子為較佳。

【0127】 後述之  $n_{21}$  及  $n_{22}$  為 2 以上之情況下，存在複數個之 ( $Z^{21}-X^{212}$ ) 及 ( $Z^{22}-X^{222}$ ) 可以分別相同亦可以不同。

【0128】  $L^{21}$  分別獨立地表示單鍵或 2 價的連結基，與上述式 (XI)

中的  $L^{11}$  的含義相同。作為  $L^{21}$ ， $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、伸烷基（碳數為 1~10 為較佳，1~8 為更佳，1~7 為進一步較佳。）、伸芳基（碳數為 6~20 為較佳，6~14 為更佳，6~10 為進一步較佳。）或由該等組合構成之基團為較佳。

**【0129】** 後述之  $n_{22}$  為 1 以上之情況下，作為  $-X^{212}-L^{21}$  的例子，可以同樣地舉出上述式 (D1) ~ (D15) 中的  $L$  的例子，亦即 L101~L143。

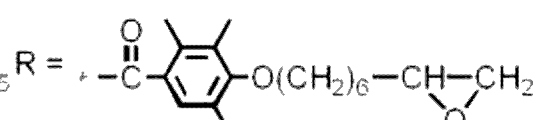
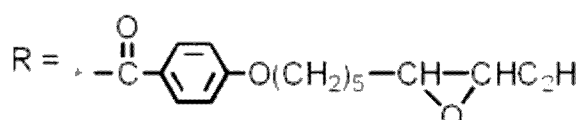
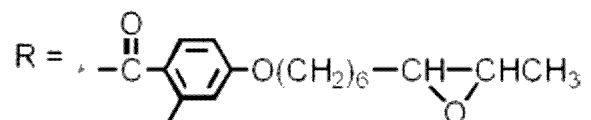
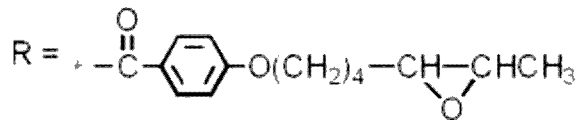
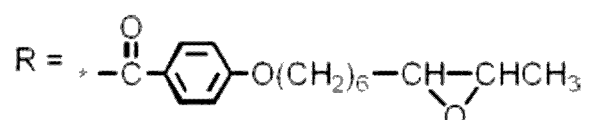
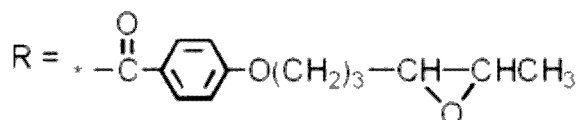
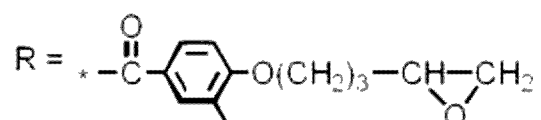
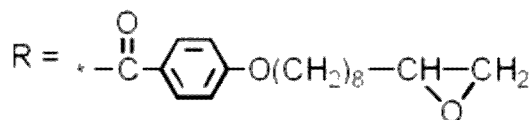
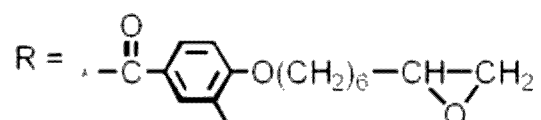
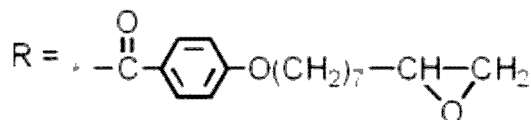
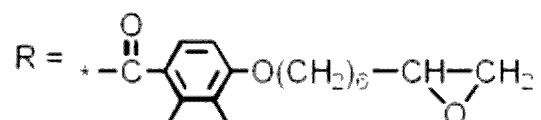
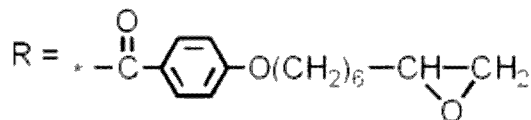
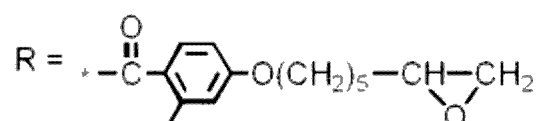
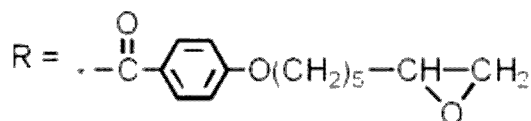
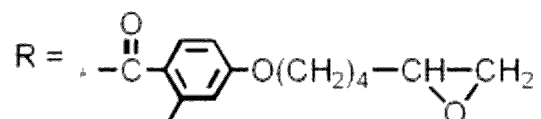
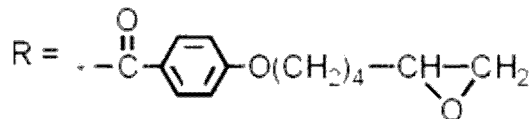
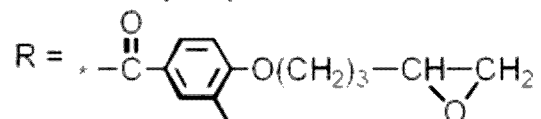
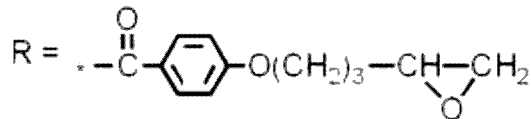
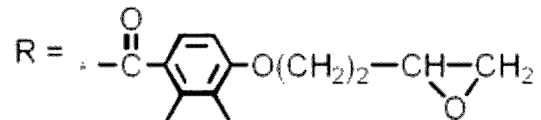
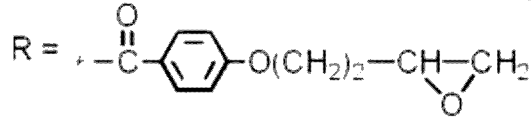
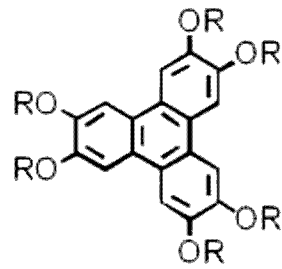
**【0130】**  $P^{21}$  表示環氧基。上述環氧基可以具有取代基，亦可以不具有取代基。

**【0131】**  $Y^{22}$  分別獨立地表示氫原子、碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基、或者碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基中 1 個或 2 個以上的亞甲基被  $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-CO-$  或  $-CO-O-$  取代而成之基團，並且與通式 (XI) 中的  $Y^{12}$  的含義相同，較佳的範圍亦相同。

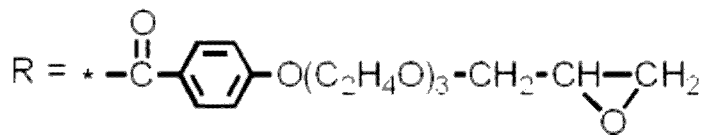
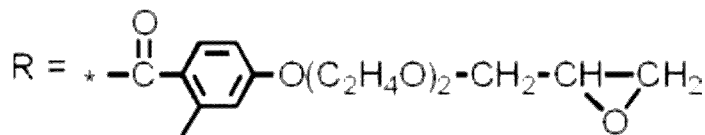
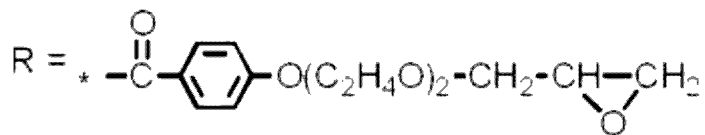
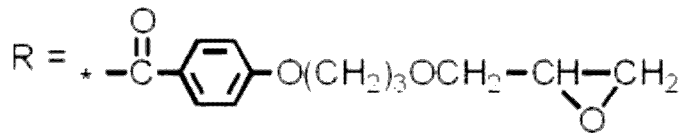
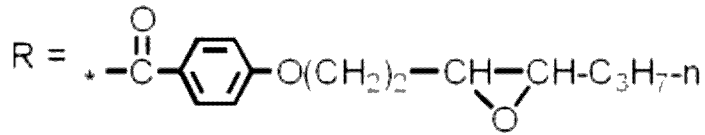
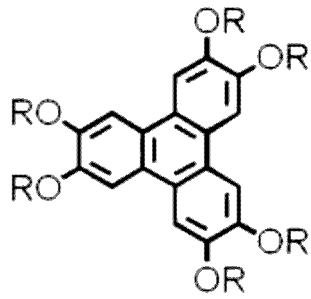
**【0132】**  $n_{21}$  及  $n_{22}$  分別獨立地表示 0~3 的整數，從導熱性更加優異之觀點考慮，1~3 的整數為較佳，2~3 為更佳。

**【0133】** 作為圓盤狀化合物的較佳例，可以舉出以下化合物。

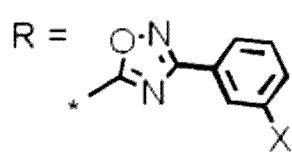
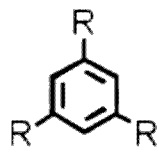
**【0134】** [化學式 24]



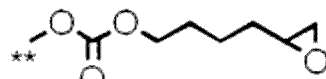
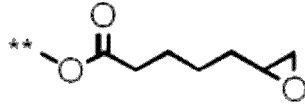
【0135】 [化學式 25]



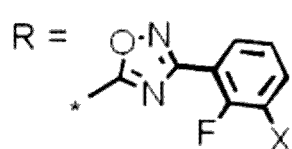
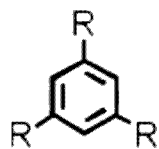
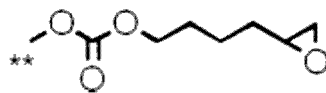
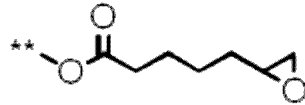
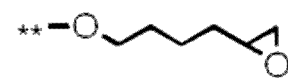
【0136】 [化學式 26]



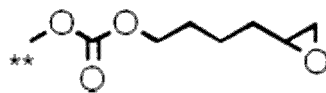
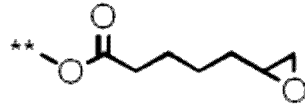
X =

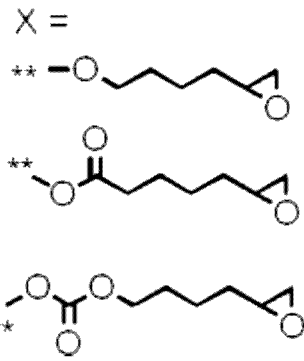
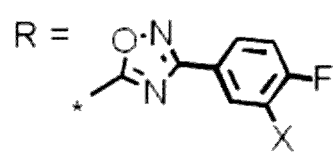
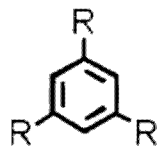


X =

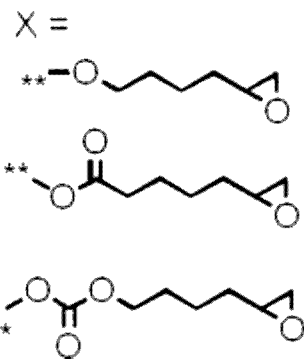
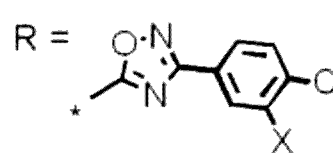
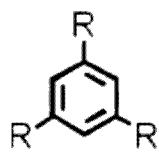
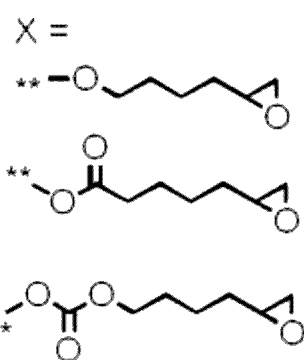
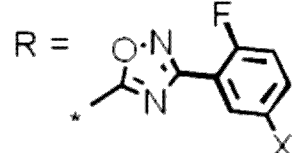
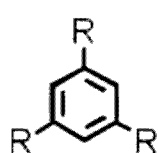
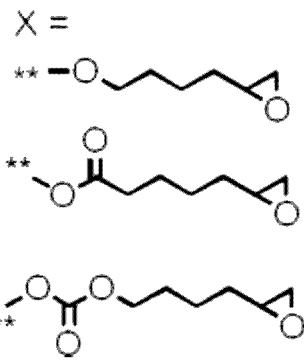
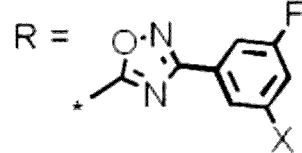
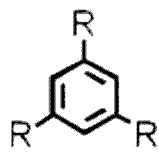


X =

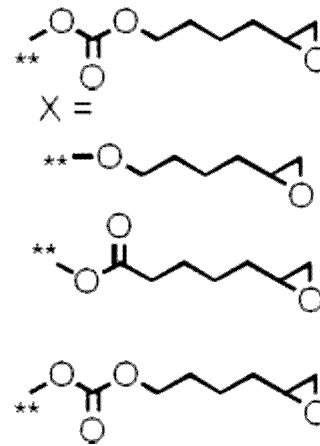
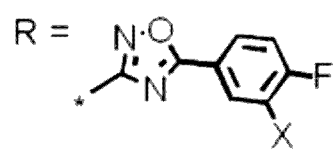
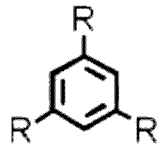
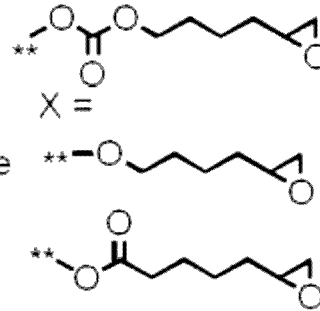
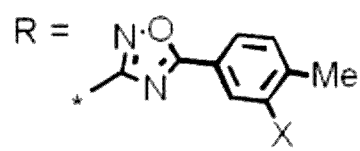
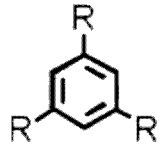
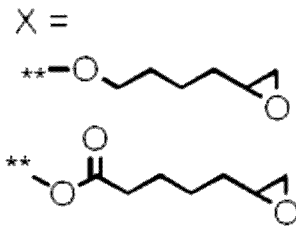
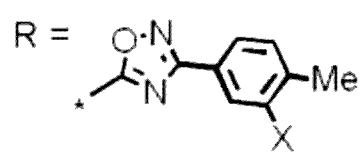
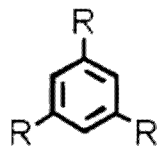




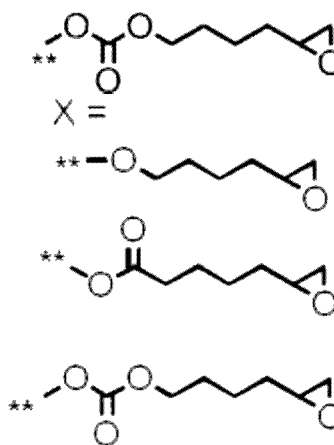
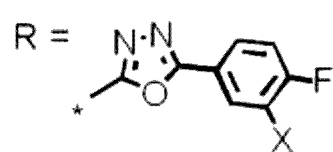
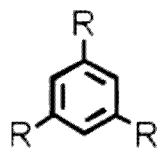
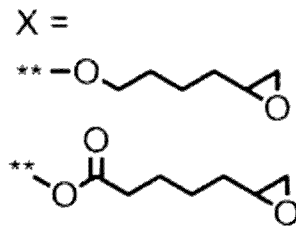
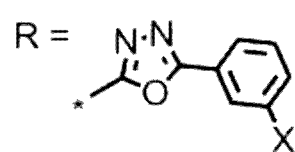
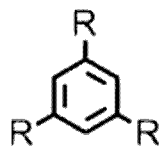
【0137】 [化學式 27]

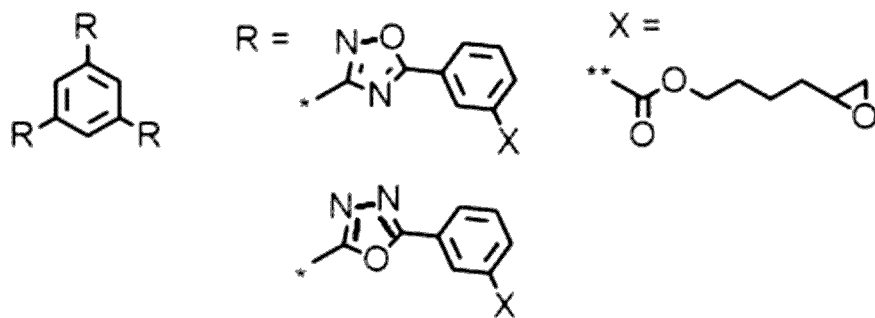


【0138】 [化學式 28]



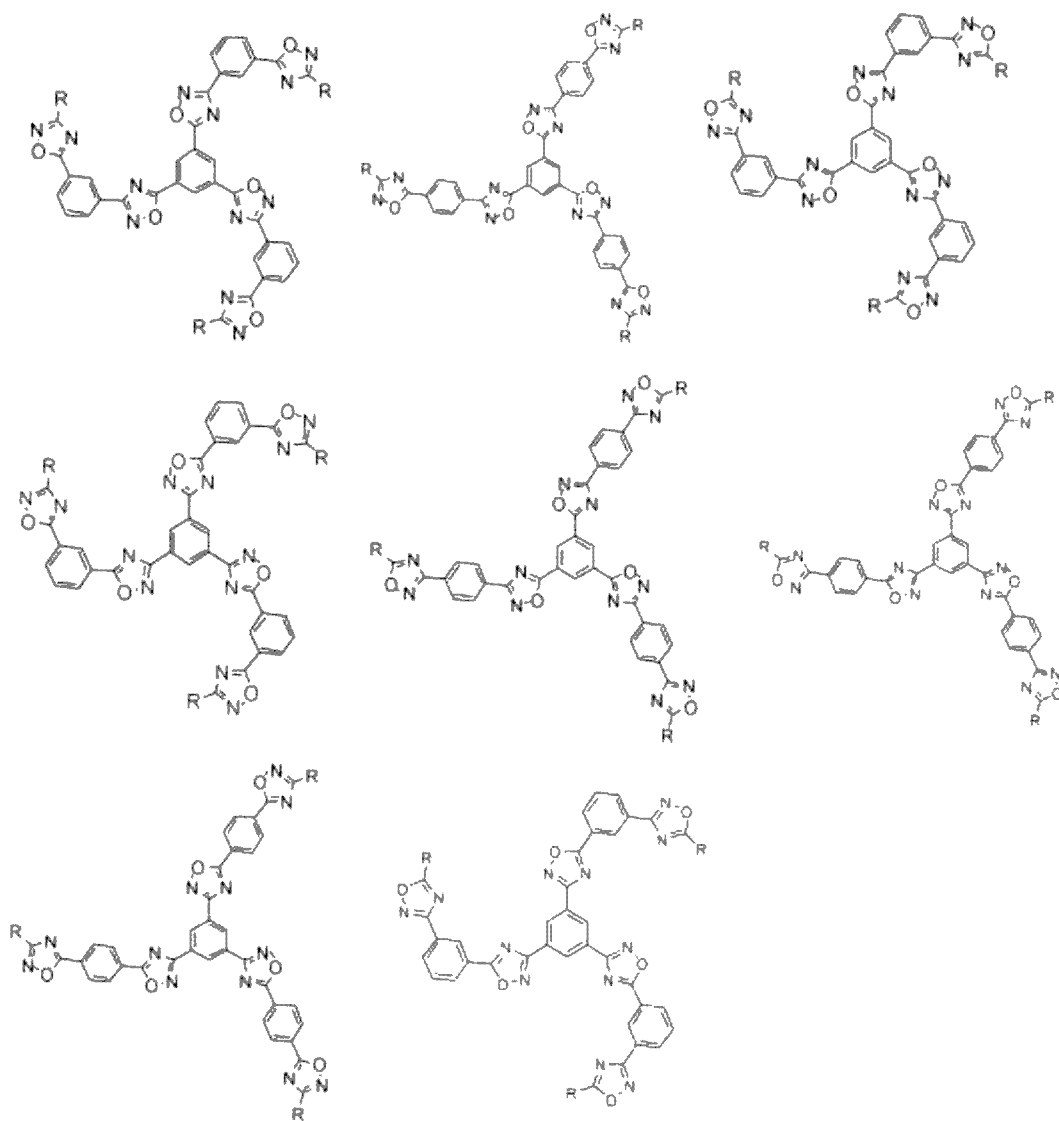
【0139】 [化學式 29]





【0140】 另外，下述結構式中，R 表示-X<sup>212</sup>-L<sup>21</sup>-P<sup>21</sup>。

【0141】 [化學式 30]



【0142】 關於式 (XII) 所表示之化合物的詳細內容及具體例，能夠參閱日本特開 2010-244038 號公報的 0013~0077 段中記載之化合物中，將末端中的至少 1 個（較佳為 3 個以上）作為環氧基之化合物，且該內容被

編入到本說明書中。

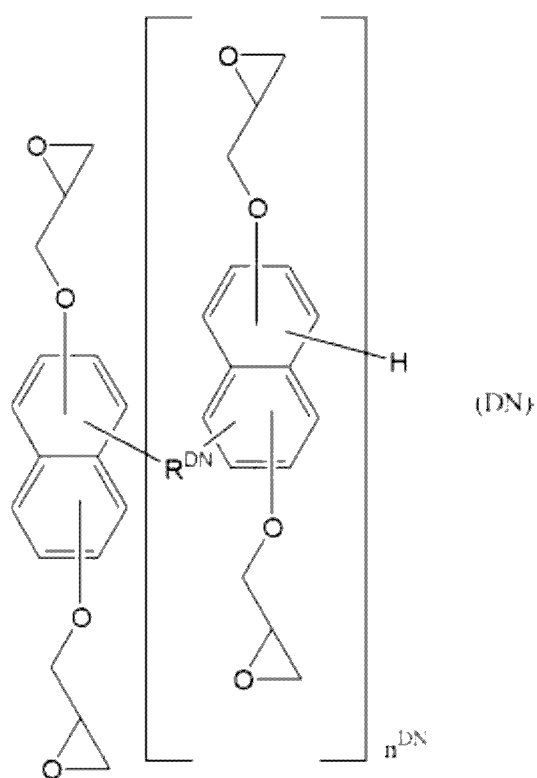
【0143】 式 (XII) 所表示之化合物能夠依據日本特開 2010-244038 號公報、日本特開 2006-76992 號公報及日本特開 2007-2220 號公報中記載之方法來合成。

【0144】 另外，從藉由降低電子密度來增強堆疊，並且容易形成柱狀集合體之觀點考慮，圓盤狀化合物係具有氫鍵性官能基之化合物亦較佳。作為氫鍵性官能基，可以舉出 -O-CO-NH-、-CO-NH-、-NH-CO-、-NH-CO-O-、-NH-CO-NH-、-NH-CO-S- 或 -S-CO-NH- 等。

【0145】 (其他環氧化合物)

作為除了上述環氧化合物以外的、其他的環氧化合物，例如，可以舉出通式 (DN) 所表示之環氧化合物。

【0146】 [化學式 31]



【0147】 通式 (DN) 中， $n^{\text{DN}}$  表示 0 以上的整數，0~5 為較佳，1

為更佳。

$R^{DN}$  表示單鍵或 2 價的連結基。作為 2 價的連結基， $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-S-$ 、伸烷基（碳數為 1~10 為較佳。）、伸芳基（碳數為 6~20 為較佳。）或由該等組合構成之基團為較佳，伸烷基為更佳，亞甲基為進一步較佳。

**【0148】** 作為其他多官能環氧化合物，還可以舉出通式 (E1) 所表示之環氧化合物。



**【0149】** 通式 (E1) 中，C 表示碳原子。

**【0150】** 通式 (E1) 中，U 表示 3 或 4 的整數。

在通式 (E1) 中，表示 V 的數之“4-U”中的“U”和表示 W 的數之“U”表示相同值。亦即，通式 (E1) 係“ $V-C(-W)_3$ ”或“ $C(-W)_4$ ”。

**【0151】** 通式 (E1) 中，V 表示氫原子或不具有環氧基之取代基。

不具有上述環氧基之取代基係除了環氧基以外的取代基，並且作為取代基的一部分亦不包含環氧基之取代基。

作為不具有上述環氧基之取代基，例如可以舉出選自取代基群組 Y 且除了環氧基及部分地包含環氧基之基團之基團。

不具有上述環氧基之取代基為烷基為較佳，直鏈狀或支鏈狀的烷基為更佳。上述烷基的碳數為 1~5 為較佳。

**【0152】** 通式 (E1) 中，W 表示含有環氧基之基團。

含有環氧基之基團係作為環氧基本身之基團，或者係部分地包含環氧基之 1 價的基團。

部分地包含上述環氧基之 1 價的基團係在基團的整體中，具有 1 個以

上（較佳為 1~8 個）環氧基之基團。

部分地包含上述環氧基之 1 價的基團為“-(2 價的烴基)<sub>M1</sub>-(-O-2 價的烴基-)<sub>M2</sub>-環氧基”所表示之基團為較佳。在上述基團中，M1 表示 0 或 1。M2 表示 1 以上（較佳為 1~10）的整數。作為上述基團中的 2 價的烴基，例如，可以舉出伸烷基（較佳為碳數 1~6）、伸烯基（-CH=CH-等。較佳為碳數 2~6）、伸炔基（-C≡C-等。較佳為碳數 2~6）、伸芳基（伸苯基等。較佳為碳數 6~15）及將該等組合而成之基團。上述 2 價的烴基可以具有取代基，亦可以不具有取代基，上述 2 價的烴基可以進一步具有含有環氧基之基團來作為取代基。可以存在複數個之上述 2 價的烴基可以分別相同亦可以不同。

通式 (E1) 中存在複數個之 W 可以分別相同亦可以不同。

**【0153】** 作為其他環氧化合物，還可以舉出環氧基縮環之化合物。作為這種化合物，例如，可以舉出 3,4:8,9-二環氧雙環[4.3.0]壬烷等。

**【0154】** 作為其他環氧化合物，除此以外，例如，可以舉出雙酚 A、F、S、AD 等作為環氧丙基醚之雙酚 A 型環氧化合物、雙酚 F 型環氧化合物、雙酚 S 型環氧化合物、雙酚 AD 型環氧化合物等；添加了氫之雙酚 A 型環氧化合物、添加了氫之雙酚 AD 型環氧化合物等；苯酚酚醛清漆型的環氧丙基醚（苯酚酚醛清漆型環氧化合物）、甲酚酚醛清漆型的環氧丙基醚（甲酚酚醛清漆型環氧化合物）、雙酚 A 酚醛清漆型的環氧丙基醚等；二環戊二烯型的環氧丙基醚（二環戊二烯型環氧化合物）；二羥基戊二烯型的環氧丙基醚（二羥基戊二烯型環氧化合物）；聚羥基苯型的環氧丙基醚（聚羥基苯型環氧化合物）；苯聚羧酸型的環氧丙基醚（苯聚羧酸型環氧化合物）；

三酚甲烷型環氧化合物；及苯氧基樹脂等。可以將上述各化合物中的環氧丙基醚基及/或環氧丙酯基中的 1 個或 2 個以上被取代為二環氧丙基胺基或二環氧丙基胺基伸烷基（二環氧丙基胺基亞甲基等）之化合物用作環氧化合物。

上述各化合物可以具有取代基。例如，上述各化合物中所包含之芳香環基、環烷環基及/或伸烷基等可以具有除了環氧丙基醚基、環氧丙酯基、二環氧丙基胺基及/或二環氧丙基胺基伸烷基以外的取代基。

**【0155】** 藉由考慮組成物中需要實現之各性能而確定所使用之環氧化合物為較佳。

例如，環氧化合物具有芳香環基（苯環等）之情況下，導熱材料的導熱性更加優異。

使用具有撓性結構或者成形性優異之環氧化合物之情況下，由組成物形成之半硬化片的保存穩定性更加優異。作為這種環氧化合物，可以舉出具有雙酚 F 型環氧化合物、通式 (E1) 所表示之環氧化合物及二環氧丙基胺基之環氧化合物。

環氧化合物具有液晶性之情況下，由組成物形成之導熱材料的導熱率及/或剝離強度更加優異。

又，環氧化合物係通式 (DN) 所表示之環氧化合物之情況下，由組成物形成之導熱材料的導熱率及/或剝離強度更加優異。

**【0156】** 環氧化合物可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

藉由使用 2 種以上的環氧化合物，容易調整組成物的性能平衡。

例如，使用雙酚 F 型環氧化合物及苯氧基樹脂之情況下，使用雙酚 F

型環氧化合物及苯酚酚醛清漆型環氧化合物之情況及使用聚羥基苯型環氧化合物及苯酚酚醛清漆型環氧化合物之情況下等時，組成物的性能的平衡變得更加良好。

**【0157】** 在組成物中，環氧化合物中所包含之環氧基的數與所有酚化合物中所包含之酚性羥基的數之比（環氧基的數/酚性羥基的數）為 40/60～60/40 為較佳，45/55～55/45 為更佳。

亦即，組成物中的、所有酚化合物與環氧化合物的含量之比成為上述“環氧基的數/酚性羥基的數”在上述範圍內之比為較佳。

另外，此處提及之所有酚化合物意指特定酚化合物及其他酚化合物這兩者。

**【0158】** 又，在組成物中，環氧化合物的環氧基與活性氫（可以係來自於酚性羥基之活性氫，亦可以係其他的含有活性氫之化合物的活性氫）的當量比（環氧基的數/活性氫的數）為 30/70～70/30 為較佳，40/60～60/40 為更佳，45/55～55/45 為進一步較佳。

**【0159】** 又，組成物中，環氧化合物與所有酚化合物的合計含量相對於組成物的總固體成分為 5～90 質量%為較佳，10～50 質量%為更佳，15～40 質量%為進一步較佳。

另外，總固體成分意指形成導熱材料之成分，不包含溶劑。此處提及之形成導熱材料之成分可以為在形成導熱材料時進行反應（聚合）而化學結構改變之成分。又，只要為形成導熱材料之成分，則即使其性狀為液體狀，亦將其視為固體成分。

**【0160】** 〔硬化促進劑〕

本發明的組成物包含硬化促進劑。

作為硬化促進劑，例如，可以舉出三鄰甲苯基膦、三苯基膦、三氟化硼胺錯合物及日本特開 2012-67225 號公報的 0052 段中記載之化合物。又，還可以舉出如四苯硼酸四苯膦 (TPP-K)、四對甲苯硼酸四苯膦 (TPP-MK)、四-正丁基膦月桂酸酯 (TBP-LA)、雙 (四-正丁基膦) 均苯四酸酯及四苯基膦的雙 (萘-2,3-二氧基) 苯基矽酸酯加成物那樣的四級膦系化合物 (膦鹽) 等鎘鹽系硬化促進劑。

除此之外，可以舉出 2-甲基咪唑 (產品名稱; 2MZ)、2-十一基咪唑 (產品名稱; C11-Z)、2-十七烷基咪唑 (產品名稱; C17Z)、1,2-二甲基咪唑 (產品名稱; 1.2DMZ)、2-乙基-4-甲基咪唑 (產品名稱; 2E4MZ)、2-苯基咪唑 (產品名稱; 2PZ)、2-苯基-4-甲基咪唑 (產品名稱; 2P4MZ)、1-苄基-2-甲基咪唑 (產品名稱; 1B2MZ)、1-苄基-2-苯基咪唑 (產品名稱; 1B2PZ)、1-氰乙基-2-甲基咪唑 (產品名稱; 2MZ-CN)、1-氰乙基-2-十一基咪唑 (產品名稱; C11Z-CN)、1-氰乙基-2-苯基咪唑三聚體 (產品名稱; 2PZCNS-PW)、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡 (產品名稱; 2MZ-A)、2,4-二胺基-6-[2'-十一基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡 (產品名稱; C11Z-A)、2,4-二胺基-6-[2'-乙基-4'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡 (產品名稱; 2E4MZ-A)、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡異三聚氰酸加成物 (產品名稱; 2MA-OK)、2-苯基-4,5-二羥基甲基咪唑 (產品名稱; 2PHZ-PW)、2-苯基-4-甲基-5-羥基甲基咪唑 (產品名稱; 2P4MHZ-PW)、1-氰乙基-2-苯基咪唑 (產品名稱; 2PZ-CN)、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡 (產品名稱; 2MZA-PW) 及 2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑

基-(1')]-乙基-均三吡異三聚氰酸加成物(產品名稱;2MAOK-PW)等咪唑系硬化促進劑等(SHIKOKU CHEMICALS CORPORATION 製造)。此外,作為三芳基磷系的硬化促進劑,還可以舉出日本特開 2004-43405 號公報的 0052 段中記載之化合物。作為對三芳基磷加成三苯基硼烷而得之磷系硬化促進劑,還可以舉出日本特開 2014-5382 的 0024 段中記載之化合物。

其中,硬化促進劑為含有包含磷原子之化合物為較佳,包含磷鹽為更佳。硬化促進劑可以係包含磷原子之化合物或磷鹽本身。包含磷原子之化合物或磷鹽的含量相對於硬化促進劑的總質量為 10~100 質量%為較佳,50~100 質量%為更佳,80~100 質量%為進一步較佳。

硬化促進劑可以單獨使用 1 種,亦可以使用 2 種以上。

硬化促進劑的含量相對於組成物的總固體成分為 0.002 質量%以上為較佳,0.02 質量%以上為更佳,0.07 質量%以上為進一步較佳。硬化促進劑的含量相對於組成物的總固體成分為 5 質量%以下為較佳,2 質量%以下為更佳,1 質量%以下為進一步較佳。

硬化促進劑的含量相對於所有環氧化合物為 0.01 質量%以上為較佳,0.10 質量%以上為更佳,0.55 質量%以上為進一步較佳。硬化促進劑的含量相對於所有環氧化合物,40 質量%以下為較佳,12 質量%以下為更佳,10 質量%以下為進一步較佳,5 質量%以下為特佳。

#### 【0161】〔無機物〕

本發明的組成物包含無機物。

作為無機物,可以使用先前在導熱材料的無機填料中所使用之任意無機物。作為無機物,從導熱材料的導熱性及絕緣性更加優異之觀點考慮,

包含無機氮化物或無機氧化物為較佳，至少包含無機氮化物為更佳。

**【0162】** 無機物的形狀並沒有特別限制，可以係粒子狀，亦可以係薄膜狀，或者可以係板狀。粒子狀無機物的形狀可以舉出米粒狀、球形狀、立方體狀、紡錘形狀、鱗片狀、凝聚狀及不規則形狀。

**【0163】** 作為無機氧化物，例如，可以舉出氧化鋯 ( $\text{ZrO}_2$ )、氧化鈦 ( $\text{TiO}_2$ )、氧化矽 ( $\text{SiO}_2$ )、氧化鋁 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、氧化鐵 ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{FeO}$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )、氧化銅 ( $\text{CuO}$ 、 $\text{Cu}_2\text{O}$ )、氧化鋅 ( $\text{ZnO}$ )、氧化釷 ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ )、氧化鈮 ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ )、氧化鉬 ( $\text{MoO}_3$ )、氧化銦 ( $\text{In}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}$ )、氧化錫 ( $\text{SnO}_2$ )、氧化鉭 ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ )、氧化鎢 ( $\text{WO}_3$ 、 $\text{W}_2\text{O}_5$ )、氧化鉛 ( $\text{PbO}$ 、 $\text{PbO}_2$ )、氧化鉍 ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ )、氧化鈰 ( $\text{CeO}_2$ 、 $\text{Ce}_2\text{O}_3$ )、氧化銻 ( $\text{Sb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sb}_2\text{O}_5$ )、氧化鍺 ( $\text{GeO}_2$ 、 $\text{GeO}$ )、氧化鏷 ( $\text{La}_2\text{O}_3$ ) 及氧化鈷 ( $\text{RuO}_2$ ) 等。

上述無機氧化物可以僅使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

無機氧化物為氧化鈦、氧化鋁或氧化鋅為較佳，氧化鋁為更佳。

無機氧化物亦可以係作為非氧化物所準備之金屬在環境下等被氧化而產生之氧化物。

**【0164】** 作為無機氮化物，例如，可以舉出氮化硼 ( $\text{BN}$ )、氮化碳 ( $\text{C}_3\text{N}_4$ )、氮化矽 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )、氮化鎵 ( $\text{GaN}$ )、氮化銦 ( $\text{InN}$ )、氮化鋁 ( $\text{AlN}$ )、氮化鉻 ( $\text{Cr}_2\text{N}$ )、氮化銅 ( $\text{Cu}_3\text{N}$ )、氮化鐵 ( $\text{Fe}_4\text{N}$ )、氮化鐵 ( $\text{Fe}_3\text{N}$ )、氮化鏷 ( $\text{LaN}$ )、氮化鋰 ( $\text{Li}_3\text{N}$ )、氮化鎂 ( $\text{Mg}_3\text{N}_2$ )、氮化鉬 ( $\text{Mo}_2\text{N}$ )、氮化鈮 ( $\text{NbN}$ )、氮化鉭 ( $\text{TaN}$ )、氮化鈦 ( $\text{TiN}$ )、氮化鎢 ( $\text{W}_2\text{N}$ )、二氮化鎢 ( $\text{WN}_2$ )、氮化釷 ( $\text{YN}$ ) 及氮化鋯 ( $\text{ZrN}$ ) 等。

上述無機氮化物可以僅使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

無機氮化物包含鋁原子、硼原子或矽原子為較佳，包含氮化鋁、氮化硼或氮化矽為更佳，包含氮化鋁或氮化硼為進一步較佳，包含氮化硼為特佳。

**【0165】** 無機物的大小並沒有特別限制，從無機物的分散性更加優異之觀點考慮，無機物的平均粒徑為  $500\mu\text{m}$  以下為較佳， $300\mu\text{m}$  以下為更佳， $200\mu\text{m}$  以下為進一步較佳。下限並沒有特別限制，從操作性的觀點考慮， $10\text{nm}$  以上為較佳， $100\text{nm}$  以上為更佳。

作為無機物的平均粒徑，使用市售品之情況下，採用目錄值。在沒有目錄值之情況下，作為上述平均粒徑的測量方法，隨機選擇 100 個無機物，利用電子顯微鏡分別測量無機物的粒徑（長徑），並對它們進行算術平均來求出。

**【0166】** 無機物可以僅使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

無機物包含無機氮化物及無機氧化物中的至少一者為較佳，至少包含無機氮化物為更佳。可以包含無機氮化物及無機氧化物這兩者。

作為上述無機氮化物，包含氮化硼及氮化鋁中的至少一者為較佳，至少包含氮化硼為更佳，至少包含平均粒徑為  $20\mu\text{m}$  以上的凝聚狀氮化硼為進一步較佳。

無機物中的無機氮化物（較佳為氮化硼及/或氮化鋁）的含量相對於無機物的總質量為 10~100 質量%為較佳，40~100 質量%為更佳，80~100 質量%為進一步較佳。

作為上述無機氧化物，氧化鋁為較佳。

**【0167】** 從導熱材料的導熱性更加優異之觀點考慮，組成物至少包含

平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上（較佳為 30 $\mu\text{m}$  以上）的無機物（較佳為無機氮化物或無機氧化物，更佳為無機氮化物，進一步較佳為氮化硼，特佳為凝聚狀氮化硼）為較佳。

**【0168】** 包含組成物之無機物（較佳為無機氮化物或無機氧化物，更佳為無機氮化物，進一步較佳為氮化硼及/或氮化鋁）實質上僅為平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上（較佳為 30 $\mu\text{m}$  以上）的無機物亦較佳。無機物實質上僅為平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上的無機物係指，平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上的無機物的含量相對於無機物的總質量超過 99 質量%。

**【0169】** 又，無機物分別具有平均粒徑不同之無機物亦較佳，例如，包含平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上的無機物亦即無機物 X 及平均粒徑小於 20 $\mu\text{m}$  的無機物亦即無機物 Y 這兩者亦較佳。

上述無機物 X 的平均粒徑為 20~300 $\mu\text{m}$  為較佳，30~200 $\mu\text{m}$  為更佳。上述無機物 Y 的平均粒徑為 1nm 以上且小於 20 $\mu\text{m}$  為較佳，10nm 以上 15 $\mu\text{m}$  以下為更佳。

無機物 X 為無機氮化物或無機氧化物為較佳，無機氮化物為更佳，氮化硼為進一步較佳，凝聚狀氮化硼為特佳。

無機物 Y 為無機氮化物或無機氧化物為較佳，氮化硼或氧化鋁為更佳。

無機物 X 及無機物 Y 分別可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

無機物中，無機物 X 的含量與無機物 Y 的含量的質量比（無機物 X 的含量/無機物 Y 的含量）為 50/50~99/1 為較佳，60/40~95/5 為進一步較佳。

**【0170】** 無機物（尤其，氮化硼）可以被表面處理。另外，表面處理

意指與使用了後述之表面修飾劑之表面修飾不同之處理。

認為：藉由進行這種處理而在無機物的表面導入官能基，無機物變得容易與酚化合物，環氧化合物及/或後述之表面修飾劑等進行相互作用，所形成之導熱材料的導熱性及剝離強度等得到進一步改善。

作為表面處理，例如，可以舉出電漿處理（真空電漿處理、大氣壓電漿處理及水電漿處理等）、紫外線照射處理、電暈處理、電子束照射處理、臭氧處理、燒成處理、火焰處理及氧化劑處理等。作為上述氧化劑處理，可以在酸性條件下進行，亦可以在鹼性條件（pH12 以上等）下進行。

**【0171】** 組成物中的無機物的含量相對於組成物的總固體成分為 10 質量%以上，40 質量%以上為較佳，50 質量%以上為更佳，60 質量%以上為進一步較佳。上限小於 100 質量%，95 質量%以下為較佳。

**【0172】** 〔表面修飾劑〕

本發明的組成物可以進一步包含表面修飾劑，以作為與上述成分不同之成分。

表面修飾劑係對上述無機物進行表面修飾之成分。

在本說明書中，“表面修飾”係指有機物吸附在無機物的表面中的至少一部分之狀態。吸附的形態並無特別限定，只要為鍵結狀態即可。亦即，表面修飾亦包含有機物的一部分脫離而獲得之有機基團鍵結在無機物表面之狀態。鍵結可以為共價鍵、配位鍵、離子鍵、氫鍵、範德華鍵（van der Waals bond）及金屬鍵等中的任一鍵。表面修飾可以在表面的至少一部分形成單分子膜。單分子膜為藉由有機分子的化學吸附而形成之單層膜，被稱為 Self-Assembled Mono Layer（自組裝單分子層）（SAM）。另外，本說明書中，

表面修飾可以僅在無機物的表面的一部分進行，亦可以整體地進行。本說明書中，“表面修飾無機物”表示藉由表面修飾劑而表面被修飾之無機物，亦即在無機物的表面吸附有機物之物質。

亦即，在本發明的組成物中，無機物可以與表面修飾劑共同地構成表面修飾無機物（較佳為表面修飾無機氮化物及/或表面修飾無機氧化物）。

**【0173】** 作為表面修飾劑，能夠使用長鏈烷基脂肪酸等羧酸、有機膦酸、有機磷酸酯、有機矽烷分子（矽烷偶合劑）等先前公知的表面修飾劑。此外，例如，可以利用日本特開 2009-502529 號公報、日本特開 2001-192500 號公報、日本專利 4694929 號中記載之表面修飾劑。

**【0174】** 上述矽烷偶合劑例如係具有直接鍵結於 Si 原子之水解性基之化合物。

作為上述水解性基，可以舉出烷氧基（較佳為碳數 1~10）及氯原子等鹵素原子。

矽烷偶合劑所具有之直接鍵結於 Si 原子之水解性基的數為 1 以上為較佳，2 以上為更佳，3 以上為進一步更佳。上述數並沒有上限，例如為 10000。

矽烷偶合劑具有反應性基亦較佳。

作為上述反應性基的具體例，可以舉出環氧基、氧雜環丁基、乙烯基、（甲基）丙烯醯基、苯乙烯基、胺基、異氰酸酯基、巰基及酸酐基。

矽烷偶合劑所具有之反應性基的數為 1 以上為較佳，2 以上為更佳，3 以上為進一步更佳。上述數並沒有上限，例如為 10000。

作為矽烷偶合劑，例如，可以舉出 3-胺基丙基三乙氧基矽烷、3-（2-胺基乙基）胺基丙基三乙氧基矽烷、3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-（2-胺基

乙基) 胺基丙基三甲氧基矽烷、N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-巰基三乙氧基矽烷及 3-脲丙基三乙氧基矽烷。

**【0175】** 表面修飾劑可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

組成物包含表面修飾劑之情況下，表面修飾劑的含量相對於組成物的總固體成分為 0.005~5 質量%為較佳，0.05~3 質量%為更佳。

組成物包含表面修飾劑之情況下，表面修飾劑的含量相對於所有無機物為 0.01~10 質量%為較佳，0.10~5 質量%為更佳。

**【0176】** [離子捕捉劑]

本發明的組成物可以包含離子捕捉劑。

離子捕捉劑在組成物中或在使用組成物而形成之導熱材料中吸附離子性的雜質。藉此，即使組成物或導熱材料吸濕之情況下，亦能夠良好地維持導熱材料的絕緣可靠性。

作為離子捕捉劑，並沒有特別限制，能夠使用公知的者。作為離子捕捉劑，例如，可以舉出藉由離子交換而捕捉陽離子之陽離子吸附劑、藉由離子交換而捕捉陰離子之陰離子吸附劑及藉由離子交換而捕捉陽離子及陰離子這兩者之雙離子捕捉劑等無機離子吸附劑；三吡啶硫醇化合物；三吡啶胺化合物；以及雙酚系還元劑。

**【0177】** 作為無機離子吸附劑，可以舉出選自包括銻、鉍、鋳、鈦、錫、鎂及鋁之群組中的 1 種或 2 種以上的、氧化物、氧化水合物及氫氧化物。

其中，選自包括鉍、鋳、鎂及鋁之群組中的 2 種以上的氧化物、氧化水合物、或者氫氧化物為較佳，鎂、鋁及鋳的 3 成分系氧化物、鉍及鋳的 2

成分系氧化水合物、以及包含鎂及鋁之氫氧化物亦即水滑石為更佳，水滑石為進一步較佳。

**【0178】** 作為三吡啶硫醇化合物，例如，可以舉出 2-二丁基胺基-4,6-二巰基-均三吡。

作為雙酚系還元劑，例如，可以舉出 2,2'-亞甲基雙-(4-乙基-6-三級丁基苯酚) 及 4,4'-亞丁基雙-(6-三級丁基-3-甲基苯酚)。

**【0179】** 離子補捉劑可以使用市售品，例如，可以舉出 DHF-4A、DHT-4A、DHT-4A-2、DHT-4C、Kyoward500、KW-2000 及 KW-2100 (產品名稱、Kyowa Chemical Industry Co. Ltd.製造)；IXE-100、IXE-500、IXE-600、IXE-700F、IXE-800、IXE-6107、IXEPLAS-A1、IXEPLAS-A2 及 IXEPLAS-B1 (產品名稱、TOAGOSEI CO.,LTD.製造)；Gisnet DB (產品名稱、Sankyo Pharmaceutical Co.,Ltd.製造)；VD-3 及 VD-5 (產品名稱、SHIKOKU CHEMICALS CORPORATION 製造)；以及 Yoshinox BB (產品名稱、YOSHITOMI PHARMACEUTICAL INDUSTRIES, LTD.製造)。

**【0180】** 組成物包含離子補捉劑之情況下，離子補捉劑的含量相對於組成物的總固體成分例如為 0.01~10 質量%。

離子補捉劑可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。

**【0181】** [ 溶劑 ]

組成物可以進一步包含溶劑。

溶劑的種類並沒有特別限制，有機溶劑為較佳。作為有機溶劑，例如，可以舉出環戊酮、環己酮、乙酸乙酯、甲乙酮、二氯甲烷及四氫呋喃等。

組成物包含溶劑之情況下，溶劑的含量為將組成物的固體成分濃度設

為 20~90 質量%之量為較佳，設為 30~80 質量%之量為更佳，設為 50~80 質量%之量為進一步較佳。

溶劑的含量相對於組成物的總質量為 5~80 質量%為較佳，15~70 質量%為更佳，20~50 質量%為進一步較佳。

**【0182】** [發熱峰]

關於本發明的組成物，在用差示掃描測熱計來測量使用組成物形成之半硬化片之情況下，檢測到發熱峰之溫度（發熱峰溫度）成為 130°C以上為較佳，成為 140°C以上為更佳，成為 150°C以上為進一步較佳。上述溫度的上限並沒有特別限制、例如，240°C以下為較佳。

使用於上述發熱峰的測量之半硬化片係指，藉由組成物而形成之半硬化狀態的膜（半硬化膜）。上述半硬化片係使組成物置於所謂的 B 階段狀態而獲得之薄片。

**【0183】** 上述半硬化片具體以如下方式定義。

亦即，首先，使用 DSC（差示掃描測熱計、Seiko Instruments Inc.製造之 DSC320/6200 等）從 25°C至 240°C，在 10°C/分鐘的升溫條件下，對未硬化的組成物觀測反應情況。將其設為測量 1。另外，測量對象的組成物包含溶劑之情況下，提前在減壓下去除組成物中的溶劑之後實施測量 1。

接著，用 DSC 將由相同的組成物形成且成為是否為半硬化片之判斷對象之薄片（判斷對象薄片）以相同的方式，從 25°C至 240°C，在 10°C/分鐘的升溫條件下，觀測反應情況。將其設為測量 2。

然後，將在測量 1 中檢測之發熱峰的所有面積設為 100%，並且將在測量 2 中檢測之發熱峰的所有面積的比例設為 N%來求出。將（100-N）%設

為判斷對象薄片的反應速度，上述反應速度為 1%以上且 50%以下之情況下，將測量 2 中所使用之判斷對象薄片判斷為半硬化片。

關於形成半硬化片之方法，將在後段詳細敘述組成物的硬化方法中進行說明。

**【0184】** 又，在半硬化片中存在複數個發熱峰之情況下，將在最低溫側存在之實質發熱峰下的發熱峰溫度作為半硬化片的發熱峰溫度。

上述“實質發熱峰”表示相對於從 25°C至 240°C之間存在之半硬化片的發熱峰的所有面積（100%）佔 10%以上的面積之發熱峰。

**【0185】** 關於本發明的組成物，在用 DSC 測量使用組成物而形成之未硬化的片之情況下，所檢測之發熱峰寬亦較佳。

上述未硬化的薄片係指，例如，組成物包含溶劑之情況下，去除溶劑而獲得之薄片，所謂的 A 階段狀態下的薄片（膜）。

又，發熱峰寬係指，發熱峰的半寬度大及/或發熱峰的溫度與反應開始溫度之差大。

當組成物具有這種特徵時，在寬的溫度範圍內使組成物的硬化及使用組成物之接著成為可能，且能夠應用各種效果條件之觀點而言為較佳。

**【0186】** 〔組成物的製造方法〕

組成物的製造方法並沒有特別限制，能夠採用公知的方法，例如，能夠藉由混合上述各種成分來製造組成物。在進行混合時，可以一次性混合各種成分，亦可以依次混合各種成分。

混合成分之方法並沒有特別限制，能夠使用公知的方法。混合中使用之混合裝置為液中分散機為較佳，例如，可以舉出自轉公轉混合機、高速

旋轉剪切型攪拌機等攪拌機、膠磨機、輥磨機、高壓噴射式分散機、超聲波分散機、珠磨機及均質機。混合裝置可以單獨使用 1 種，亦可以使用 2 種以上。可以在進行混合的前後及/或同時進行脫氣處理。

**【0187】**〔組成物的硬化方法〕

本發明的組成物為導熱材料形成用組成物為較佳。

能夠藉由對本發明的組成物進行硬化處理而獲得導熱材料。

組成物的硬化方法並沒有特別限制，熱硬化反應為較佳。

熱硬化反應時的加熱溫度並沒有特別限制。例如，只要在 50~250°C 的範圍內適當選擇即可。又，在進行熱硬化反應時，可以經過複數次溫度不同之加熱處理來實施。

硬化處理對設為薄膜狀或片狀之組成物進行為較佳。具體而言，例如，只要將組成物塗佈成膜並進行硬化反應即可。

進行硬化處理時，藉由在基材上塗佈組成物而形成塗膜之後使其硬化為較佳。此時，亦可以使不同之基材進一步接觸於在基材上所形成之塗膜之後進行硬化處理。硬化後所獲得之硬化物（導熱材料）可以與基材的一者或兩者分離，亦可以不分離。

又，在進行硬化處理時，亦可以在各個基材上塗佈組成物而分別形成塗膜並在使所獲得之塗膜彼此接觸之狀態下進行硬化處理。硬化後所獲得之硬化物（導熱材料）可以與基材的一者或兩者分離，亦可以不分離。

**【0188】** 硬化處理可以在組成物成為半硬化狀態之時點結束。又，亦可以使組成物成為半硬化狀態之後，進一步實施硬化處理而完成硬化。

亦可以將用於使組成物成為半硬化狀態之硬化處理（亦稱為“半硬化處

理”)和用於完全使其硬化之硬化處理(亦稱為“主硬化處理”)分為單獨的步驟進行。

**【0189】** 例如,在半硬化處理中,在基材上塗佈組成物而形成塗膜之後,可以直接在無加壓狀態下對基材上的塗膜進行加熱等而使其成為半硬化狀態的導熱材料(亦稱為“半硬化膜”或“半硬化片”),亦可以在一邊併用沖壓加工,一邊對基材上的塗膜進行加熱等而使其成為半硬化膜。在沖壓加工時,可以在上述加熱等之前或之後實施沖壓加工,亦可以在其期間進行沖壓。半硬化處理中,當實施沖壓加工時,有時容易調整所獲得之半硬化膜的膜厚及/或容易降低半硬化膜中的空隙量。

在半硬化處理中,可以將形成於各個基材上之塗膜彼此積層之狀態下進行半硬化處理,亦可以不積層塗膜彼此之狀態下進行半硬化處理。可以在使由組成物形成之塗膜進一步與上述除了塗膜以外的材料接觸之狀態下實施半硬化處理。

**【0190】** 可以將所獲得之半硬化膜直接用作導熱材料,亦可以對半硬化膜進一步實施主硬化處理之後將其用作完全硬化之導熱材料。

在主硬化處理中,可以將半硬化膜直接在無加壓狀態下進行加熱等,亦可以在進行沖壓加工之後,或者一邊進行沖壓,一邊進行加熱等。此時,在主硬化處理中,可以在使各個半硬化膜彼此積層之狀態下進行主硬化處理,亦可以在不積層半硬化膜彼此之狀態下進行主硬化處理。

又,主硬化處理可以在將半硬化膜配置成與所使用之器件等接觸之狀態下實施。藉由主硬化處理而器件與本發明的導熱材料接著亦較佳。

**【0191】** 半硬化處理及/或主硬化處理等中的硬化處理時可以實施之

使用於沖壓加工之壓機並沒有限制，例如，可以使用平板壓機，亦可以使用輥壓機。

在使用輥壓機之情況下，例如，將在基材上形成塗膜而獲得之附塗膜的基材夾在兩根輥相對向之一對輥之間，一邊旋轉上述一對輥並使上述附塗膜基材通過，一邊沿上述附塗膜的基材的膜厚方向施加壓力為較佳。關於上述附塗膜的基材，可以僅在塗膜的一表面上存在基材，亦可以在塗膜的兩個表面上存在基材。上述附塗膜的基材在輥壓機中可以僅通過 1 次，亦可以通過複數次。

在半硬化處理及/或主硬化處理等中進行硬化處理時，可以僅實施利用平板壓機之處理及利用輥壓機之處理中的一者，亦可以實施兩者。

**【0192】** 關於包括硬化反應之導熱材料的製作，亦能夠參閱“高導熱性複合材料”（CMC 出版、竹澤由高著）。

**【0193】** 導熱材料的形狀並沒有特別限制，能夠按照用途而成形為各種形狀。作為所成形之導熱材料的典型的形狀，例如，可以舉出片狀。

亦即，使用本發明的組成物而獲得之導熱材料為導熱片亦較佳。

又，使用本發明的組成物而獲得之導熱材料的導熱性為非各向異性而是各向同性為較佳。

**【0194】** 導熱材料為絕緣性（電絕緣性）為較佳。換言之，本發明的組成物為導熱性絕緣組成物為較佳。

例如，導熱材料在 23°C 相對濕度 65% 下的體積電阻率為  $10^{10}\Omega \cdot \text{cm}$  以上為較佳， $10^{12}\Omega \cdot \text{cm}$  以上為更佳， $10^{14}\Omega \cdot \text{cm}$  以上為進一步較佳。上限並沒有特別限制，一般為  $10^{18}\Omega \cdot \text{cm}$  以下。

**【0195】** [導熱材料的用途]

使用本發明的組成物而獲得之導熱材料能夠用作散熱片等散熱材料，並且能夠使用於各種器件的散熱用途。更具體而言，在器件上配置包含本發明的導熱材料之導熱層來製作附導熱層的器件，從而能夠利用導熱層有效地散熱來自器件之發熱。上述導熱層可以係包含後述之導熱性多層片之導熱層。

由於使用本發明的組成物而獲得之導熱材料具有充分的導熱性並且具有高耐熱性，因此適用於在個人電腦、普通家用電器及汽車等各種各樣的電子設備中所使用之功率半導體器件的散熱用途。

此外，由於使用本發明的組成物而獲得之導熱材料即使在半硬化狀態下亦具有充分的導熱性，因此亦能夠用作配置於各種裝置的構件間隙等、用於光硬化之光難以到達之部位之散熱材料。又，由於接著性亦優異，因此亦能夠用作具有導熱性之黏合劑。

**【0196】** 使用本發明的組成物而獲得之導熱材料可以與除了由本組成物形成之構件以外的另一構件組合而使用。

例如，片狀的導熱材料（導熱片）可以與除了由本組成物形成之層以外的其他的片狀的支撐體組合。

作為片狀的支撐體，例如，可以舉出塑膠薄膜、金屬薄膜或玻璃板。作為塑膠薄膜的材料，例如，可以舉出聚對酞酸乙二酯（PET）等聚酯、聚碳酸酯、丙烯酸樹脂、環氧樹脂、聚胺酯、聚醯胺、聚烯烴、纖維素衍生物及矽酮（silicone）。作為金屬薄膜，例如，可以舉出銅薄膜。

片狀的導熱材料（導熱片）的膜厚為 100~300 $\mu\text{m}$  為較佳，150~250 $\mu\text{m}$

為更佳。

**【0197】** 又，可以將導熱材料（較佳為導熱片）與黏合劑層及/或黏著劑層進行組合。

能夠經由這種黏合劑層及/或黏著劑層而將導熱材料與如器件那樣的需要轉移熱量之對象物接合，從而實現導熱材料與對象物更加牢固的接合。

例如，作為導熱性多層片，可以製作具有導熱片及設置於上述導熱片的單面或雙面之黏合劑層或黏著劑層之導熱性多層片。

另外，在上述導熱片的單面或雙面，可以分別設置有黏合劑層及黏著劑層中的一者，亦可以設置有兩者。可以在上述導熱片的一個面設置黏合劑層，且在另一個面設置黏著劑層。又，在上述導熱片的單面或雙面，可以部分地設置黏合劑層及/或黏著劑層，亦可以在整個面設置。

另外，如上所述，本發明中，導熱片等導熱材料可以係半硬化狀態（半硬化膜），導熱性多層片中的導熱片可以係半硬化狀態。導熱性多層片中的黏合劑層可以被硬化，亦可以係半硬化狀態，亦可以係未硬化狀態。

**【0198】** [化合物]

本發明還有關化合物。

本發明的化合物係適合於製作本發明的組成物之化合物。

本發明的化合物的一形態係上述通式（Z）所表示之化合物，其內容如上所述。

又，本發明的化合物的另一形態係上述通式（Z1）所表示之化合物，其內容如上所述。

又，本發明的化合物的另一形態係上述通式（Z2）所表示之化合物，

其內容如上所述。

[實施例]

**【0199】** 以下，基於實施例對本發明進行進一步詳細的說明。以下實施例所示之材料、使用量、比例、處理內容及處理步驟等，只要不脫離本發明的宗旨，則能夠適當地變更。故，本發明的範圍不應藉由以下所示之實施例進行限定性解釋。

**【0200】** [組成物的製備及評價]

[各種成分]

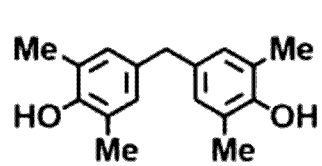
以下示出實施例及比較例中所使用之各種成分。

**【0201】** <酚化合物>

以下示出實施例及比較例中所使用之酚化合物。

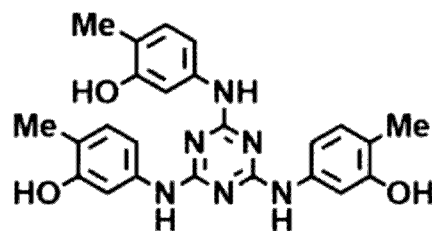
另外，化合物 A-1~A-9 為特定酚化合物。X-1~X-4 係除了特定酚化合物以外的酚化合物。

**【0202】** [化學式 32]



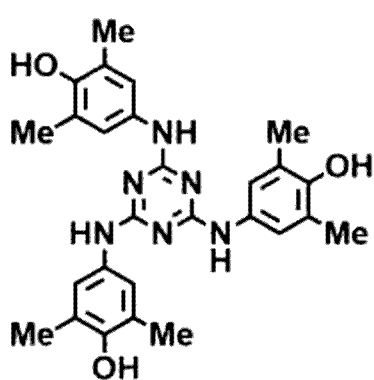
分子量：256

A-1



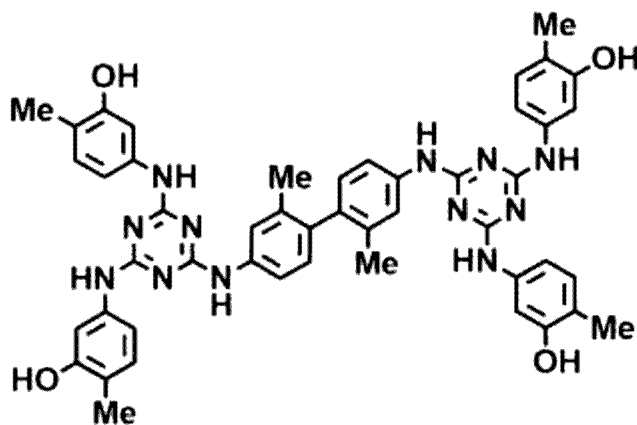
分子量：444

A-2



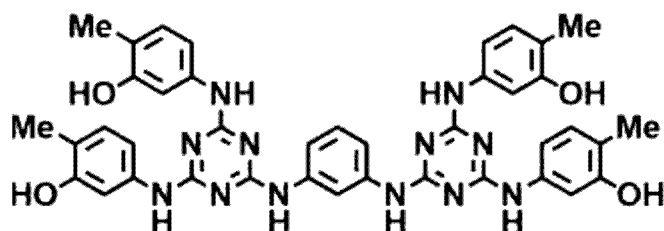
分子量：487

A-3



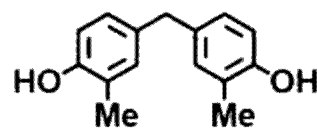
分子量：855

A-4



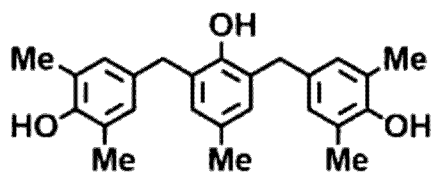
分子量：751

A-5



分子量：228

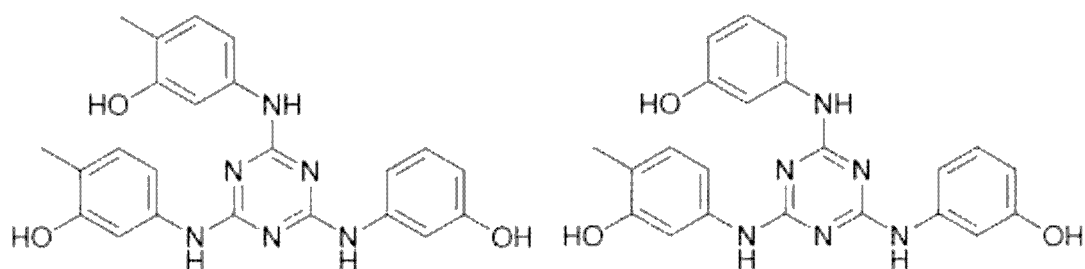
A-6



分子量：376

A-7

【0203】 [化學式 33]



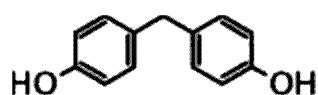
分子量：430

A-8

分子量：416

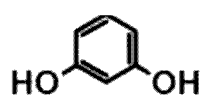
A-9

【0204】 [化學式 34]



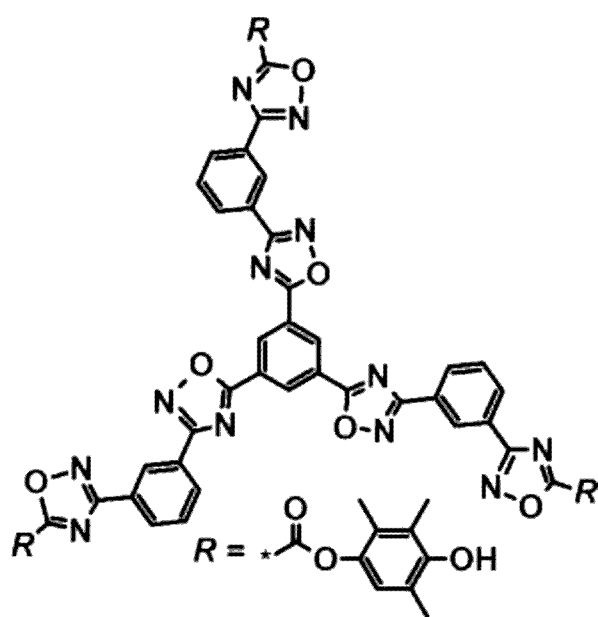
分子量：200

X-1



分子量：110

X-2



分子量：1249

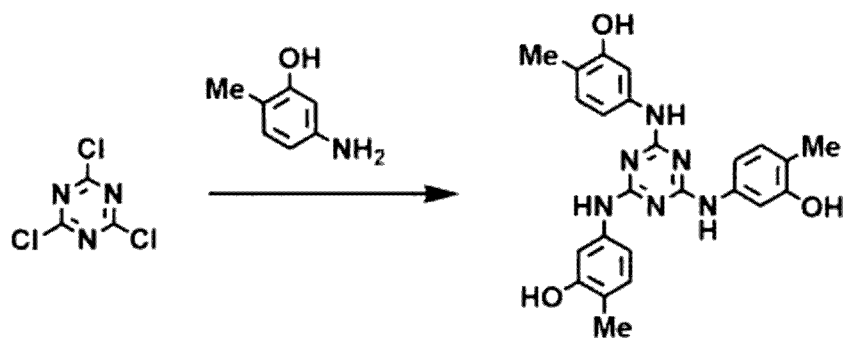
X-3

【0205】 · X-4：依照國際公開第 2017/14513 的[0215]~[0219]段中記載之方法而合成之鄰苯二酚間苯二酚酚醛清漆樹脂

【0206】 (A-2 的合成方法)

按照下述方案合成了酚化合物 A-2。

【0207】 [化學式 35]



**【0208】** 將三聚氯化氰（74.7g，0.41mol）和 2-丁酮（400ml）進行混合而成之混合液進行冰冷處理之後，每次少量地添加了 5-胺基-鄰甲酚（154.6g，1.26mol）。然後，在上述混合液中添加了將乙酸鈉三水合物（110.2g，0.81mol）溶解於水（165ml）之水溶液。在 80°C 下將上述混合液攪拌 2 小時之後，冷卻至室溫，並且向上述混合液中滴加將碳酸鈉（103g，0.97mol）溶解於水（596ml）之水溶液並攪拌了 30 分鐘。靜置上述混合液並去除了水相之後，用矽藻土過濾有機相並添加了 150ml 的乙醇。一邊攪拌一邊向所獲得之有機相中滴加水（1.91L），在攪拌 2 小時之後，過濾並取出所析出之結晶，並進行乾燥，從而獲得了 A-2。

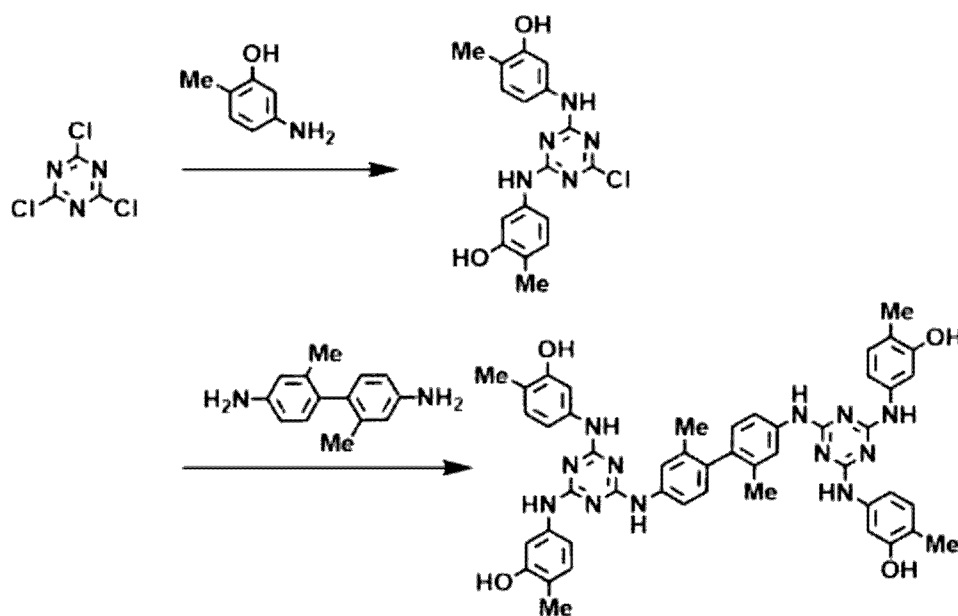
**【0209】** （A-3 的合成方法）

除了將在上述 A-2 的合成方法中使用之 5-胺基-鄰甲酚變更為 4-胺基-2,6-二甲基苯酚以外，利用與 A-2 的合成方法相同的方式合成了酚化合物 A-3。

**【0210】** （A-4 的合成方法）

按照下述方案合成了酚化合物 A-4。

**【0211】** [化學式 36]



【0212】 將三聚氯化氮（87.6g，0.475mol）和 2-丁酮（620ml）進行混合而成之混合液進行冰冷處理之後，每次少量地添加了 5-胺基-鄰甲酚（117g，0.95mol）。然後，在上述混合液中添加了將乙酸鈉三水合物（135.8g，0.998mol）溶解於水（193ml）之水溶液。在 45°C 下將上述混合液攪拌 2 小時之後，冷卻至室溫，並且向上述混合液中滴加將碳酸鈉（80.6g，0.76mol）溶解於水（700ml）之水溶液並攪拌了 30 分鐘。靜置上述混合液並去除了水相之後，用矽藻土過濾有機相並添加了 210ml 的乙醇。向所獲得之有機相中，一邊攪拌一邊滴加水（1.75L），在攪拌 2 小時之後，過濾並取出所析出之結晶，並進行乾燥，從而獲得了 A-4 的中間物。

【0213】 向將 A-4 的中間物（125.5g，0.35mol）與 2-丁酮（410ml）進行混合而成之混合液中添加了 2,2'-二甲對聯苯胺（m-tolidine）（37.3g，0.175mol）。向上述混合液中添加水（170ml），並在 80°C 下攪拌了 2 小時之後，冷卻至室溫。在上述混合液中滴加將碳酸鈉（29.8g，0.28mol）溶解於水（620ml）之水溶液，並攪拌了 30 分鐘。靜置上述混合液並去除水相之後，用矽藻土過濾了有機相。用蒸發器對所獲得之有機相蒸餾去除溶劑，

並溶解於 2-丙醇 (195ml) 中。將所獲得之溶液滴加到水 (2.25L) 中，攪拌 2 小時之後，過濾並取出所析出之結晶並進行乾燥，從而獲得了 A-4。

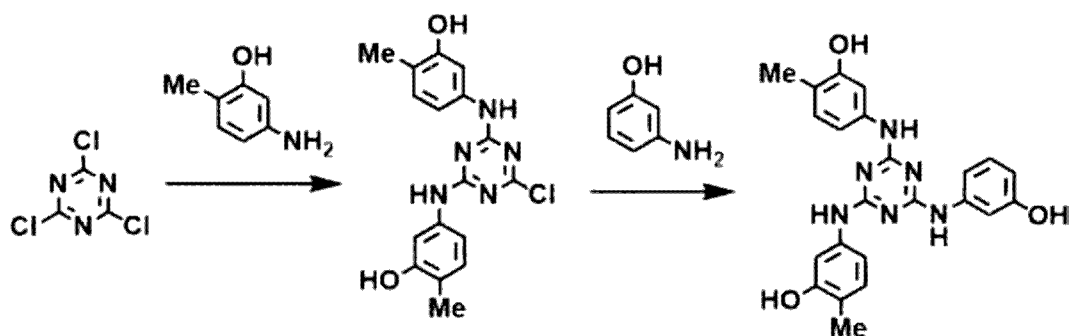
**【0214】** (A-5 的合成方法)

除了將在上述 A-4 的合成方法中使用之 2,2'-二甲對聯苯胺變更為間伸苯基二胺以外，以與 A-4 的合成方法相同的方式合成了酚化合物 A-5。

**【0215】** (A-8 的合成方法)

按照下述方案合成了酚化合物 A-8。

**【0216】** [化學式 37]

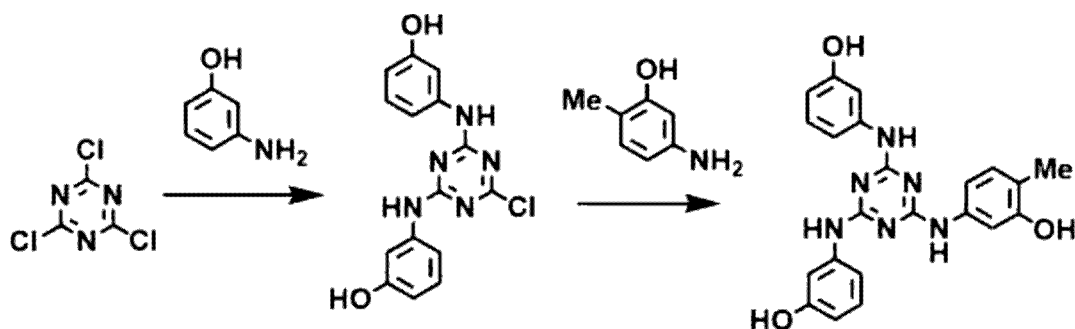


**【0217】** 將三聚氯化氰 (15.5g, 0.083mol) 和 2-丁酮 (75ml) 進行混合而成之混合液進行冰冷處理之後，每次少量地添加了 5-氨基-鄰甲酚 (20.7g, 0.168mol)。然後，在上述混合液中添加了將乙酸鈉三水合物 (22.8g, 0.168mol) 溶解於水 (32ml) 之水溶液。在 40°C 下將上述混合液攪拌了 2 小時之後，添加間氨基苯酚 (10.1g, 0.092mol)，並在 80°C 下攪拌了 2 小時。將上述混合液冷卻至室溫，並且向上述混合液中滴加將碳酸鈉 (21.3g, 0.20mol) 溶解於水 (134ml) 之水溶液並攪拌了 30 分鐘。靜置上述混合液並去除了水相之後，用矽藻土過濾有機相並添加了 34ml 的乙醇。向所獲得之有機相中，一邊攪拌一邊滴加水 (435ml)，在攪拌 2 小時之後，過濾並取出所析出之結晶，並進行乾燥，從而獲得了 A-8。

## 【0218】 (A-9 的合成方法)

按照下述方案合成了酚化合物 A-9。

## 【0219】 [化學式 38]



【0220】 除了將在上述 A-8 的合成方法中使用之 5-胺基-鄰甲酚和間胺基苯酚的使用順序進行替換以外，以與 A-8 的合成方法相同的方式合成了酚化合物 A-9。

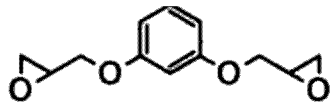
## 【0221】 &lt;環氧化合物&gt;

以下示出實施例及比較例中所使用之環氧化合物。

B-8、B-9 及 B-11 均為數量平均分子量為 300 以上的化合物。

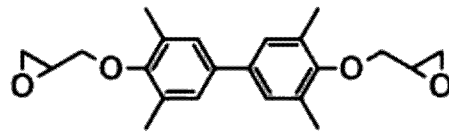
另外，B-5、B-6 及 B-7 係顯示液晶性之環氧化合物。

## 【0222】 [化學式 39]



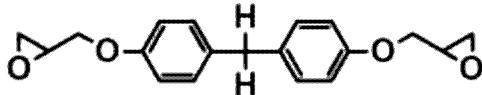
分子量：222

**B-1**



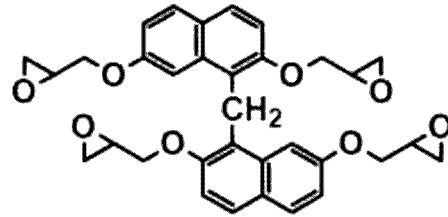
分子量：354

**B-2**



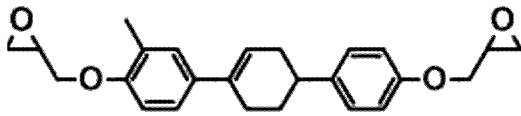
分子量：312

**B-3**



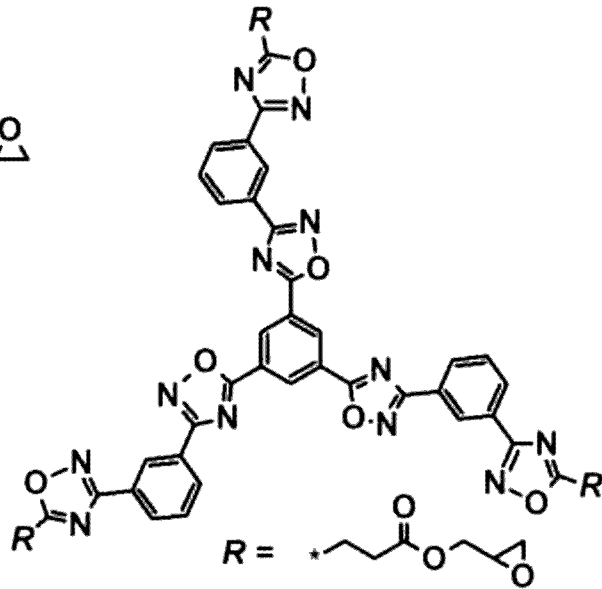
分子量：557

**B-4**



分子量：392

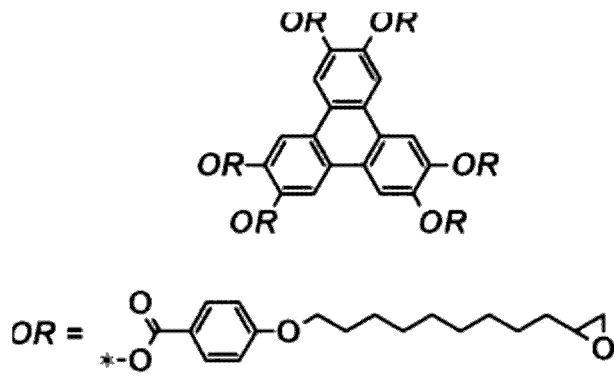
**B-5**



分子量：1099

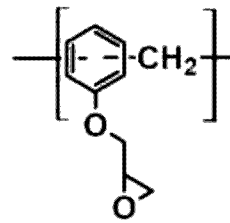
**B-6**

【0223】 [化學式 40]

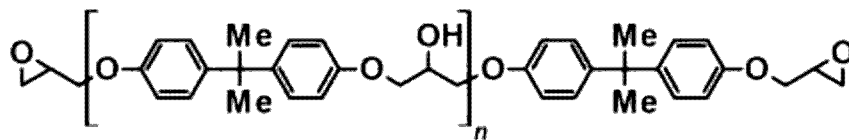


分子量：2055

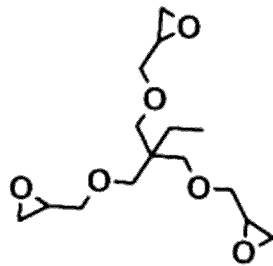
B-7



B-8

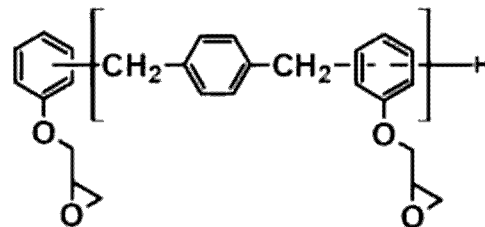


B-9



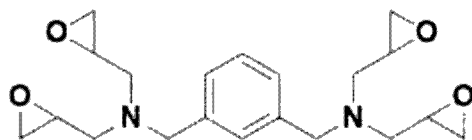
分子量：302

B-10



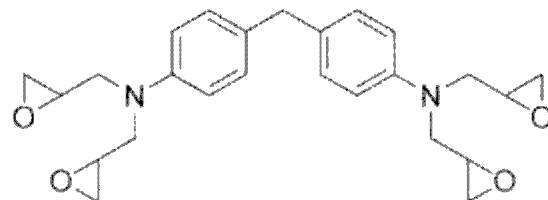
B-11

【0224】 [化學式 41]



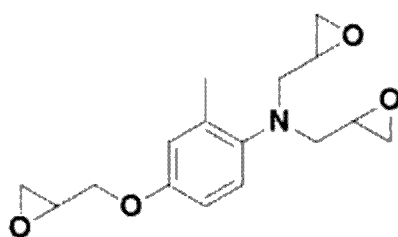
分子量：360

B-13



分子量：423

B-14



分子量：291

B-15

**【0225】** <無機物>

以下示出實施例及比較例中所使用之無機物。

- HP-40 : 凝聚狀氮化硼、平均粒徑 :40 $\mu\text{m}$ 、Mizushima Ferroalloy Co.,Ltd.  
製造
- SGPS : 凝聚狀氮化硼、平均粒徑 12 $\mu\text{m}$ 、Denka Company Limited 製  
造
- SP-3 : 鱗片狀氮化硼、平均粒徑 : 4 $\mu\text{m}$ 、Denka Company Limited 製  
造
- AA-3 : 氧化鋁、平均粒徑 : 3 $\mu\text{m}$ 、Sumitomo Chemical Co., Ltd.製造
- AA-04 : 氧化鋁、平均粒徑 : 0.4 $\mu\text{m}$ 、Sumitomo Chemical Co., Ltd.製  
造

**【0226】** <硬化促進劑>

- C-1 : 三鄰甲苯基磷
- C-2 : 三苯基磷
- C-3 : 2PHZ-PW (2-苯基-4,5-二羥基甲基咪唑)
- C-4 : TPP-MK (四對甲苯硼酸四苯磷)
- C-5 : TBP-LA (四-正丁基磷月桂酸酯)
- C-6 : 雙(四-正丁基磷)均苯四酸酯

**【0227】** <溶劑>

作為溶劑，使用了環戊酮。

**【0228】** <表面修飾劑>

作為表面修飾劑，使用了 KBM-573 (N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、

Shin-EtsuChemicalCo.,Ltd.製造)。

**【0229】** [組成物的製備]

將下述表 1 中所示之組合的環氧化合物及酚化合物，以當量（環氧化合物的環氧基的數與酚化合物的羥基的數成為相等的量）進行摻合而製備了混合體。

以上述混合體、溶劑、依據希望而使用之表面修飾劑及硬化促進劑的順序進行混合之後，添加了無機物。利用自轉公轉混合機（THINKY 公司製、Awatori Netaro ARE-310）對所獲得之混合物進行 5 分鐘的處理，獲得了各實施例或比較例的組成物（硬化性組成物）。

**【0230】** 其中，將溶劑的添加量設為組成物的固體成分濃度成為 50～80 質量%的量。

另外，關於組成物的固體成分濃度，在上述範圍內對每個組成物進行了調整，以使組成物的黏度大致相同。

組成物中，環氧化合物與酚化合物的合計含量（上述混合體的含量）相對於組成物的總固體成分為表 1 中的“合計量（質量%）”欄中示出之量。

組成物中，硬化促進劑、表面修飾劑、無機氮化物、無機氧化物的量相對於組成物的總固體成分分別為表 1 中的以“（質量%）”示出之量。

**【0231】** [評價]

[導熱率的評價]

<半硬化片（半硬化膜）的製作>

使用付測微器之塗敷器，在經脫模處理之 PET 薄膜（PET756501 LINTEC Corporation 製造、膜厚 75 $\mu$ m）的脫模面上均勻地塗佈所製備之組

成物，並且在 120°C 下乾燥 4 分鐘而製作了半硬化片（半硬化膜）。

關於上述半硬化片，利用說明書中記載之方法確認了反應速度之結果，確認到使用任意組成物製作之半硬化片的反應速度亦為 1% 以上且 50% 以下。

#### 【0232】 <導熱片的製作>

在所獲得之半硬化片上覆蓋經脫模處理之 PET 薄膜，並在空氣中進行了熱壓（在熱板溫度 180°C、壓力 20Mpa 下處理 5 分鐘）。然後，在常壓下，且在 180°C 下加熱處理 90 分鐘而獲得了樹脂片。剝離存在於樹脂片的兩面之 PET 薄膜，獲得了平均膜厚為 120 $\mu$ m 的導熱性片（導熱材料）。

#### 【0233】 <評價方法>

關於所獲得之導熱片，利用以下方法測量了導熱率。

（1）使用 NETZSCH 公司製造之“LFA467”，並使用雷射閃光法測量了導熱性片的厚度方向上的熱擴散率。

（2）使用 METTLER TOLEDO 公司製造之天秤“XS204”，並使用阿基米德法測量了導熱性片的比重（使用“固體比重測量套組”）。

（3）使用 Seiko Instruments Inc. 製造之“DSC320/6200”，在 10°C/分鐘的升溫條件下，求出了 25°C 下之導熱性片的比熱。

（4）所獲得之熱擴散率乘以比重及比熱，藉此計算出導熱性片的導熱率。

【0234】 將所測量之導熱率參照下述基準進行區分，並評價了導熱性。

A：15W/m·K 以上

B：13W/m · K 以上且小於 15W/m · K

C：小於 13W/m · K

**【0235】** 〔發熱峰溫度的測量〕

以與上述導熱率的評價中示出者相同的方式製作了半硬化片。

使用 Seiko Instruments Inc.製造之“DSC320/6200”，對所獲得之半硬化片在 10°C/分鐘的升溫條件下測量了反應情況，並利用說明書中記載之方法測量了發熱峰溫度。

將所測量之發熱峰溫度參照下述基準進行區分，並進行了評價。

另外，關於任意組成物，發熱峰溫度均在 220°C以下。

A：150°C以上

B：140°C以上且小於 150°C

C：130°C以上且小於 140°C

D：小於 130°C

**【0236】** 〔絕緣破壞電壓（耐電壓）的評價〕

使用耐電壓測試儀（KIKUSUI ELECTRONICS CORP.製造）測量了以  
上述導熱率的評價中示出者相同的方式製作之導熱性片的在 23°C且在相對  
濕度 65%下的絕緣破壞電壓（耐電壓）。

**【0237】** 將所測量之絕緣破壞電壓（耐電壓）換算為導熱性片的膜厚  
為 200μm 時之絕緣破壞電壓（耐電壓）。將所換算之絕緣破壞電壓（耐電壓）  
參照下述基準進行區分，並進行了評價。

A：10kV 以上

B：8kV 以上滿足 10kV

C：小於 8kV

**【0238】**〔剝離強度的評價〕

以與上述導熱率的評價中示出者相同的方式製備了半硬化片（附 PET 薄膜之半硬化片）。

從附 PET 薄膜之半硬化片剝離聚酯薄膜，並將所獲得之半硬化片切成 20mm×60mm 的條狀，並將其夾在作為黏附體之電解銅箔（20mm×100mm、厚度：35μm）與鋁板（30mm×60mm、厚度：1mm）之間。藉由在空氣下對所獲得之積層體進行熱壓處理（在熱板溫度為 180°C、壓力為 20MPa 下進行了 5 分鐘的處理之後，在熱板溫度 180°C、常壓下處理 90 分鐘），從而獲得了導熱片與黏附體成為一體之付銅箔之鋁基底。

使用數位數字測力計（ZTS-200N、IMADA Co.,Ltd.製造）和 90 度剝離試驗夾具（P90-200N-BB、IMADA Co.,Ltd.製），並按照 JIS C 6481 中記載之正常條件下的剝離強度的測量方法測量了所獲得之樣品的銅箔剝離強度。在剝離強度試驗中，對付銅箔之鋁基板以 90°的角度且以 50mm/分鐘的剝離速度實施了銅箔的剝離。

**【0239】** 參照下述基準進行區分，並對所測量之剝離強度(剝離強度)進行了評價。

A：5N/cm 以上

B：4N/cm 以上且小於 5N/cm

C：小於 4N/cm

**【0240】**〔操作性（經時保存性）的評價〕

以與上述導熱率的評價中示出者相同的方式製作半硬化片，然後在室

溫（25°C）下靜置了 1 天（24 小時）。

將靜置後的半硬化片切成 5cm×10cm 的條狀，製作了彎曲試驗用樣品。針對所獲得之樣品，使用圓柱型芯棒試驗機（Kotec Ltd.製），並按照 JIS K 5600-5-1 中記載之方法進行了彎曲試驗。使用直徑分別為 32mm、25mm 及 20mm 的圓柱型芯棒，從樣品斷裂或破損時之彎曲試驗中所使用之芯棒的直徑，依照下述評價基準對製作 1 天後的半硬化片的操作性進行了評價。

樣品斷裂時所使用之芯棒的直徑越短，半硬化片的經時保存性越優異。

另外，在用剛製作之半硬化片進行彎曲試驗之情況下，即使使用直徑 25mm 的芯棒，任意半硬化片亦並未破損。

**【0241】** 參照下述基準對斷裂時的芯棒的直徑進行區分，並對操作性（經時保存下）進行了評價。

A：20mm 時不存在破損

B：25mm 時未破損且 20mm 時破損

C：25mm 時破損

**【0242】** [結果]

以下，示出表 1。

另外，在 1 個格內同時記載有兩種以上的同種成分的比值的情況下，表示以所記載之比（質量比）使用該等的同種成分。例如，實施例 77 以 50/50（質量比）包含環氧化合物 B-3/B-9。

【0243】 [表 1]

表 1	組成物的製備						評價					
	酚化合物/環氧化合物			硬化促進劑 (質量%)	表面修飾劑 (質量%)	無機物		半硬化片		導熱片		
	酚化合物	環氧化合物	合計量 (質量%)			無機氮化物 (質量%)	無機氧化物 (質量%)	發熱峰溫度	操作性	導熱率 [W/mK]	耐電壓 [kV]	峰強度 [N/cm]
實施例 1	A-1	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	B	A	B
實施例 2	A-2	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	A	A	A
實施例 3	A-3	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	A	A	A
實施例 4	A-4	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	A	A	A
實施例 5	A-5	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	A	A	A
實施例 6	A-6	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	B	A	B
實施例 7	A-7	B-1	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	B	B	A	A	A
實施例 8	A-1	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 9	A-2	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 10	A-3	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 11	A-4	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 12	A-5	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 13	A-6	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 14	A-7	B-2	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 15	A-1	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	B
實施例 16	A-2	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 17	A-3	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 18	A-4	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 19	A-5	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 20	A-6	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	B
實施例 21	A-7	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 22	A-1	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 23	A-2	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 24	A-3	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 25	A-4	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 26	A-5	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 27	A-6	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 28	A-7	B-4	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A

【0244】 [表 2]

表 1 (繼續)	組成物的製備							評價				
	酚化合物/環氧化合物			硬化促進劑 (質量%)	表面修飾劑 (質量%)	無機物		半硬化片		導熱片		
	酚化合物	環氧化合物	合計量 (質量%)			無機氮化物 (質量%)	無機氧化物 (質量%)	發熱峰溫度	操作性	導熱率 [W/mK]	耐電壓 [kV]	峰強度 [N/cm]
實施例 29	A-1	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 30	A-2	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 31	A-3	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 32	A-4	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 33	A-5	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 34	A-6	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 35	A-7	B-5	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 36	A-1	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 37	A-2	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 38	A-3	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 39	A-4	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 40	A-5	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 41	A-6	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 42	A-7	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 43	A-8	B-6	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 44	A-1	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 45	A-2	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 46	A-3	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 47	A-4	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 48	A-5	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 49	A-6	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 50	A-7	B-7	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 51	A-1	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 52	A-2	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 53	A-3	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 54	A-4	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 55	A-5	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 56	A-6	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 57	A-7	B-8	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A

【0245】 [表 3]

表 1 (繼續)	組成物的製備						評價					
	酚化合物/環氧化合物			硬化促進劑 (質量%)	表面修飾劑 (質量%)	無機物		半硬化片		導熱片		
	酚化合物	環氧化合物	合計量 (質量%)			無機氮化物 (質量%)	無機氧化物 (質量%)	發熱峰 溫度	操作性	導熱率 [W/mK]	耐電壓 [kV]	峰強度 [N/cm]
實施例 58	A-1	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 59	A-2	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 60	A-3	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 61	A-4	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 62	A-5	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	A	A	A
實施例 63	A-6	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	B
實施例 64	A-7	B-9	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	B	B	A	A
實施例 65	A-1	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 66	A-2	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 67	A-3	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 68	A-4	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 69	A-5	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 70	A-6	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 71	A-7	B-10	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/M-04 (18/8)	A	A	B	A	A
實施例 72	A-2	B-3	24	C-1 (0.3)	-	HP-40 (75.7)	-	A	A	A	A	A
實施例 73	A-2	B-3	24	C-1 (0.3)	-	HP-40/SP-3 (67.7/8)	-	A	A	A	A	A
實施例 74	A-2	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	SGPS (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 75	A-2	B-3	21	C-2 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 76	A-2	B-3	21	C-3 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 77	A-2	B-3/B-9 =50/50	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	M-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 78	A-2	B-3/B-11 =50/50	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 79	A-2	B-1/B-11 =50/50	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	A	A	A	A	A
實施例 80	A-2	B-1/B-11 =50/50	24	C-1 (0.3)	-	HP-40 (75.7)	-	A	A	A	A	A
比較例 1	X-1	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	D	C	C	C	C
比較例 2	X-2	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	D	C	C	C	C
比較例 3	X-3	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	D	C	C	C	C
比較例 4	X-4	B-3	21	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	D	C	C	C	C

【0246】 [表 4]

表 1 (繼續)	組成物的製備							評價				
	酚化合物/環氧化合物			硬化促進劑 (質量%)	表面修飾 劑 (質量%)	無機物		半硬化片		導熱片		
	酚化合物	環氧化合物	合计量 (質量%)			無機氮化物 (質量%)	無機氧化物 (質量%)	發熱峰 溫度	操作性	導熱率 [W/mK]	耐電壓 [kV]	峰強度 [N/cm]
實施例 81	A-8	B-1	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 82	A-9	B-1	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	B	A	A	A	A
實施例 83	A-8	B-13	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 84	A-8	B-14	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 85	A-8	B-15	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 86	A-8	B-1/B-3 =50/50	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 87	A-8	B-3/B-13 =50/50	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 88	A-8	B-3/B-14 =50/50	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 89	A-8	B-3/B-15 =50/50	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 90	A-2/A-8 =50/50	B-1	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 91	A-2/A-8 =50/50	B-3	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 92	A-8	B-1	19.9	C-2 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 93	A-8	B-1	19.9	C-3 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 94	A-8	B-3	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 95	A-8	B-3	19.9	C-2 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 96	A-8	B-3	19.9	C-3 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 97	A-8	B-3	19.9	C-4 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 98	A-2/A-8 =30/70	B-1	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 99	A-2/A-8 =30/70	B-1	19.9	C-2 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 100	A-2/A-8 =30/70	B-1	19.9	C-3 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 101	A-2/A-8 =30/70	B-1	19.9	C-4 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 102	A-2	B-13	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 103	A-2	B-14	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 104	A-2	B-15	19.9	C-1 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 105	A-8	B-3	19.9	C-5 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 105	A-8	B-3	19.9	C-6 (0.1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 106	A-8	B-3	24.2	C-4 (0.1)	-	HP-40 (75.7)	-	A	A	A	A	A
實施例 107	A-8	B-3	15.6	C-4 (0.1)	-	HP-40 (84.3)	-	A	A	A	A	A
實施例 108	A-8	B-3	11.3	C-4 (0.1)	-	HP-40 (88.6)	-	A	A	A	A	A
實施例 109	A-8	B-3	19.95	C-4 (0.05)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	B	B	A
實施例 110	A-8	B-3	19.5	C-4 (0.5)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 111	A-8	B-3	19	C-4 (1)	-	HP-40 (80.0)	-	A	A	A	A	A
實施例 112	A-8	B-3	17	C-4 (3)	-	HP-40 (80.0)	-	B	B	B	B	B

【0247】 藉由表中示出之結果確認到若使用本發明的組成物，則能夠實現本發明的效果。

【0248】 又，作為酚化合物且作為滿足要件 1 之酚化合物而使用通式 (Y) 中的 my 為 1 之酚化合物，或者使用滿足要件 2 之酚化合物之情況下，確認到所獲得之導熱材料的導熱性及/或剝離強度更加優異（參閱作為環氧化合物而使用 B-2 之實施例的結果的比較等）。

【0249】 作為環氧化合物而使用顯示液晶性之環氧化合物或通式 (DN) 所表示之環氧化合物之情況下，確認到所獲得之導熱材料的導熱性及/或剝離強度更加優異（參閱作為環氧化合物而使用 B-4、B-6、B-7 或 B-8 之實施例的結果等）。

【0250】 作為具有撓性結構或者成形性優異之環氧化合物而使用雙酚 F 型環氧化合物、通式 (E1) 所表示之環氧化合物，或者具有二環氧丙基胺基之環氧化合物之情況下，確認到由組成物形成之半硬化片的保存穩定性更加優異（參閱作為環氧化合物而使用 B-3、B-10、B-13、B-14 或 B-15 之實施例的結果等）。

【0251】 環氧化合物具有芳香環基之情況下，確認到導熱材料的導熱性更加優異（當對作為酚化合物而使用 A-3 之實施例彼此進行比較時，使用具有芳香環基之環氧化合物之情況下，導熱性的評價均為 A）。

【0252】 又，使用雙酚 F 型環氧化合物及苯氧基樹脂之情況下、使用雙酚 F 型環氧化合物及苯酚酚醛清漆型環氧化合物之情況下、使用聚羧基苯型環氧化合物及苯酚酚醛清漆型環氧化合物之情況下，確認到能夠平衡性良好地實現本發明的效果（參閱實施例 77~80 的結果等）。

**【0253】** 作為酚化合物而使用通式(Z2)所表示之化合物之情況下，確認到由組成物形成之半硬化片的保存穩定性更加優異，並且導熱性等成績亦變得更加良好（參閱作為酚化合物而使用 A-8 或 A-9 之實施例的結果等）。

認為這是由於滿足要件 2 之酚化合物藉由具有“具有酚性羥基及配置於酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基”及除此以外的“具有酚性羥基之芳香環基”這兩者，從而化合物的對稱性被破壞而熔點降低，其結果，維持硬化時之良好的導熱性等的同時導入了半硬化時之柔軟性。

**【0254】** 硬化促進劑的含量相對於組成物的總固體成分為 0.07 質量%以上之情況下，確認到所獲得之導熱材料的導熱性及/或耐電壓更加優異（參閱實施例 97 與 103 的結果的比較等）。認為這是由於藉由硬化促進劑的含量充分存在，從而硬化反應的反應速度變得良好。

硬化促進劑的含量相對於組成物的總固體成分為2質量%以下之情況下，確認到本發明的效果更加優異（參閱實施例111與112的結果的比較等）。認為這是由於藉由硬化促進劑的含量為一定量以下，從而能夠避免硬化促進劑本身作為雜質而成為阻礙導熱材料的各種性能之主要原因。

## 【發明申請專利範圍】

### 【請求項 1】

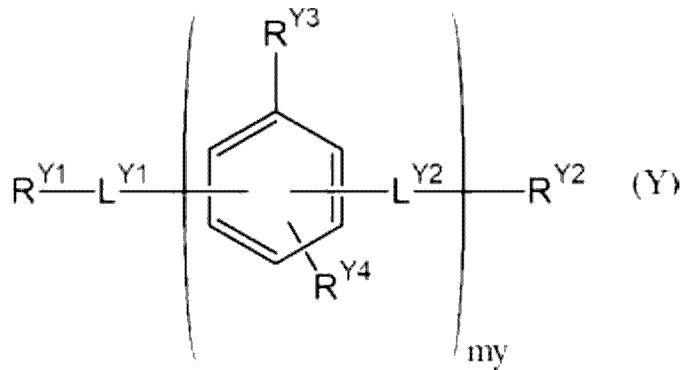
一種硬化性組成物，其包含酚化合物、環氧化合物、硬化促進劑及無機物，其中

前述酚化合物滿足要件 1 及要件 2 中的至少一者，

前述無機物的含量相對於總固體成分超過 10 質量%，

要件 1：前述酚化合物係通式 (Y) 所表示之化合物，

要件 2：前述酚化合物係具有三吡啶骨架並且具有芳香環基之酚化合物，  
前述芳香環基具有酚性羥基及配置於前述酚性羥基的鄰位之取代基，



通式 (Y) 中，my 表示 0 以上的整數，

R<sup>Y1</sup> 及 R<sup>Y2</sup> 分別獨立地表示具有酚性羥基及配置於前述酚性羥基的鄰位之碳數 1~6 的取代基之芳香環基，

L<sup>Y1</sup> 及 L<sup>Y2</sup> 分別獨立地表示 -C(R<sup>Y5</sup>)(R<sup>Y6</sup>)- 或 -CO-，

R<sup>Y3</sup>~R<sup>Y6</sup> 分別獨立地表示氫原子或取代基。

### 【請求項 2】

如請求項 1 所述之硬化性組成物，其中

用差示掃描測熱計測量使用前述硬化性組成物而形成之半硬化片之情

況下，檢測出發熱峰之溫度為 140°C 以上。

**【請求項 3】**

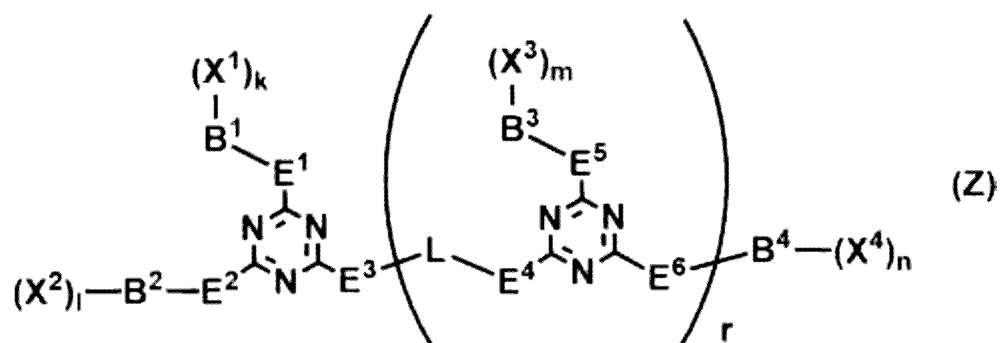
如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述環氧化合物的分子量為 300 以上。

**【請求項 4】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述無機物包含平均粒徑為 20 $\mu\text{m}$  以上的凝聚狀氮化硼。

**【請求項 5】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述酚化合物包含通式 (Z) 所表示之化合物，



通式 (Z) 中， $r$  表示 0 以上的整數，

$k$ 、 $l$ 、 $m$  及  $n$  分別獨立地表示 0 以上的整數，

其中， $k$ 、 $l$ 、 $r \times m$  及  $n$  的合計為 2 以上，

$L$  表示 2 價的有機基團，

$E^1 \sim E^6$  分別獨立地表示單鍵、 $-\text{NH}-$  或  $-\text{NR}-$ ， $R$  表示取代基，

$B^1$  表示單鍵或  $k+1$  價的有機基團，

$B^2$  表示單鍵或  $l+1$  價的有機基團，

$B^3$  表示單鍵或  $m+1$  價的有機基團，

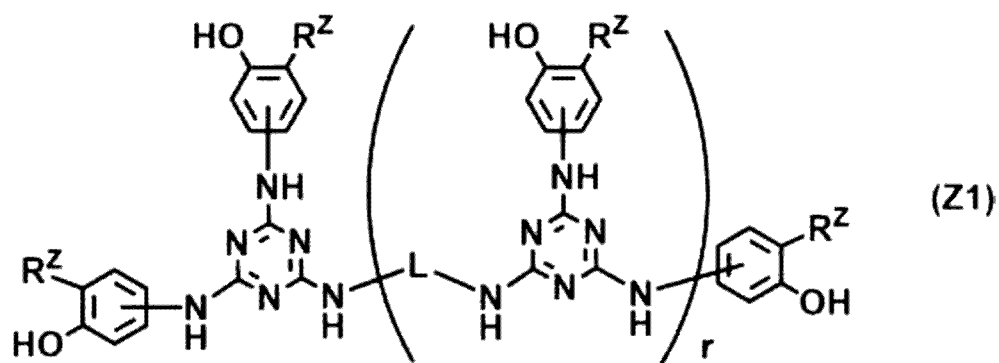
$B^4$  表示單鍵或  $n+1$  價的有機基團，

$X^1 \sim X^4$  分別獨立地表示具有酚性羥基之芳香環基，

其中，存在  $k$  個之  $X^1$ 、存在 1 個之  $X^2$ 、存在  $r \times m$  個之  $X^3$  及存在  $n$  個之  $X^4$  中的至少 1 個表示具有酚性羥基及配置於前述酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基。

**【請求項 6】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述酚化合物包含通式 (Z1) 所表示之化合物，



通式 (Z1) 中， $r$  表示 0 以上的整數，

$L$  表示 2 價的有機基團，

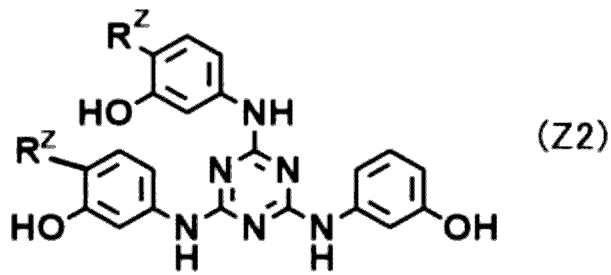
$R^Z$  表示氫原子或取代基，

其中，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示取代基，

又，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示氫原子。

**【請求項 7】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述酚化合物包含通式 (Z2) 所表示之化合物，



通式 (Z2) 中， $R^Z$  表示氫原子或取代基，

其中，通式 (Z2) 中存在 2 個之  $R^Z$  中的至少一者表示取代基。

**【請求項 8】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述硬化促進劑包含含有磷原子之化合物。

**【請求項 9】**

如請求項 1 或請求項 2 所述之硬化性組成物，其中  
前述硬化促進劑包含磷鹽。

**【請求項 10】**

一種導熱材料，其藉由硬化如請求項 1 至請求項 9 之任一項所述之硬化性組成物而獲得。

**【請求項 11】**

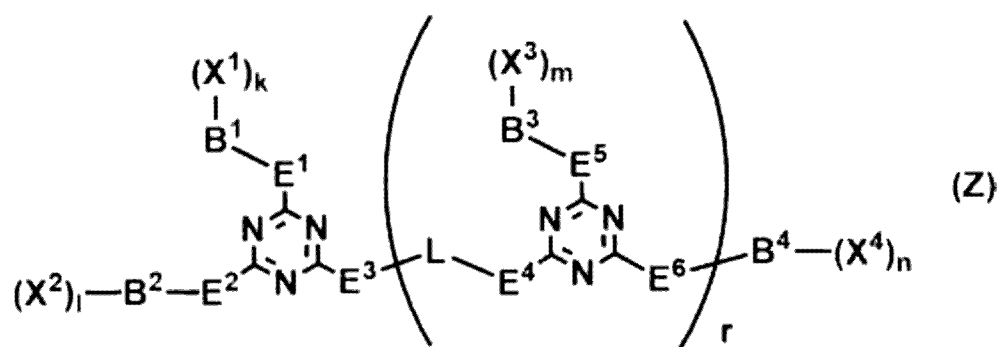
一種導熱片，其由如請求項 10 所述之導熱材料構成。

**【請求項 12】**

一種附導熱層的器件，其具有器件及配置於前述器件上之包含如請求項 11 所述之導熱片之導熱層。

**【請求項 13】**

一種化合物，其由通式 (Z) 表示，



通式 (Z) 中， $r$  表示 0 以上的整數，

$k$ 、 $l$ 、 $m$  及  $n$  分別獨立地表示 0 以上的整數，

其中， $k$ 、 $l$ 、 $r \times m$  及  $n$  的合計為 2 以上，

$L$  表示 2 價的有機基團，

$E^1 \sim E^6$  分別獨立地表示單鍵、 $-NH-$  或  $-NR-$ ， $R$  表示取代基，

$B^1$  表示單鍵或  $k+1$  價的有機基團，

$B^2$  表示單鍵或  $l+1$  價的有機基團，

$B^3$  表示單鍵或  $m+1$  價的有機基團，

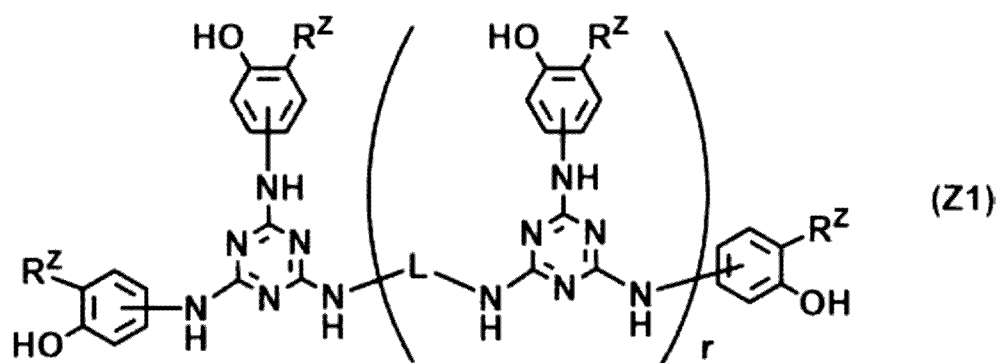
$B^4$  表示單鍵或  $n+1$  價的有機基團，

$X^1 \sim X^4$  分別獨立地表示具有酚性羥基之芳香環基，

其中，存在  $k$  個之  $X^1$ 、存在 1 個之  $X^2$ 、存在  $r \times m$  個之  $X^3$  及存在  $n$  個之  $X^4$  中的至少 1 個表示具有酚性羥基及配置於前述酚性羥基的鄰位之取代基之芳香環基。

#### 【請求項 14】

如請求項 13 所述之化合物，其由通式 (Z1) 表示，



通式 (Z1) 中， $r$  表示 0 以上的整數，

$L$  表示 2 價的有機基團，

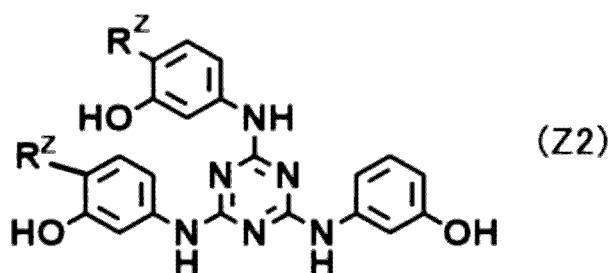
$R^Z$  表示氫原子或取代基，

其中，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示取代基，

又，通式 (Z1) 中存在  $(3+r)$  個之  $R^Z$  中的至少 1 個表示氫原子。

**【請求項 15】**

如請求項 13 或請求項 14 所述之化合物，其由通式 (Z2) 表示，



通式 (Z2) 中， $R^Z$  表示氫原子或取代基，

其中，通式 (Z2) 中存在 2 個之  $R^Z$  中的至少一者表示取代基。