(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年8月8日(08.08.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/162423 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 63/00 (2006.01) *C08K 5/17* (2006.01)
C08G 59/50 (2006.01) *C08K 5/103* (2006.01)
C08G 73/02 (2006.01) *C09K 5/14* (2006.01)
C08K 3/013 (2018.01) *H01M 10/653* (2014.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/003193

(22) 国際出願日： 2024年1月31日(31.01.2024)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2023-013584 2023年1月31日(31.01.2023) JP
特願 2023-013583 2023年1月31日(31.01.2023) JP
特願 2023-035923 2023年3月8日(08.03.2023) JP
特願 2023-059573 2023年3月31日(31.03.2023) JP
特願 2023-059531 2023年3月31日(31.03.2023) JP

(71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (**SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満２丁目４番４号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 古川 淳士 (**FURUKAWA, Atsushi**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 岩本 達矢 (**IWAMOTO, Tatsuya**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 小林 祐輔 (**KOBAYASHI, Yuusuke**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 吉岡 哲朗 (**YOSHIOKA, Tetsurou**); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 田口 昌浩, 外 (**TAGUCHI, Masahiro** et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル８階 ダイヤ特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) **Title:** CURABLE COMPOSITION AND THERMALLY CONDUCTIVE MEMBER

(54) 発明の名称： 硬化性組成物、及び熱伝導性部材

(57) **Abstract:** A curable composition containing: an epoxy resin; a thermally conductive filler; an amine compound (X) containing two or more amino groups; and a polyfunctional acrylate compound, wherein the amine compound (X) has a viscosity of 20 Pa·s or less at 10 rpm and 25°C as measured using an E-type viscometer, or has an oxyalkylene structure, and the amine compound (X) content is 15-55 mass% with respect to all of the resin components.

(57) 要約：エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含み、前記アミン化合物（Ｘ）が、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍの粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有し、前記アミン化合物（Ｘ）の含有量が、全樹脂成分に対して１５質量％以上５５質量％以下である、硬化性組成物。

WO 2024/162423 A1

明　細　書

発明の名称 ： 硬化性組成物、及び熱伝導性部材

技術分野

[0001]　本発明は、バッテリアセンブリなどの電子機器用途で使用される、硬化性組成物、及び熱伝導性部材に関する。

背景技術

[0002]　熱伝導性組成物は、例えば、発熱体と放熱体の間に充填して、発熱体で発生した熱を伝播させて放熱体から発散させるために使用される。熱伝導性組成物は、一般的に硬化性を有する硬化性組成物からなり、充填された後に硬化され硬化物で使用されることが多い。硬化性組成物は、電気自動車（ＥＶ）向けのリチウムイオンバッテリ（ＬｉＢ)アセンブリなどのバッテリアセンブリ、電力電子機器、電子パッケージング、ＬＥＤ、太陽電池、電気グリッドなどの多くの電子機器用途において重要な役割を果たす。

[0003]　例えば、特許文献１には、エポキシ樹脂と、主鎖に三級アミドを含み、かつアミン末端化されているポリアミドを含むポリアミド組成物と、２～２０個の炭素原子を含むアミノ官能性化合物と、多官能性（メタ）アクリレートと、無機充填剤を含み、バッテリーアセンブリなどの電子機器用途で好適に使用され得る硬化性組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０２１－５１２９９０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005]　ところで今後ＥＶの生産台数がますます増加していく中でその生産性を向上させることが求められている。例えば、硬化性組成物は、バッテリーのアッセンブルに必要な時間を短くする観点から適度に低い圧縮荷重であることが求められ、かつ圧縮荷重が低い状態で長期間維持され、可使時間を長くす

ることが求められている。また、硬化性組成物をディスペンサーなどを用いて吐出する際には、作業性の観点から粘度を低くすることも求められている。さらには、アッセンブルされた後に室温での速硬化性が求められており、具体的には、仮接着できる程度の接着力を有するように、短時間で硬化する速硬化性が求められている。

[0006] 特許文献１に開示される硬化性組成物は、約１０分以下で室温硬化させた後に十分なグリーン強度を有することが開示され、十分な速硬化性を有すると考えられる。しかし、特許文献１の硬化性組成物では、ポリアミド量が多い一方で、アミン化合物の量が少ないので、ポリアミドの相互作用により硬化前の粘度が高くなり、さらに、可使時間を長くすることも難しい。

[0007] そこで本発明は、低粘度で速硬化性を有しつつ、可使時間を長くできる硬化性組成物を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、鋭意検討の結果、エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含む、硬化性組成物において、特定のアミン化合物（Ｘ）を特定量で使用し、或いは、硬化性組成物に特定量の水を加えることで、上記課題を解決できることを見出し、以下の本発明を完成させた。すなわち、本発明は、以下の［１］～［１８］を提供する。

［１］エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含み、

前記アミン化合物（Ｘ）が、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍの粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有し、

前記アミン化合物（Ｘ）の含有量が、全樹脂成分に対して１５質量％以上５５質量％以下である、硬化性組成物。

［２］前記多官能アクリレート化合物の含有量が、全樹脂成分に対して２０質量％以下である、上記［１］に記載の硬化性組成物。

［３］前記多官能アクリレート化合物の官能基数が３以上である、上記［１］又は［２］に記載に硬化性組成物。

［４］前記多官能アクリレート化合物の官能基数が６以上である、上記［１］～［３］のいずれかに記載に硬化性組成物。

［５］レオメータで測定した２５℃における粘度が３００Ｐａ・ｓ以下である上記［１］～［４］のいずれかにに記載の硬化性組成物。

［６］前記エポキシ樹脂が単官能エポキシ樹脂を含む、上記［１］～［５］のいずれかにに記載の硬化性組成物。

［７］前記アミン化合物（Ｘ）が、オキシプロピレン構造を有する、上記［１］～［６］のいずれかにに記載の硬化性組成物。

［８］硬化性組成物全量に対して０．３質量％以上２質量％以下の水を含む、上記［１］～［７］のいずれかに記載の硬化性組成物。

［９］　前記アミン化合物（Ｘ）が、３つ以上のアミノ基を有するアミン化合物を含む上記［１］～［８］のいずれかに記載の硬化性組成物。

［１０］前記エポキシ樹脂及び前記多官能アクリレート化合物を含み、第１の容器に充填される第１剤と、前記アミン化合物（Ｘ）を含み、第２の容器に充填される第２剤により構成される、上記［１］～［９］のいずれかに記載の硬化性組成物。

［１１］レオメータで測定した２５℃における前記第１剤の粘度（Ｐａ・ｓ）と、前記第２剤の粘度（Ｐａ・ｓ）との差が１５０Ｐａ・ｓ以下である上記［１０］に記載の硬化性組成物。

［１２］前記第１剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）に対する、前記第２剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）の比が１．３以上２．６以下である上記［１０］又は［１１］に記載の硬化性組成物。

［１３］エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物と、水とを含み、

前記水の含有量が、硬化性組成物全量に対して０．３質量％以上２．０質量％以下である、硬化性組成物。

［１４］上記［１０］～［１２］のいずれかに記載の硬化性組成物が充填される容器セットであって、前記第１剤が充填される第１の容器と、前記第２剤が充填される第２の容器を含む、容器セット。

［１５］エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含み、

前記アミン化合物（Ｘ）が、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍの粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有し、

前記アミン化合物（Ｘ）の含有量が、全樹脂成分に対して１５質量％以上７０質量％以下であり、

前記アミン化合物（Ｘ）が２つのアミノ基を有するアミン化合物を含む、硬化性組成物。

［１６］上記［１］～［１３］及び［１５］のいずれかに記載の硬化性組成物の硬化物からなる、熱伝導性部材。

［１７］上記［１６］に記載の熱伝導性部材を備える、バッテリアセンブリ。

[１８]上記［１］～［１３］及び［１５］のいずれかに記載の硬化性組成物のバッテリセル間の間隙材、バッテリセルとモジュール筐体の間の間隙材、バッテリモジュールとバッテリパックの筐体の間の間隙材、及びバッテリセルとバッテリパックの筐体の間の間隙材、の少なくとも１つの間隙材としての使用。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、低粘度で速硬化性を有しつつ、可使時間を長くできる硬化性組成物を提供する。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]一実施形態に係る容器セットを示す模式図である。

[図2]一実施形態に係る容器セットを示す模式図である。

[図3]本発明に係るバッテリモジュールの代表的構成を示す斜視図である。

[図4]バッテリモジュールが有するバッテリセルの代表的構成を示す斜視図である。

[図5]セルトゥパック構造を有するバッテリアセンブリを示す斜視図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明の各実施形態に係る硬化性組成物について詳しく説明する。

＜＜第１の実施形態＞＞

本発明の第１の実施形態に係る硬化性組成物は、エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含む。

[0012] ［エポキシ樹脂］

本実施形態に係る硬化性組成物は、エポキシ樹脂を含む。硬化性組成物は、エポキシ樹脂を含有することで、硬化性組成物の接着力を適度な範囲に調整しやすくなる。エポキシ樹脂は、エポキシ基を１つ以上有する化合物であればよい。エポキシ樹脂は、エポキシ基を２つ以上有する多官能エポキシ樹脂であってもよいし、エポキシ基を１つ有する単官能エポキシ樹脂であってもよい。

[0013] 本実施形態に係る硬化性組成物は、少なくとも多官能エポキシ樹脂を含有することが好ましい。硬化性組成物は、多官能エポキシ樹脂を含有することで、架橋が適切に形成でき、接着強度を高くしやすくなる。

硬化性組成物は、多官能エポキシ樹脂に加えて、単官能エポキシ樹脂をさらに含有することがより好ましい。硬化性組成物は、単官能エポキシ樹脂をさらに含有することで、硬化後の架橋密度が高くなりすぎることを防止して、伸びを高くしやすくなる。また、単官能エポキシ樹脂を使用することで、硬化性組成物の硬化前の粘度を低くしやすくなる。

[0014] 多官能エポキシ樹脂と単官能エポキシ樹脂を併用する場合、多官能エポキシ樹脂に対する、単官能エポキシ樹脂の質量比（単官能／多官能）は、１０／９０以上９０／１０以下が好ましく、１５／８５以上７５／２５以下がより好ましく、２０／８０以上７０／３０以下がさらに好ましく、２５／７５

以上５５／４５以下がさらに好ましい。

[0015] 多官能エポキシ樹脂としては、２官能又は３官能のものが挙げられ、好ましくは２官能エポキシ樹脂が使用される。多官能エポキシ樹脂の具体例としては、これらに限定されるものではないが、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、レゾルシノール型エポキシ樹脂、ビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂、ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂、フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂、ビフェニル骨格を有するエポキシ樹脂、バイ（グリシジルオキシフェニル）メタン骨格を有するエポキシ樹脂、キサンテン骨格を有するエポキシ樹脂、アントラセン骨格を有するエポキシ樹脂、ピレン骨格を有するエポキシ樹脂等の芳香族環を有するエポキシ樹脂が挙げられる。

また、ジシクロペンタジエン骨格を有するエポキシ樹脂、アダマンタン骨格を有するエポキシ樹脂等の脂環式骨格を有するエポキシ樹脂も挙げられる。

さらには、ブタンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテルなどの脂肪族エポキシ樹脂も挙げられる。

また、上記例示した各エポキシ樹脂の水素添加物又は変性物もエポキシ樹脂として使用できる。

[0016] 上記したビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールＡ型、ビスフェノールＦ型又はビスフェノールＳ型のビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂が挙げられる。

上記したレゾルシノール型エポキシ樹脂としては、例えば、レゾルシノールジグリシジルエーテルが挙げられる。

上記ナフタレン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１，２－ジグリシジルナフタレン、１，５－ジグリシジルナフタレン、１，６－ジグリシジルナフタレン、１，７－ジグリシジルナフタレン、２，７－ジグリシジルナフタレン、トリグリシジルナフタレン、及び１，２，５，６－テトラグリシジル

ナフタレン等が挙げられる。

上記フルオレン骨格を有するエポキシ樹脂としては、９，９－ビス（４－グリシジルオキシフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３－メチルフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３－クロロフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３－ブロモフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３－フルオロフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３－メトキシフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３，５－ジメチルフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３，５－ジクロロフェニル）フルオレン、及び９，９－ビス（４－グリシジルオキシ－３，５－ジブロモフェニル）フルオレン等が挙げられる。

[0017] 上記ビフェニル骨格を有するエポキシ樹脂としては、４，４’－ジグリシジルビフェニル、及び４，４’－ジグリシジル－３，３’，５，５’－テトラメチルビフェニル等が挙げられる。上記バイ（グリシジルオキシフェニル）メタン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１，１’－バイ（２，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，８’－バイ（２，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，１’－バイ（３，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，８’－バイ（３，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，１’－バイ（３，５－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，８’－バイ（３，５－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，２’－バイ（２，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、１，２’－バイ（３，７－グリシジルオキシナフチル）メタン、及び１，２’－バイ（３，５－グリシジルオキシナフチル）メタン等が挙げられる。

[0018] 上記キサンテン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１，３，４，５，６，８－ヘキサメチル－２，７－ビス－グリシジルメトキシ－９－フェニル－９Ｈ－キサンテン等が挙げられる。上記アントラセン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１分子中に、１つ以上のアントラセン骨格と、２つ以上のエ

ポキシ基またはグリシジル基とを有するものが挙げられる。

[0019] 上記ピレン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１分子中に、１つ以上のピレン骨格と、２つ以上のエポキシ基またはグリシジル基とを有するものが挙げられる。

上記ジシクロペンタジエン骨格を有するエポキシ樹脂しては、ジシクロペンタジエンジオキシド、及びジシクロペンタジエン骨格を有するフェノールノボラックエポキシ樹脂が挙げられる。上記アダマンタン骨格を有するエポキシ樹脂としては、１，３－ビス（４－グリシジルオキシフェニル）アダマンタン、及び２，２－ビス（４－グリシジルオキシフェニル）アダマンタン等が挙げられる。

[0020] 多官能エポキシ樹脂としては、上記の中でも、接着強度及び機械強度向上の観点から、芳香族環を有するエポキシ樹脂が好ましく、中でも、フェニル基を有するエポキシ樹脂がより好ましく、中でもビスフェノール骨格を有するエポキシ樹脂であるビスフェノール型エポキシ樹脂であることがさらに好ましい。

多官能エポキシ樹脂は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0021] 単官能エポキシ樹脂としては、フェニルグリシジルエーテル、４－ｔ－ブチルフェニルグリシジルエーテル、クレジルグリシジルエーテル、ノニルフェニルグリシジルエーテルで代表されるアルキルフェニルグリシジルエーテルなどのフェニル系グリシジルエーテル、１－グリシジルナフタレン、２－グリシジルナフタレンなどの芳香族環を有する単官能エポキシ樹脂挙げられる。芳香族環を有する単官能エポキシ樹脂は、フェニル基を有するエポキシ樹脂がより好ましい。

[0022] また、単官能エポキシ樹脂としては、原料の安全性が高い観点からは、脂肪族の単官能エポキシ樹脂も好ましく、具体的には、脂肪族アルコールのグリシジルエーテル等が挙げられる。ここで、脂肪族アルコールとしては、分岐構造を有するものでもよいし、直鎖状のものでもよいが、伸びを良好にす

る観点からは直鎖状であることが好ましい。また、脂肪族アルコールとしては、例えば炭素数４～２４程度であればよいが、伸びを良好にする観点から、好ましくは炭素数１０～２０である。また、脂肪族アルコールは、伸びを良好にする観点から、飽和脂肪族アルコールが好ましい。具体的な脂肪族アルコールのグリシジルエーテルとしては、ブチルグリシジルエーテル、デシルグリシジルエーテル、ラウリルグリシジルエーテル、ミリスチルグリシジルエーテル、セチルグリシジルエーテル、ステアリルグリシジルエーテル等が挙げられる。単官能エポキシ樹脂は、上記以外でもよく、例えば、１，２－エポキシブタン、酸化プロピレンなどのエーテル基を有しない、グリシジル基を有する単官能エポキシ樹脂なども挙げられる。

単官能エポキシ樹脂としては、伸びを良好にする観点から、脂肪族の単官能エポキシ樹脂を使用することが好ましく、中でも脂肪族アルコールのグリシジルエーテルを使用することが好ましい。

単官能エポキシ樹脂は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0023] エポキシ樹脂は、芳香族環、特にフェニル基を有するエポキシ樹脂を含むことが好ましい。フェニル基などの芳香族環を有するエポキシ樹脂は、単官能エポキシ樹脂であってもよいし、多官能エポキシ樹脂であってもよい。芳香族環、特にフェニル基は、硬化後にπ－π相互作用によるスタッキング構造を取り、エポキシ樹脂が硬化物において疑似架橋構造を形成しやすくなる。そのため、機械強度が高くなりやすく、接着力も高くしやすくなる。エポキシ樹脂は、多官能エポキシ樹脂を含み、かつ多官能エポキシ樹脂が、芳香族環、特にフェニル基を有することが好ましい。

[0024] エポキシ樹脂は、例えば分子量が２０００以下のものを使用するとよく、好ましくは１０００以下、より好ましくは５００以下である。エポキシ樹脂は、分子量を一定値以下のものを使用することで、硬化性組成物の粘度を低くでき、また、熱伝導性充填材を高充填にすることも可能になる。エポキシ樹脂の分子量は、例えば１００以上、好ましくは１５０以上、より好ましく

は２００以上、さらに好ましくは２５０以上である。エポキシ樹脂の分子量は、一定値以上とすることで、架橋密度が必要以上に高くなることを防止でき、伸びを良好にしやすくなる。なお、エポキシ樹脂は、常温（２５℃）で液体であるとよい。

[0025] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、好ましくは１０００ｇ／ｅｑ以下、より好ましくは５００ｇ／ｅｑ以下、さらに好ましくは３７５ｇ／ｅｑ以下であり、また、好ましくは１００ｇ／ｅｑ以上、より好ましくは１２５ｇ／ｅｑ以上、さらに好ましくは１４０ｇ／ｅｑ以上である。

[0026] エポキシ樹脂は、常温（２５℃）で液体であるとよい。また、エポキシ樹脂の２５℃の粘度は、低粘度化の観点から、低ければ低いほうがよく、例えば５０Ｐａ・ｓ以下であればよく、好ましくは１０Ｐａ・ｓ以下である。また、エポキシ樹脂の２５℃の粘度は、特に限定されないが、例えば、０．５ｍＰａ・ｓ以上であってもよいし、１ｍＰａ・ｓ以上であってもよい。

また、多官能エポキシ樹脂の２５℃の粘度は、例えば５０Ｐａ・ｓ以下であればよく、好ましくは１０Ｐａ・ｓ以下であり、また、１ｍＰａ・ｓ以上であればよいが、実用的には１０ｍＰａ・ｓ以上であることが好ましく、１００ｍＰａ・ｓ以上であることがより好ましい。

[0027] 一方で、単官能エポキシ樹脂の２５℃の粘度は、例えば１０Ｐａ・ｓ以下であればよく、好ましくは１Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは１００ｍＰａ・ｓ以下であり、また、例えば、０．５ｍＰａ・ｓ以上であってもよいし、１ｍＰａ・ｓ以上であってもよいし、３ｍＰａ・ｓ以上であってもよい。なお、エポキシ樹脂が多官能エポキシ樹脂と単官能エポキシ樹脂の両方を含有する場合、単官能エポキシ樹脂の粘度は、多官能エポキシ樹脂の粘度より低くなることが好ましい。

なお、エポキシ樹脂及び後述するアミン化合物の粘度は、Ｅ型粘度計を使用して１０ｒｐｍ、２５℃の条件で測定した粘度である。

[0028] 硬化性組成物におけるエポキシ樹脂の含有量は、全樹脂成分に対して例えば１５質量％以上８０質量％以下である。エポキシ樹脂の含有量が１５質量

％以上であると、全硬化時の接着強度や伸びを高めやすくなる。また８０質量％以下であると、未硬化のエポキシ樹脂の成分が存在しにくくなり、未硬化成分により接着が阻害されたり、伸びが低くなったりすることを防止できる。

エポキシ樹脂の含有量は、好ましくは２０質量％以上７０質量％以下、より好ましくは２５質量％以上６０質量％以下、さらに好ましくは３０質量％以上５３質量％以下である。

なお、本明細書において、全樹脂成分とは、後述する硬化剤及び硬化剤により硬化し得る主剤の総量を言い、より具体的には、後述するアミン化合物（Ｘ）、アミン化合物（Ｘ）以外の硬化剤、エポキシ樹脂、多官能アクリレート化合物、並びに、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物以外の硬化剤により硬化し得る主剤の合計量である。

[0029] ［アミン化合物（Ｘ）］

アミン化合物（Ｘ）は、２つ以上のアミノ基を含む化合物である。また、本実施形態において、アミン化合物（Ｘ）は、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍにおける粘度が、２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有するものである。本実施形態では、以上の特定のアミン化合物（以下、アミン化合物（Ｘ１）ということがある）を使用することで、初期の硬化が直ちに進行して速硬化性を有しながらも、硬化初期における圧縮荷重が適度に低く、かつ圧縮荷重を低い状態で比較的長く維持でき、可使時間を長くすることもできる。その原理は定かではないが、以下のように推定される。すなわち、硬化初期ではアミン化合物（Ｘ）と多官能アクリレート化合物が優先的に硬化され、速硬化性が発現される一方で、アミン化合物（Ｘ）とエポキシ樹脂の反応が抑制されるので、硬化初期における圧縮荷重は低いままに維持される。特に、本実施形態では、粘度が、２０Ｐａ・ｓ以下のアミン化合物（Ｘ）を使用することで、組成物の初期粘度も下がり、それに伴い、硬化初期における圧縮荷重も低くなるので、比較的長い期間にわたって、圧縮荷重が低い状態で維持され、可使時間も長くなると推定さ

れる。また、オキシアルキレン構造を有するアミン化合物（Ｘ）を使用することで、その化学構造からアミン化合物（Ｘ）の反応後において圧縮荷重が適度に低くなり、それにより、可使時間が長くなると推定される。なお、オキシアルキレン構造は、上記化学構造に由来する圧縮荷重低減の効果があるため、粘度が２０Ｐａ・ｓを超えるものであっても、可使用時間が長くなるものと考えられる。

[0030] アミン化合物（Ｘ）は、アミノ基の数を２個以上とすることで、エポキシ樹脂と適切に反応して硬化することができる。アミノ基の数は、特に限定されないが、例えば１０以下、好ましくは６以下、より好ましくは４以下である。以上の通りにアミノ基の数を一定以下とすることで、硬化反応が進行しすぎることを防止して、可使時間を長くしやすくなる。また、速硬化性の観点からは、アミノ基の数は、３以上であることが好ましい。

[0031] アミン化合物（Ｘ）が有するアミノ基は、１級アミノ基であってもよいし、２級アミノ基であってもよいが、反応性、硬化速度の観点から、アミン化合物（Ｘ）は、１級アミノ基を有することが好ましい。アミン化合物（Ｘ）は、一分子中に１級アミノ基を１つ以上有することが好ましく、２つ以上有することがより好ましく、３つ以上有することがさらに好ましい。アミン化合物（Ｘ）が１級アミノ基を多く有することで、速硬化性を実現できる。アミン化合物（Ｘ）における一分子中の１級アミノ基の数は、例えば６個以下、好ましくは５個以下、より好ましくは４個以下である。

[0032] 上記の通り、アミン化合物（Ｘ）は、一実施態様において、粘度が２０Ｐａ・ｓ以下である。粘度が２０Ｐａ・ｓより大きくなると、硬化前の粘度が高くなりやすくなり、可使時間を長くすることも難しくなる。アミン化合物（Ｘ）の粘度は、硬化前の粘度を低くし、かつ可使時間を長くしやすい観点から、好ましくは１５Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは１２Ｐａ・ｓ以下、さらに好ましくは５Ｐａ・ｓ以下、よりさらに好ましくは２Ｐａ・ｓ以下である。

また、アミン化合物（Ｘ）の粘度は、特に限定されないが、例えば、０．

０１Ｐａ・ｓ以上、好ましくは０．０５Ｐａ・ｓ以上、より好ましくは０．１Ｐａ・ｓ以上、さらに好ましくは０．５Ｐａ・ｓ以上である。

[0033] アミン化合物（Ｘ）としては、一実施態様において、オキシアルキレン構造を有するものを使用する。オキシアルキレン構造を有するもの使用すると、その分子構造により、硬化初期における圧縮荷重が適度に低く、圧縮荷重が低い状態で比較的長く維持しやすなり、可使時間を長くしやすくなる。

オキシアルキレン構造を有するアミン化合物（Ｘ）は、粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であってもよく、その際の好適な粘度の値は上記の通りである。アミン化合物（Ｘ）は、粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であり、かつオキシアルキレン構造を有することで、比較的長い期間にわたって圧縮荷重が低い状態で維持され、可使時間をより長くしやすくなる。

ただし、本発明では、粘度が２０Ｐａ・ｓよりも大きいアミン化合物も、オキシアルキレン構造を有するアミン化合物（Ｘ）として使用可能である。

[0034] オキシアルキレン構造は、炭素数２～５程度のオキシアルキレンを有する構造を有することが好ましく、より好ましくはオキシプロピレン構造を有することが好ましい。オキシアルキレン構造としては、オキシアルキレン構造が２以上連続したポリオキシアルキレン構造が挙げられ、具体的には、ポリオキシエチレン構造、ポリオキシプロピレン構造、ポリオキシブチレン構造、ポリオキシテトラメチレン構造、オキシエチレン－オキシプロピレン共重合体構造、及びオキシプロピレン－オキシブチレン共重合体構造などが挙げられる。これらの中では、アミン化合物（Ｘ）は、ポリオキシプロピレン構造、オキシエチレン－オキシプロピレン共重合体構造、及びオキシプロピレン－オキシブチレン共重合体構造を有することが好ましく、中でもポリオキシプロピレン構造を有することが好ましい。

[0035] オキシアルキレン構造を有するアミン化合物（Ｘ）としては、通常脂肪族アミンが挙げられ、具体的にはポリオキシエチレンジアミン、ポリ（オキシエチレン／オキシプロピレン）ジアミン、ポリ（オキシプロピレン）ジアミン、ポリ（オキシブチレン／オキシプロピレン）ジアミン、ポリエチレング

リコールビス（プロピルアミン）、トリメチロールプロパンポリ（オキシプロピレン）トリアミン、グリセリルポリ（オキシプロピレン）トリアミンなどのポリオキシアルキレンポリアミン類が挙げられる。これらの中では、ポリ（オキシプロピレン）ジアミン、グリセリルポリ（オキシプロピレン）トリアミン、トリメチロールプロパンポリ（オキシプロピレン）トリアミンが好ましく、中でもトリメチロールプロパンポリ（オキシプロピレン）トリアミンがより好ましい。

[0036] また、オキシアルキレン構造を有さないアミン化合物（Ｘ）としては、脂肪族アミンでもよいし、芳香族環含有アミンでもよいし、アミドアミンでもよい。脂肪族アミンの具体例としては、これらに限定されるわけではないが、１，３－ジアミノプロパン、２－メチル－１，５－ジアミノペンタン、トリメチルヘキサメチレンジアミン、２-メチルペンタメチレンジアミン、ジエチルアミノプロピルアミン等の分岐又は直鎖のアルカンジアミン、１，３－ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、１，４－ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、シクロヘキサンジアミン、メチルシクロヘキサンジアミン、イソホロンジアミン等の脂環式ポリアミンが挙げられる。

アミドアミンとしては、低粘度体のものでならどの種類でもよい。

芳香族環含有アミンとしては、ｍ－キシリレンジアミン、ｍ－キシリレンジアミンとスチレンの反応生成物などのアミノ基が芳香族環に直接結合しないアミンであってもよいし、アミノ基が芳香族環に直接結合した芳香族アミンであってもよい。

オキシアルキレン構造を有さないアミン化合物（Ｘ）としては、硬化速度を適度に速くして、硬化初期においては一定の圧縮荷重を有することができるようにするために、ｍ－キシリレンジアミンとスチレンの反応生成物などのアミノ基が芳香族環に直接結合しない芳香族環含有アミンや、脂肪族ジアミンが好ましい。

[0037] アミン化合物（Ｘ）としては、上記の中では、速硬化性及び硬化初期においては一定の圧縮荷重を確保する点から、脂肪族アミンやアミノ基が芳香族

環に直接結合しない芳香族環含有アミンが好ましく、中でもポリオキシアルキレンポリアミン類がさらに好ましい。

アミン化合物（Ｘ）は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0038] アミン化合物（Ｘ）の分子量は、特に限定されないが、例えば、５０００以下であればよいが、３０００以下が好ましく、より好ましくは１０００以下、さらに好ましくは６００以下である。アミン化合物（Ｘ）は、分子量を一定値以下のものを使用することで、硬化性組成物の粘度を低くでき、熱伝導性充填材を高充填にすることも可能になる。

また、アミン化合物（Ｘ）の分子量は、例えば１００以上、好ましくは１１０以上、より好ましくは２００以上、さらに好ましくは３００以上のものを使用するとよい。上記アミン化合物（Ｘ）の分子量は、一定値以上とすることで、硬化初期における圧縮荷重が適度に低くなり、また、架橋密度が必要以上に高くなることを防止でき、伸びや接着力を良好にしやすくなる。なお、アミン化合物（Ｘ）は、常温（２５℃）で液体であるとよい。

なお、アミン化合物（Ｘ）や上記したエポキシ樹脂の分子量は、例えば質量分析装置（ＧＣ－ＭＳまたはＬＣ－ＭＳ）で測定することができる。

[0039] アミン化合物（Ｘ）の活性水素当量は、特に限定されないが、例えば１５ｇ／ｅｑ以上、好ましくは２５ｇ／ｅｑ以上、より好ましくは４０ｇ／ｅｑ以上であり、また、例えば１０００ｇ／ｅｑ以下、好ましくは６００ｇ／ｅｑ以下、より好ましくは３００ｇ／ｅｑ以下、更に好ましくは１５０ｇ／ｅｑ以下である。

[0040] アミン化合物（Ｘ）及びエポキシ樹脂の少なくともいずれかは、フェニル基を有することが好ましい。アミン化合物（Ｘ）及びエポキシ樹脂の少なくともいずれかが、フェニル基を有することで、疑似架橋構造を形成して、硬化性組成物の機械強度や接着力も高くしやすくなる。

[0041] 硬化性組成物におけるアミン化合物（Ｘ）の含有量は、第１の態様として、全樹脂成分に対して１５質量％以上５５質量％以下である。アミン化合物

（Ｘ）の含有量が１５質量％未満であると、多官能アクリレート化合物と、アミン化合物（Ｘ）の反応が素早く進行せずに速硬化性を付与することが難くなる。これは、単純にアミンが少なすぎることにより、十分硬化可能なアミン量が担保されず、接着強度の発現ができないことに起因する。

一方で、アミン化合物（Ｘ）の含有量が５５質量％を超えると、アミン化合物（Ｘ）が多官能アクリレート化合物のみならずエポキシ樹脂にも比較的多く多く反応するので、硬化開始の早い段階で圧縮荷重が比較的大きくなり、可使時間を長くできない。

アミン化合物（Ｘ）の含有量は、全樹脂成分に対して２５質量％以上５２質量％以下であることが好ましく、３０質量％以上５０質量％以下であることがより好ましく、３５質量％以上４８質量％以下であることがさらに好ましい。

なお、第１の実施形態において、アミン化合物（Ｘ）の含有量とは、上記したアミン化合物（Ｘ１）の含有量を意味する。

第１の実施形態の第１の態様において、アミン化合物（Ｘ）は、アミノ基を３つ以上有するものを使用すればよい。第１の態様において、３つ以上のアミノ基を有するアミン化合物の割合は、硬化性組成物全体におけるアミン化合物（Ｘ）に対して、５０質量％以上であればよく、好ましくは７０質量％以上１００質量％以下、より好ましくは８０質量％以上１００質量％以下である。

[0042] また、硬化性組成物におけるアミン化合物（Ｘ）の含有量は、第１の実施形態の第２の態様において、全樹脂成分に対して１５質量％以上７０質量％以下である。第２の態様において、アミン化合物（Ｘ）は、アミノ基を２つ有するものを使用すればよい。

第２の態様において、硬化性組成物におけるアミン化合物（Ｘ）の含有量が１５質量％未満であると、多官能アクリレート化合物と、アミン化合物（Ｘ）の反応が素早く進行せずに速硬化性を付与することが難くなる。一方で、アミン化合物（Ｘ）の含有量が７０質量％を超えると、アミン化合物（Ｘ

）が多官能アクリレート化合物のみならずエポキシ樹脂にも比較的多く多く反応するので、硬化開始の早い段階で圧縮荷重が比較的大きくなり、可使時間を長くできない。

第２の態様におけるアミン化合物（Ｘ）の含有量は、全樹脂成分に対して２５質量％以上６５質量％以下であることが好ましく、３５質量％以上６４質量％以下であることがより好ましく、４０質量％以上６３質量％以下であることがさらに好ましい。

第２の態様において、２つのアミノ基を有するアミン化合物の割合は、硬化性組成物全体におけるアミン化合物（Ｘ）に対して、５０質量％より高ければよく、好ましくは７０質量％以上１００質量％以下、より好ましくは８０質量％以上１００質量％以下、最も好ましくは１００質量％である。

[0043]（アミン化合物（Ｘ１）以外の硬化剤）

本発明の硬化性組成物は、本発明の効果を損なわない限り、上記したアミン化合物（Ｘ１）以外の硬化剤を含有してもよい。具体的には、粘度が２０Ｐａ・ｓより大きく、かつオキシアルキレン構造を有しない２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（以下、「アミン化合物（Ｘ２）」ということがある）や、１つのアミノ基のみを含むアミン化合物が挙げられる。

[0044] アミン化合物（Ｘ２）としては、例えば、オキシアルキレン構造を有しない２５℃において固体となるアミン化合物が挙げられる。

具体的には、ｍ－フェニレンジアミン、ｐ－フェニレンジアミン、ｐ－キシリレンジアミン、トリレン－２，４－ジアミン、トリレン－２，６－ジアミン、メシチレン－２，４－ジアミン、メシチレン－２，６－ジアミン、３，５－ジエチルトリレン－２，４－ジアミン、３，５－ジエチルトリレン－２，６－ジアミン、ビフェニレンジアミン、４，４－ジアミノジフェニルメタン、２，５－ナフチレンジアミン、２，６－ナフチレンジアミンなどの芳香環含有アミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン、１，１０－デカンジアミン、１，１１－ウンデカンジアミン、１，１２－ドデカンジアミン、１，１４－テトラデカンジアミ

ン、１，１６－ヘキサデカンジアミン、１，１８－オクタデカンジアミン、１，２０－エイコサンジアミン、２－メチル－１，８－オクタンジアミン、２－メチル－１，９－ノナンジアミン、２，７－ジメチル－１，８－オクタンジアミン等の脂肪族アミン、ポリアミドアミン、エステルアミンなどが挙げられる。

ポリアミドアミンとしては、例えば、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸等の脂肪族ジカルボン酸や、脂肪酸、ダイマー酸等のカルボン酸化合物と、脂肪族ポリアミンやポリオキシアルキレン鎖を有するポリアミン等を反応させて得られるものが挙げられる。エステルアミンとしては、１，５－ビス[１，２-ビス(エトキシカルボニル)エチルアミノ]－２－メチルペンタンなどが挙げられ、市販品としては、大都産業製の「ダイトクラール　Ｅ－６３４７」が挙げられる。

[0045] また、硬化性組成物は、本発明の効果を阻害しない限り、上記したエポキシ樹脂や、後述する多官能アクリレート化合物と反応し得る硬化剤として、アミノ基を１つのみ有するモノアミン類を含有してもよい。具体的には、これらに限定されるものではないが、メトキシポリ（オキシエチレン／オキシプロピレン)－２－プロピルアミン、ジグリコールアミン、Ｎ－メチルエタノールアミン、３－ブトキシプロパノールアミン、エチレングリコールアミン、プロピレングリコールアミン、ポリアミドアミンなどが挙げられる。

また、硬化性組成物は、本発明の効果を阻害しない限り、アミン化合物以外の硬化剤を含有してもよい。

[0046] ［多官能アクリレート化合物］

多官能アクリレート化合物は、官能基数（すなわち、（メタ）アクリロイル基の数）が２以上である化合物である。本発明では、硬化性組成物は、多官能アクリレート化合物を含有することで、アミン化合物（Ｘ）と迅速に反応し、速硬化性を有し、硬化初期において一定の接着力が付与される。

多官能アクリレート化合物としては、各種の（メタ）アクリレートを使用することができ、好ましくは多官能ジオールと、（メタ）アクリル酸のエス

テルであることが好ましい。

また、本明細書において、「（メタ）アクリロイル基」は、アクリロイル基及びメタクリロイル基のいずれかを意味し、「（メタ）アクリレート」はアクリレート及びメタクリレートのいずれかを意味し、他の類似する用語も同様である。

[0047] 多官能アクリレート化合物のうち２官能のものとして、例えば、１，３－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、１，１０－デカンジオールジ（メタ）アクリレート、２－ｎ－ブチル－２－エチル－１，３－プロパンジオールジ（メタ）アクリレート、ジメチロールトリシクロデカンジ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加ビスフェノールＦジ（メタ）アクリレート、ジメチロールジシクロペンタジエニルジ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド変性イソシアヌル酸ジ（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシ－３－（メタ）アクリロイロキシプロピル（メタ）アクリレート、カーボネートジオールジ（メタ）アクリレート、ポリエーテルジオールジ（メタ）アクリレート、ポリエステルジオールジ（メタ）アクリレート、ポリカプロラクトンジオールジ（メタ）アクリレート、ポリブタジエンジオールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0048] また、多官能アクリレート化合物のうち３官能以上のものとしては、例えば、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（

メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレートなどのアルキレンオキシド付加トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、エチレンオキシド付加イソシアヌル酸トリ（メタ）アクリレート、プロピレンオキシド付加グリセリントリ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、アルキレンオキシド付加ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリペンタエリスリトールオクタ（メタ）アクリレート、テトラペンタエリスリトールデカ（メタ）アクリレート、トリペンタエリスリトールヘプタ（メタ）アクリレート、テトラペンタエリスリトールノナ（メタ）アクリレートなどが挙げられる。

[0049] 多官能アクリレート化合物の官能基数は、３以上であることが好ましく、４以上であることがより好ましく、６以上であることがさらに好ましい。多官能アクリレート化合物の官能基数が多くなると、速硬化性が高められ、硬化初期における接着力が高まりやすくなる。なお、多官能アクリレート化合物の官能基数の上限は、特に限定されないが、例えば１０以下であってよいし、８以下であってもよい。

[0050] 多官能アクリレート化合物は、速硬化性を高める観点、硬化性組成物の硬化前の粘度を低くできる観点から、その分子量は、一定以下であることが好ましい。具体的な多官能アクリレート化合物の分子量は、例えば、５０００以下であればよいが、３０００以下が好ましく、より好ましくは１０００以下、さらに好ましくは７００以下である。また、多官能アクリレート化合物の分子量は、例えば１５０以上、好ましくは２００以上、より好ましくは２５０以上、さらに好ましくは４５０以上のものを使用するとよい。上記多官能アクリレート化合物の分子量は、一定値以上とすることで、硬化初期にお

ける圧縮荷重が適度に低くなり、また、架橋密度が必要以上に高くなることを防止でき、伸びや接着力を良好にしやすくなる。

多官能アクリレート化合物は、硬化前の硬化性組成物の粘度を低くしやすくする観点から常温（２５℃）で液体であることが好ましい。

[0051] 多官能アクリレート化合物の官能基当量は、特に限定されないが、好ましくは５００ｇ／ｅｑ以下、より好ましくは３００ｇ／ｅｑ以下、さらに好ましくは１５０ｇ／ｅｑ以下であり、また、好ましくは７５ｇ／ｅｑ以上、より好ましくは８０ｇ／ｅｑ以上、さらに好ましくは８５ｇ／ｅｑ以上である。

[0052] 硬化性組成物において、エポキシ樹脂の官能基数に対する、多官能アクリレート化合物の官能基数の比は、０．１以上２．５以下程度であればよいが、好ましくは０．３以上１．５以下、より好ましくは０．６以上１．２以下、更に好ましくは０．７５以上１．１以下である。多官能アクリレート化合物の官能基数の比を所定範囲内とすると、初期段階ではアミン化合物（Ｘ）と多官能アクリレート化合物が優先的に硬化され、速硬化性が発現される一方で、アミン化合物（Ｘ）とエポキシ樹脂の反応が抑制されるので、硬化初期における圧縮荷重が低く維持され、可使時間を長くできる。

[0053] 多官能アクリレート化合物の含有量は、全樹脂成分に対して、例えば、２６質量％以下であるが、２０質量％以下であることが好ましい。多官能アクリレート化合物の含有量を低くし、例えば、２０質量％以下とすると、多官能アクリレート化合物によって初期の硬化が進行しすぎることを防止して、初期の圧縮荷重を低く維持しやすくなる。また、多官能アクリレート化合物の含有量を少なくすると、耐湿性も向上する。そのため、例えば硬化後に高温高湿下で長時間使用しても、高い接着強度を維持できる。多官能アクリレート化合物の含有量は、１８質量％以下であることがより好ましく、１７質量％以下であることがさらに好ましい。

また、多官能アクリレート化合物の含有量は、速硬化性を発現して、硬化初期における接着力を高くするためには、一定量以上としたほうが良く、全

樹脂成分に対して例えば、３質量％以上であるが、好ましくは５質量％以上、より好ましくは１０質量％以上、さらに好ましくは１２質量％以上である。

[0054] なお、硬化性組成物は、硬化剤により硬化し得る主剤として、上記したエポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物以外の化合物を含有してもよい。エポキシ樹脂、多官能アクリレート化合物以外の主剤としては、単官能アクリレート化合物などが挙げられる。単官能アクリレート化合物は、（メタ）アクリロイル基を１つのみ有る（メタ）アクリレートである。

[0055] また、本実施形態では、硬化性組成物におけるエポキシ樹脂、アクリレート化合物、及びアミン化合物の各含有量は、各化合物に含有される官能基の当量比が、以下の式（１）のように調整されることが好ましい。

［Ａ／（Ｂ＋Ｃ）］＝１．１以上２．９以下　　（１）

（なお、式（１）において、上記Ａは、硬化性組成物におけるアミン化合物に含まれるアミノ基の活性水素の数、Ｂはエポキシ樹脂に含まれるエポキシ基の数、Ｃは、アクリレート化合物に含まれる（メタ）アクリロイル基の数である）

上記官能基の当量比が、１．１以上であることで、アミノ基の活性水素の数が適切になり、硬化の初期においても一定の反応が進み、速硬化性を得やすくなる。また、２．９以下とすることで、アミノ基の活性水素の数が多くなりすぎず、硬化初期における圧縮荷重が低くなり、可使時間を長くしやくなる。

上記官能基の当量比は、１．３以上がより好ましく、１．３５以上がさらに好ましく、１．４以上がよりさらに好ましく、また、２．６以下がより好ましく、２．１以下がさらに好ましく、１．８以下がよりさらに好ましい。

[0056] なお、上記の当量比は、以下のとおりにエポキシ基の当量と、アミノ基の活性水素の当量と、（メタ）アクリロイル基の当量を算出して求めることができる。

エポキシ基の当量は、硬化性組成物に含有されるエポキシ樹脂の含有量（

ｇ）をエポキシ当量（ｇ／ｅｑ）で除して得ることができる。ただし、エポキシ樹脂が２種以上含まれる場合には、各エポキシ樹脂の含有量（ｇ）をエポキシ当量（ｇ／ｅｑ）で除して得た値を合計して得ることができる。

アミノ基の活性水素の当量は、硬化性組成物におけるアミンの含有量（ｇ）をアミンの活性水素当量（ｇ／ｅｑ）で除して得ることができる。ただし、アミンが２種以上含まれる場合には、各アミンの含有量（ｇ）を活性水素当量（ｇ／ｅｑ）で除して得た値を合計して得ることができる。

さらに、（メタ）アクリロイル基の当量は、硬化性組成物に含有されるアクリレート化合物の含有量（ｇ）を（メタ）アクリロイル当量（ｇ／ｅｑ）で除して得ることができる。ただし、アクリレート化合物が２種以上含まれる場合には、各アクリレート化合物の含有量（ｇ）を（メタ）アクリロイル当量（ｇ／ｅｑ）で除して得た値を合計して得ることができる。

なお、エポキシ当量（ｇ／ｅｑ）は、エポキシ樹脂の分子量を１分子当りのエポキシ基の数で除して得ることができる。また活性水素当量（ｇ／ｅｑ）は、アミンの分子量を１分子あたりの活性水素個数で除して得ることができる。さらに、（メタ）アクリロイル当量（ｇ／ｅｑ）はアクリレート化合物の分子量を１分子当りの（メタ）アクリロイル基の個数で除して得ることができる。

分子量、エポキシ基の個数、活性水素の個数及び（メタ）アクリロイル基の個数は、質量分析装置（ＧＣ－ＭＳまたはＬＣ－ＭＳ）で測定することができる。また、質量分析装置で分子量のみしか特定できなかった場合には、１分子あたりのエポキシ基の個数および活性水素個数は、ＮＭＲ（１Ｈ　ＮＭＲなど）などで特定可能である。ただし試料が混合物である場合は、ＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）またはＨＰＬＣ（高速液体クロマトグラフ）で各成分を単離してからＮＭＲを測定することが好ましい。

なお、エポキシ樹脂の構造式が分かっている場合には、分子量及びエポキシ基の個数は、構造式から算出できるエポキシ樹脂の分子量及びエポキシ基

の数である。また、アミンの構造式が分かっている場合には、分子量及び活性水素個数は、構造式から算出できるアミンの分子量及び活性水素の数である。アクリレート化合物の場合も同様である。

なお、アミンの活性水素の数は、NHR_2（２級アミノ基）は１とし、NH_2R（１級アミノ基）は２とするものである（ただし、NHR_2、NH_2Rにおいて、Ｒは活性水素以外の官能基、すなわちアミンの該ＮＨ又はNH_2以外の部分である）。

[0057] 硬化性組成物における上記樹脂成分の含有率は、硬化性組成物全体の体積に対して、８体積％以上６５体積％以下が好ましい。上記下限値以上であると、熱伝導性部材、硬化性組成物中に熱伝導性充填材を適切に分散できるようになる。また、硬化性組成物の粘度が必要以上に高くなったりすることも防止できる。また、上記上限値以下であることで、硬化性組成物中に一定量以上の熱伝導性充填材を含有させやすくなる。硬化性組成物における樹脂成分の含有率は、１５体積％以上５５体積％以下がより好ましく、１８体積％以上４５体積％以下がさらに好ましい。

[0058] ［水］

本実施形態における硬化性組成物は、水を含有してもよい。硬化性組成物は、水を含有することで、水が触媒として機能して、アミン化合物（Ｘ）と、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物、特にアミン化合物（Ｘ）と多官能アクリレート化合物の反応を促進させ、速硬化性を得やすくなる。

水の含有量は、硬化性組成物全量基準で０．３質量％以上２．０質量％以下であることが好ましい。水の含有量が、０．３質量％以上であると、水によりアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物の反応を適切に促進することができる。また、２．０質量％以下であることで、過剰量の水により硬化性組成物の硬化物の物性が低下したり、水により硬化が進行しすぎて可使時間が短くなったりする不具合が生じにくくなる。

水の含有量は、０．５質量％以上１．５質量％以下が好ましく、０．７質量％以上１．２質量％以下がより好ましい。

なお、硬化性組成物における上記水の含有量は、カールフィッシャー法で測定することで求めることができる。

[0059] また、硬化性組成物は、水を含有する場合、多官能アクリレート化合物の含有量を比較的少量にしても、多官能アクリレート化合物とエポキシ樹脂の反応を効果的に進行させることができ、十分な速硬化性を持たせることができる。そのため、硬化性組成物が水を含有する場合でも、多官能アクリレート化合物の含有量は、上記した上限値以下となるように調整すればよいが、さらに少なくしてもよく、例えば１０質量％以下としてもよい。

[0060] ［熱伝導性充填材］

本実施形態に係る硬化性組成物は、熱伝導性充填材を含有する。硬化性組成物が熱伝導性充填材を含有することにより、硬化性組成物により形成される熱伝導性部材の熱伝導性が向上する。

熱伝導性充填材としては、例えば、金属、金属酸化物、金属窒化物、金属水酸化物、炭素材料、金属以外の酸化物、窒化物、炭化物などが挙げられる。また、熱伝導性充填材の形状は、球状、不定形の粉末などが挙げられる。

熱伝導性充填材において、金属としては、アルミニウム、銅、ニッケルなど、金属酸化物としては、アルミナに代表される酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛など、金属窒化物としては窒化アルミニウムなどを例示することができる。金属水酸化物としては、水酸化アルミニウムが挙げられる。さらに、炭素材料としては球状黒鉛などが挙げられる。金属以外の酸化物、窒化物、炭化物としては、石英、窒化ホウ素、炭化ケイ素などが挙げられる。これらの中でも、熱伝導性部材の放熱性向上の観点から、酸化アルミニウムが好ましく、難燃性を高めたい場合には水酸化アルミニウムが好ましい。

熱伝導性充填材は、上記したものを１種単独で使用してもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0061] 熱伝導性充填材の平均粒径は０．１μｍ以上２００μｍ以下であることが好ましく、０．５μｍ以上１５０μｍ以下であることがより好ましく、１μ

ｍ以上１１０μｍ以下であることがさらに好ましい。

熱伝導性充填材は、平均粒径が０．１μｍ以上５μｍ以下の小粒径熱伝導性充填材と、平均粒径が５μｍ超２００μｍ以下の大粒径熱伝導性充填材を併用することが好ましい。平均粒径の異なる熱伝導性充填材を使用することにより、充填率を高めることができる。

なお、熱伝導性充填材の平均粒径は、電子顕微鏡等で観察して測定できる。より具体的には、例えば電子顕微鏡や光学顕微鏡を用いて、任意の熱伝導性充填材５０個の粒径を測定して、その平均値（相加平均値）を平均粒径とすることができる。

[0062] 硬化性組成物における熱伝導性充填材の含有率は、硬化性組成物全体の体積に対して、３０体積％以上９０体積％以下が好ましい。上記下限値以上であると、一定の熱伝導性を硬化性組成物に付与できる。また、熱伝導性充填材の含有量を上記上限値以下とすることで、硬化性組成物中に熱伝導性充填材を適切に分散でき、硬化性組成物の粘度が必要以上に高くなったりすることも防止できる。なお、本発明では、硬化性組成物を低粘度化することで熱伝導性充填材の含有率を高めやすくなる。硬化性組成物における熱伝導性充填材の含有率は、４０体積％以上８０体積％以下がより好ましく、５０体積％以上７５体積％以下がさらに好ましい。

硬化性組成物における熱伝導性充填材の含有量は、質量部で表すと、樹脂成分１００質量部に対して、好ましくは１５０質量部以上３０００質量部以下、より好ましくは２００質量部以上２０００質量部以下、さらに好ましくは３００質量部以上１０００質量部以下である。

[0063]（その他の添加剤）

本発明の硬化性組成物は、上記以外の添加剤を含有してもよく、そのような添加剤としては、分散剤、水以外の主剤と硬化剤との反応を促進する硬化触媒、主剤と硬化剤の反応を抑制する反応速度制御剤（反応遅延剤）、チクソ性付与剤、難燃剤、可塑剤、酸化防止剤、着色剤などが挙げられる。

[0064] 本発明の硬化性組成物は、上記の通り、分散剤を含有してもよい。分散剤

としては、高分子系分散剤が挙げられる。高分子系分散剤としては、官能基を有する高分子化合物が挙げられる。高分子化合物としては、例えば、アクリル系、ビニル系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリエーテル系、エポキシ系、ポリスチレン系、アミノ系、シリコーン系等が挙げられる。また、官能基としては、カルボキシル基、リン酸基、スルホン酸基、カルボン酸エステル基、リン酸エステル基、スルホン酸エステル基、ヒドロキシル基、アミノ基、四級アンモニウム塩基、アミド基等が挙げられる。また、分散剤は、高分子分散剤以外を使用してもよく、例えばアルコキシシラン化合物を使用してもよい。

硬化性組成物における分散剤の含有量は、樹脂成分１００質量部に対して、０．０１質量部以上５質量部以下が好ましく、０．０５質量部以上３質量部以下がより好ましく、０．０７質量部以上２質量部以下がさらに好ましい。

[0065] ＜粘度＞

本発明の硬化性組成物は、粘度が３００Ｐａ・ｓ以下であることが好ましい。なお、粘度は、レオメータを用いて、サンプルの温度をペルチェプレートにて２５℃に調整し、φ２５ｍｍのパラレルプレートを用い、せん断速度０．０００１～１００（１／ｓ）の範囲で連続的にせん断速度を変化させながら測定した粘度であり、せん断速度３．１６（１／ｓ）における値である。レオメータとしては、例えば、アントンパール社製のレオメータ「ＭＣＲ－３０２ｅ」を用いる。

ただし、２液硬化型の硬化性組成物について第１剤と第２剤の混合後の粘度を測定するとよいが、その場合、硬化速度が速すぎて精度の高い評価を行うことができないことがあるため、第１剤と第２剤について混合前の粘度を測定して評価すればよい。

ただし、後述する通り第１剤および第２剤について混合前の粘度を測定する場合には、サンプルをレオメータに設置してから、１０分間静置した後に粘度を測定するものとする。

[0066] 硬化性組成物の粘度を３００Ｐａ・ｓ以下とすることで、硬化性組成物を被着体に容易に塗布できるようになり、作業性が向上する。また、狭い隙間に対しても、硬化性組成物を充填しやすくなる。上記粘度は、２５０Ｐａ・ｓ以下であることがより好ましく、２００Ｐａ・ｓ以下であることがさらに好ましい。また、上記粘度は、例えば１０Ｐａ・ｓ以上であればよいが、熱伝導性充填材を一定量以上充填させて、液だれなどを発生しにくくする観点から、３０Ｐａ・ｓ以上が好ましく、５０Ｐａ・ｓ以上がより好ましい。

[0067] ＜接着強さ＞

本発明の硬化性組成物は、硬化後の接着強さを大きくすることで、高い接着力を確保できる。したがって、硬化後の硬化性組成物の接着強さは、高ければ高いほどよく、例えば１ＭＰａ以上、好ましくは１．５ＭＰａ以上、より好ましくは２ＭＰａ以上である。硬化後の硬化性組成物の接着強さは高ければ高いほどよいが、実用的には、例えば２５ＭＰａ以下である。

また、本発明の硬化性組成物は、硬化後の最大荷重での伸びを一定値以上にすることで、柔軟性を確保でき、信頼性などを向上させやすくなる。本発明の硬化性組成物は、硬化後の最大荷重での伸びが、例えば０．４ｍｍ以上、好ましくは０．５ｍｍ以上、より好ましくは０．６ｍｍ以上である。また、最大荷重での伸びは、特に限定されないが、一定の接着強さを付与する点から、例えば３ｍｍ以下、好ましくは２ｍｍ以下である。

[0068] 本発明の硬化性組成物は、１８℃、２０％ＲＨ環境下で１時間放置したときの接着強度（「工程接着強度」ともいう）も一定値以上であることが好ましい。工程接着強度は、硬化初期における接着強度を示すものであり、値が高いほど、速硬化性が良好である傾向を示すものであり、工程接着強度が一定値以上であると、硬化性組成物の速硬化性が良好となる。工程接着強度は、好ましくは０．０５ＭＰａ以上、より好ましくは０．１ＭＰａ以上、さらに好ましくは０．２５ＭＰａ以上である。工程接着強度の上限は特に限定されないが、後述する圧縮荷重を低くしやすい観点から、例えば１ＭＰａ以下である。

[0069] なお、上記した硬化後の硬化性組成物の接着強さ及び最大荷重での伸びは、以下の試験方法で測定できる。まず、２５ｍｍ×１００ｍｍで厚み２ｍｍの２枚のＰＥＴ板を用意する。そして、用意した２枚の板を、硬化性組成物を介して端部同士を重ねたうえで硬化性組成物を硬化させることで、板の端部間を接着させて測定サンプルを得る。なお、板の端部間は、２５ｍｍ×５ｍｍで厚み１ｍｍの硬化性組成物の硬化物により接着させる。得られた測定サンプルを引張試験機により長さ方向に引っ張った際の最大荷重を接着力とし、最大荷重での硬化物の伸びを最大荷重での伸びとする。引張速度は１０ｍｍ／秒とするとよい。

なお、硬化性組成物の硬化は、ＰＥＴ板間で硬化性組成物を全硬化させるとよい。具体的には、例えば２液型では、第１剤と第２剤とを混合して塗布によりＰＥＴ板間に配置した後、室温（２５℃）で１６８時間放置することで行えばよい。

一方で、工程接着強度は、基材として、ＰＥＴ板の代わりに、２５ｍｍ×１００ｍｍで厚み２ｍｍのアルミニウム板及びガラス繊維強化ＰＥＴ基板を使用し、かつ硬化性組成物を１８℃、２０％ＲＨ環境下で１時間放置することにより硬化させる以外は、接着強さの測定と同様の方法で測定すればよい。

[0070] ＜熱伝導率＞

本発明の硬化性組成物は、その硬化物の熱伝導率が、１．３Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であることが好ましく、１．５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であることがより好ましく、１．７Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であることがさらに好ましい。硬化性組成物は、硬化物の熱伝導率がこれら下限値以上とすることで、熱伝導性が良好となる。そのため、例えばバッテリセルアセンブリで使用する場合には、バッテリセルから発生する熱を、硬化性組成物の硬化物（熱伝導性部材）を経由して、モジュール筐体やバッテリパックに効率的に伝えることができ、バッテリセルの温度の過度の上昇を抑えることができる。上記熱伝導率は、高ければ高いほどよいが、実用的には、例えば７．０Ｗ／ｍ・Ｋ以下であ

る。

熱伝導率は、ＡＳＴＭ　Ｄ５４７０－０６に準拠した方法で測定することがきる。

具体的には、発熱体側となる測定ダイを覆うように硬化性組成物を測定時の厚さより多めに配置し、その後放熱体で挟み込み、３０ｐｓｉの荷重で硬化性組成物の厚さが１．０ｍｍ、１．５ｍｍ、２．０ｍｍになるまで圧縮して各厚さの熱抵抗を測定する。厚さはスペーサーで調整することができる。これら３つの熱抵抗の値について、横軸が厚さ、縦軸が熱抵抗値のグラフを作成し、最小二乗法により３点の近似直線を求める。そして、その近似直線の傾きを熱伝導率とする。

[0071] 本発明において、硬化性組成物は、３５℃で１０分で硬化されたときの圧縮荷重が１５００Ｎ以下であることが好ましく、１０００Ｎ以下であることがより好ましく、８００Ｎ以下であることがさらに好ましい。圧縮荷重の下限は、特に限定されないが、仮接着時に一定の接着力を得やすくする観点から、例えば１００Ｎである。上記圧縮荷重が所定値以下であると、硬化性組成物が、硬化初期において一定の柔軟性を有し、仮接着などしやすくなる。また、上記圧縮荷重が低いことで、可使時間も長くしやすくなる。

圧縮荷重は、上記条件で硬化した硬化性組成物に対して、治具を実施例に記載の所定の条件で押し付けた際の荷重である。

[0072] ＜供給形態＞

本実施形態の硬化性組成物の形態は、１液型でもよいし、第１剤と第２剤を組み合わせてなる２液型でもよいが、保存安定性の観点から、２液型が好ましい。

２液型の硬化性組成物において、第１剤と第２剤の質量比（第２剤／第１剤）は、１又は１に近い値であることが好ましく、具体的には０．９以上１．１以下が好ましく、０．９５以上１．０５以下がより好ましい。このように、第１剤と第２剤の質量比を１又は１に近い値とすることで、硬化性組成物の調製が容易になる。

[0073] また、２液型の硬化性組成物において、第１剤と第２剤は、いずれも常温（２５℃）で液状であり、第１剤と第２剤の粘度は、同一であるか、粘度が違っても粘度差が小さいことが好ましい。このように、第１剤と第２剤の粘度を互いに同一とし、又は近い値とすることで、硬化性組成物を均一に混合しやすくなる。

具体的な第１剤の粘度（Ｐａ・ｓ）と、第２剤の粘度（Ｐａ・ｓ）との粘度差は、１５０Ｐａ・ｓ以下であることが好ましく、１００Ｐａ・ｓ以下であることがより好ましく、５０Ｐａ・ｓ以下であることがさらに好ましい。また、粘度差は、０Ｐａ・ｓ以上であればよい。

第１剤及び第２剤の粘度はそれぞれ、特に限定されないが、好ましくは１０Ｐａ・ｓ以上３００Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは３０Ｐａ・ｓ以上２５０Ｐａ・ｓ以下、さらに好ましくは４０Ｐａ・ｓ以上２００Ｐａ・ｓ以下である。

なお、ここでいう第１剤及び第２剤の粘度は、レオメータ（例えば、アントンパール社製のレオメータ「ＭＣＲ－３０２ｅ」）を用いて、サンプルの温度をペルチェプレートにて２５℃に調整し、φ２５ｍｍのパラレルプレートを用い、サンプルを設置して１０分間静置した後に、せん断速度０．０００１～１００（１／ｓｅｃ）の範囲で連続的にせん断速度を変化させながら測定することができる。また、前記粘度の値は、せん断粘度が３．１６（１／ｓｅｃ）のときの値とする。

[0074] ２液型の硬化性組成物は、より具体的には、第１剤が、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物など、硬化剤により硬化される主剤を含み、第２剤がアミン化合物（Ｘ）などの硬化剤を含むとよい。

[0075] ２液型の硬化性組成物において、第１剤は、主剤（すなわち、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物）を含むが、硬化剤（すなわち、アミン化合物（Ｘ））を含有しなくてよい。

一方で、第２剤は、硬化剤（すなわち、アミン化合物（Ｘ））を含有する。また、第２剤は、必要に応じて硬化触媒を含有するとよい。例えば、水を

触媒として使用する場合には、第２剤に水を含有させるとよい。また、主剤（すなわち、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物）を含有しなくてもよい。ただし、第２剤は、硬化剤と反応しない限り、主剤（すなわち、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物）の一部を含有してもよい。

[0076] また、熱伝導性充填材は、第１剤及び第２剤の少なくとも一方に含有されるが、第１剤及び第２剤のいずれにも含有されることが好ましい。

したがって、第１剤は、主剤（すなわち、エポキシ樹脂及び多官能アクリレート化合物）と、熱伝導性充填材を含み、かつ第２剤は、硬化剤（すなわち、アミン化合物）と熱伝導性充填材を含むことが好ましい。そして、第１剤にアミン化合物などの硬化剤を含まず、第２剤に主剤を含まないことがさらに好ましい。したがって、硬化性組成物の主剤は、全て第１剤に含まれ、硬化性組成物の硬化剤は全て第２剤に含まれることがさらに好ましい。

[0077] また、熱伝導性充填材は、上記の通り第１剤と第２剤の両方に含有されることが好ましいが、中でもおおよそ均等に第１剤及び第２剤に含有されることがより好ましい。具体的には、第１剤における熱伝導性充填材の含有量に対する、第２剤における熱伝導性充填材の含有量の比（質量比）は、０．６７以上１．５以下が好ましく、０．８３以上１．２以下がより好ましく、０．９１以上１．１以下がさらに好ましい。熱伝導性充填材を第１剤と第２剤におおよそ均等に配分することで、第１剤と第２剤の粘度差を小さくしやすくなり、また、第１剤と第２剤の体積比も１に近づけやすくなる。

[0078] また、第１剤と第２剤の粘度差は、用いるエポキシ樹脂、多官能アクリレート化合物、及びアミン化合物の粘度によって調整することもできる。例えば、エポキシ樹脂が含まれる第１剤の粘度を低くしたい場合には、低粘度のエポキシ樹脂を用いるか、低粘度のエポキシ樹脂の含有量を増やせばよい。同様に、第１剤の粘度は、アクリレート化合物の種類及び量により調整してもよい。さらに、分散剤や可塑剤を添加することでも、粘度を低く調整しても良い。

[0079] 第１剤と第２剤の密度は、互いに近い方が混合しやすい場合があり、これ

らの密度の差は小さい方が好ましい。具体的には、第１剤の密度と第２剤の密度との比（密度比ともいう）は、０．７以上１．４以下が好ましく、０．８以上１．２以下がより好ましく、０．９以上１．１以下がさらに好ましい。密度比を小さくするためには、第１剤と第２剤の熱伝導性充填材の含有量を上記範囲内で調整すればよい。

２液型において、分散剤やその他の添加剤は、必要に応じて第１剤及び第２剤の一方又は両方に含有させるとよい。例えば、分散剤は、熱伝導性充填材が第１剤及び第２剤の両方に含有される場合には、第１剤及び第２剤の両方に含有させればよい。

[0080] ２液型の硬化性組成物において、第１剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）に対する、第２剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）の比は１．１以上２．９以下であることが好ましい。第１剤と第２剤の官能基濃度を上記範囲内とすることで、第１剤と第２剤を体積比１：１で混合すると、主剤と硬化剤が適切な当量比で反応して、速硬化性を有しつつ、可使時間も長くしやすくなる。また、硬化性組成物は、適度な接着強度を維持しつつ、３次元架橋が密になりすぎず適切な弾性率を有するように硬化させやすくなる。

当該官能基濃度の比は、１．３以上がより好ましく、１．３５以上がさらに好ましく、１．４以上がよりさらに好ましく、また、２．６以下がより好ましく、２．１以下がさらに好ましく、１．８以下がよりさらに好ましい。

[0081] なお、官能基濃度とは、第１剤又は第２剤に含まれる、エポキシ基、（メタ）アクリロイル基、及びアミノ基の活性水素の濃度であり、第１剤では、エポキシ基及び（メタ）アクリロイル基が官能基となり、単位量（ｇ）当たりのエポキシ基及び（メタ）アクリロイル基の数の合計が官能基濃度となる。また、第２剤では、アミノ基の活性水素が官能基となり、単位量（ｇ）当たりのアミノ基の活性水素の数が官能基濃度となる。

[0082] 硬化性組成物が２液型である場合、第１剤と第２剤は、別々の容器に充填されることが好ましく、具体的には第１剤が第１の容器に、第２剤が第２の容器に充填されるとよい。第１の容器と第２の容器は、別体であってもよい

し、一体となってもよい。第１の容器と第２の容器が一体となることで、容器セットとして需要先への供給が容易となる。なお、本明細書では、第１剤が充填された第１の容器と、第２剤が充填された第２の容器を纏めて容器セットということがある。

[0083] 容器としては、シリンジやカートリッジ、ペール缶やドラム缶等が挙げられるが、これらに限定されない。例えば、シリンジに充填される場合、２液並列タイプのシリンジとすることが好ましい。２液並列タイプのシリンジ３０は、図１に示すとおりに、第１の容器を構成する第１のシリンジ３１と、第２の容器を構成する第２のシリンジ３２が並列されて一体となったものである。シリンジ３１、３２に充填された第１剤３５及び第２剤３６は、シリンジをディスペンサーとしてシリンジから吐出されて混合されるとよい。

[0084] また、カートリッジを用いる場合、容器セットは、第１の容器を構成する第１のカートリッジと、第２の容器を構成する第２のカートリッジからなり、これらカートリッジは一体となっていてもよい。なお、カートリッジは、通常、シリンジ（例えば、第１のシリンジ、第２のシリンジ）などにセットされて、第１のカートリッジから送出された第１剤、第２のカートリッジから送出された第２剤が、各シリンジをディスペンサーとして、第１のシリンジ及び第２のシリンジそれぞれの吐出口から吐出されて混合されるとよい。

[0085] 第１剤及び第２剤の混合は、スタティックミキサーなどの混合器で行うとよい。スタティックミキサー３８は、例えば、図１に示すとおりに、第１のシリンジ３１の吐出口３１Ａと第２のシリンジ３２の吐出口３２Ａに接続され、各吐出口３１Ａ，３２Ａから吐出された第１剤３５及び第２剤３６をミキサー３８内部で混合させることが可能である。ミキサー３８で混合されて得られた混合物（硬化性組成物）は、ミキサー３８の吐出口３９から吐出されるとよい。

各シリンジ３１、３２は、第１剤３５及び第２剤３６それぞれが充填されるバレル３３Ａ，３４Ａの開口が蓋体３３Ｂ，３４Ｂで閉じられた構造を有するとよい。図１に示すシリンジ３０において、第１剤３５及び第２剤３６

は、各蓋体３３Ｂ，３４Ｂが外され、開口から挿入されたピストン（図示しない）によって押し出されて、各吐出口３１Ａ，３２Ａからから吐出されるとよい。

[0086] また、ペール缶を使用する場合、容器セットは、図２に示すとおりに、第１の容器を構成し、内部に第１剤４５が充填される第１のペール缶４１と、第２の容器を構成し、内部に第２剤４６が充填される第２のペール缶４２を備えるとよい。なお、各ペール缶４１、４２は、例えば、第１剤４５及び第２剤４６が内部に充填され、開口を有する容器本体４３Ａ、４４Ａと、各容器本体４３Ａ，４４Ｂの開口を閉じる蓋体４３Ｂ、４４Ｂを備える。

[0087] ＜硬化性組成物の調製方法＞

本発明の硬化性組成物が２液型である場合、第１剤及び第２剤はそれぞれ、第１剤及び第２剤それぞれを構成する成分を混合して得るとよい。同様に１液型である場合には、硬化性組成物を構成する各成分を混合して得るとよい。各成分を混合する方法は、特に限定されないが、例えば、主剤や硬化剤に、必要に応じて配合される熱伝導性充填材、さらには、必要に応じて配合される分散剤などの添加剤などを添加し、その後攪拌ないし混練などすることで調製するとよい。

[0088] また、熱伝導性充填材は、分散剤によって表面処理された上で、主剤又は硬化剤と混合してもよい。熱伝導性充填材は、分散剤によって予め表面処理されることで、予め分散剤によって表面修飾されることになる。そして、予め表面修飾された熱伝導性充填材を主剤及び硬化剤に混合させて、第１剤や第２剤を調製するとよい。

分散剤を用いて予め表面処理をする方法は、特に制限はなく、公知の方法で行えばよく、例えば、湿式処理法、乾式処理法などを用いることができる。湿式処理法では、例えば、分散剤を溶媒に分散又は溶解した処理液中に、熱伝導性充填材を加えて混合し、その後、乾燥、加熱処理、洗浄などすることで、熱伝導性充填材の表面に分散剤を結合ないし付着させるとよい。また、乾式処理法は、分散媒を使用せずに表面処理する方法であり、具体的には

、熱伝導性充填材に分散剤を混合しミキサー等で攪拌し、その後、加熱処理することで、熱伝導性充填材の表面に分散剤を結合ないし付着させる方法である。

[0089] ＜＜第２の実施形態＞＞

本発明の第２の実施形態に係る硬化性組成物は、エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物と、水とを含むものである。

本実施形態では、エポキシ樹脂、熱伝導性充填材、アミン化合物（Ｘ）、及び多官能アクリレート化合物を含む硬化性組成物において、水をさらに含有することで、初期硬化が直ちに進行して速硬化性を有しながらも、硬化初期において圧縮荷重が適度に低い状態を長く維持でき、可使時間を長くすることができる。

[0090] 第２の実施形態における水の含有量は、硬化性組成物全量に対して０．３質量％以上２質量％以下である。第２の実施形態において水の含有量が、０．３質量％を下回ると、初期の硬化を速くしながら圧縮荷重を適度に低い状態に長く維持することが難しくなり、速硬化性にしながら、可使時間を長くすることが難しくなる。また、水の含有量が２．０質量％を超えると、水によって硬化性組成物の硬化物の物性が低下したり、水によって硬化が進行しすぎて可使時間が短くなったりする不具合が生じやすくなる。

第２の実施形態において、水の含有量は、硬化性組成物全量に対して０．５質量％以上１．５質量％以下が好ましく、０．７質量％以上１．２質量％以下がより好ましい。

[0091] ２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）は、上記第１の実施形態では、２５℃、１０ｒｐｍにおける粘度が、２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有するアミン化合物（Ｘ１）を使用した。しかし、第２の実施形態では、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）は、アミン化合物（Ｘ１）であってもよいが、アミン化合物（Ｘ１）である必要はなく、アミン化合物（Ｘ１）以外のアミン化合物（Ｘ２）であっても

よいし、アミン化合物（Ｘ１）とアミン化合物（Ｘ２）を併用したものでもよい。なお、アミン化合物（Ｘ１）とアミン化合物（Ｘ２）の詳細は、上記の通りであるので、その説明は省略する。

第２の実施形態において、アミン化合物（Ｘ）の含有量は、第１の実施形態と同様に、全樹脂成分に対して１５質量％以上５５質量％以下であるとよく、２５質量％以上５０質量％以下であることが好ましく、３０質量％以上４８質量％以下であることがより好ましい。ただし、第２の実施形態において、アミン化合物（Ｘ）の含有量とは、上記したアミン化合物（Ｘ１）とアミン化合物（Ｘ２）の合計含有量を意味する。ただし、アミン化合物（Ｘ）の含有量は、上記範囲外であってもよく、例えば、１０質量％以上６５質量％以下程度であてもよい。

[0092] 第２の実施形態において、アミン化合物（Ｘ）以外の構成は、第１の実施形態と同様であるので、その説明は省略する。すなわち、第２の実施形態において、エポキシ樹脂、熱伝導性充填材、及び多官能アクリレート化合物、その他の添加剤、粘度、接着強さ、工程接着強度、熱伝導率、圧縮荷重、供給形態、調製方法の詳細は上記第１の実施形態で説明したとおりであるので、その説明は省略する。

[0093] ［熱伝導性部材］

本発明の硬化性組成物は、熱伝導性部材として使用されるとよい。本発明の硬化性組成物は、硬化することで熱伝導性部材となるものである。本発明の熱伝導性部材は、硬化性組成物の硬化物であり、高分子マトリクスと、熱伝導性充填材とを含む。高分子マトリクスは、エポキシ樹脂、多官能アクリレート化合物、及びアミン化合物（Ｘ）を含む樹脂成分が硬化されて得られるエポキシ樹脂硬化物からなるものであり、熱伝導性充填材は、高分子マトリクス中に分散されて高分子マトリクスに保持される。熱伝導性部材は、発熱体と放熱体などの２つの部材間に配置されて使用されるとよい。発熱体は、バッテリなどの熱を発する電子部品が挙げられる。放熱体は、筐体や、ヒートシンク、冷却プレートなどの冷却部材が挙げられる。

[0094] ［用途］

本発明の硬化性組成物及び熱伝導性部材は、様々な用途に使用でき、例えば、リチウムイオンバッテリ（ＬｉＢ)アセンブリなどのバッテリアセンブリ、電力電子機器、電子パッケージング、ＬＥＤ、太陽電池、電気グリッドなどの各種の電子機器用途に使用できる。これらの中でも、好ましくはバッテリアセンブリに使用され、さらに好ましくはＬｉＢアセンブリに使用される。したがって、本発明の好ましい一実施形態では、上記した熱伝導性部材を備える、バッテリアセンブリを提供する。なお、ＬｉＢアッセンブリなどのバッテリアセンブリは、自動車向けに好ましくは使用できる。

[0095] バッテリアセンブリ用途において、本発明の硬化性組成物、及び熱伝導性部材は、バッテリアセンブリの間隙材に使用されることが好ましい。また、本発明の硬化性組成物、及び熱伝導性部材は、一態様において、バッテリモジュールに使用されることが好ましく、バッテリモジュールの間隙材に使用されることがより好ましい。以下、本発明の熱伝導性部材がバッテリモジュールに適用された例を説明する。

[0096] バッテリモジュールは、熱伝導性部材からなる間隙材と、複数のバッテリセルと、複数のバッテリセルを格納するモジュール筐体とを備え、間隙材は、モジュール筐体の内部に配置される。熱伝導性部材からなる間隙材は、バッテリセル相互間、及びバッテリセルとモジュール筐体間に充填されており、充填されている間隙材は、バッテリセル、及びモジュール筐体に密着する。これにより、バッテリセル間の間隙材は、バッテリセル相互間の離間状態を保持する機能を有している。また、バッテリセルとモジュール筐体との間の間隙材は、バッテリセルとモジュール筐体の双方に密着し、バッテリセルで発生する熱をモジュール筐体に伝える機能を有している。

[0097] 図３は、バッテリモジュールの具体的な構成を示す。図４は各バッテリセルの具体的な構成を示す。図３で示すように、バッテリモジュール１０の内部には、複数のバッテリセル１１が配置される。各バッテリセル１１は、可撓性の外装フィルム内にラミネートして封入したものであり、全体的な形状

は、高さや幅の大きさに比べて厚さが薄い偏平体である。こうしたバッテリセル１１は、図４で示すように、正極１１ａと負極１１ｂが外部に表れ、偏平面の中央部１１ｃは圧着された端部１１ｄよりも肉厚に形成されている。

[0098] 図３に示すように、各バッテリセル１１は、その偏平面同士が対向するように配置されている。図３の構成において、間隙材１３は、モジュール筐体１２の内部に格納される、複数のバッテリセル１１の全体を覆うようには充填されていない。間隙材１３は、モジュール筐体１２の内部の一部分（底側部分）に存在する間隙を満たすように充填されている。間隙材１３は、バッテリセル１１相互間、および、バッテリセル１１とモジュール筐体１２の間に充填され、この部分のバッテリセル１１の表面、および、モジュール筐体１２の内面と密着されている。

[0099] バッテリセル１１相互の間に充填される間隙材１３は、双方のバッテリセル１１の表面に接着されているが、間隙材１３自体は、適度の弾性と柔軟性を有することで、バッテリセル１１相互の間隔を変位する外力が印加されても、外力による歪み変形を緩和することができる。したがって、間隙材１３は、バッテリセル１１相互間の離間状態を保持する機能を有している。

バッテリセル１１とモジュール筐体１２の内面との間の間隙に充填されている間隙材１３も、バッテリセル１１の表面と、モジュール筐体１２の内面に、密に接着されている。その結果、バッテリセル１１の内部で発生する熱は、バッテリセル１１の表面に接着している間隙材１３を経由して、該間隙材１３の他の面により密着されているモジュール筐体１２の内面へと伝えられる。

[0100] バッテリモジール１０内への間隙材１３の形成は、一般的なディスペンサーを用いて、液状の硬化性組成物を塗布した後、その液状の硬化性組成物を硬化させることで行うとよい。また、本発明の硬化性組成物は、上記した通り、低粘度であるため、間隙材１３の形成時の作業性が良好になる。

間隙材１３を形成させる際、上記の通り２液型の硬化性組成物を使用することが好ましい。２液型は、保管が容易であるとともに、使用直前に混合す

ればディスペンサーで塗布する作業時には硬化し難く、塗布後は速やかに硬化させることができる。また、ディスペンサーでの塗布は、バッテリモジュール１０の筐体１２内の比較的奥深くまで、液状の硬化性組成物を充填させることができる点でも好ましい。

[0101] バッテリセル１１を覆う間隙材１３は、バッテリセル１１の一方側において、各バッテリセル１１の２０～４０％覆うことが好ましい。２０％以上とすることで、バッテリセル１１を安定的に保持することができる。また、発熱量が大きいバッテリセルを十分に覆うことで、放熱効率が良好となる。一方で、４０％以下とすることで、バッテリセル１１から発生する熱の放熱を効率的に行うことができ、重量増大や、作業性の悪化等も防げる。また、放熱効率を良好にするために、バッテリセル１１の電極１１ａ，１１ｂがある側を間隙材１３で覆うことが好ましく、電極１１ａ，１１ｂの全体を間隙材１３で覆うことがより好ましい。以上のとおり、バッテリモジュール１０は、バッテリセル１１から発生した熱を、間隙材１３を経由して、モジュール筐体１２に逃がすことができる。

[0102] 間隙材１３は、複数のバッテリモジュール１０を内部に備えるバッテリパックに使用することも好ましい。バッテリパックは、一般には、複数のバッテリモジュール１０と、該複数のバッテリモジュール１０を収容するバッテリパックの筐体とを備える。該バッテリパックにおいて、バッテリモジュール１０とバッテリパックの筐体との間に間隙材１３を設けることができる。これにより、上記のとおりモジュール筐体１２に逃がした熱をさらに、バッテリパックの筐体に逃がすことができ、効果的な放熱が可能となる。

[0103] また、以上の説明においては、バッテリアセンブリは、バッテリモジュールや、バッテリモジュールを備えるバッテリパックである例を説明したが、バッテリモジュールを有しないバッテリアセンブリに適用されてもよく、例えば、セルトゥパック構造を有するバッテリアセンブリに適用されることも好ましい。

[0104] セルトゥパック構造を有するバッテリアセンブリの模式図を図５に示す。

セルトゥパック構造を有するバッテリアセンブリ２０は、複数のバッテリセル２１と、バッテリパックの筐体を備え、バッテリパックの筐体を構成するベース部材２５に複数のバッテリセル２１が、熱伝導性部材（硬化性組成物の硬化物）からなる間隙材２３を介して接着されている。ベース部材２５は、クーリングプレートなどを構成してもよい。なお、バッテリアセンブリ２０における間隙材２３の形成は、上記バッテリモジュールにおける間隙材１３の形成と同様に行うとよく、例えば、一般的なディスペンサーを用いて行うとよい。本発明の硬化性組成物は、粘度が低いため、間隙材２３を形成するときの作業性も良好になる。また、本発明の硬化性組成物は、速硬化性を有しながらも、硬化初期においては圧縮荷重を低くでき、可使時間を長くできるので、セルトゥパック構造を有するバッテリアセンブリにおいても、ベース部材２５にバッテリセル２１を高い作業性で接着することができる。

実施例

[0105] 以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

[0106] ［各成分の粘度］

エポキシ樹脂、アミン化合物及びアクリレート化合物の粘度は、Ｅ型粘度計を使用して１０ｒｐｍ、２５℃の条件で測定した。上記Ｅ型粘度計としては、東機産業社製「ＴＶ－２２型」等を使用した。

[0107] ［接着試験］

硬化性組成物の硬化物の２５℃での接着強さは、以下の方法で測定した。まず、基材として幅２５ｍｍ、長さ１００ｍｍで厚み２ｍｍのＰＥＴ板（商品名「ＰＥＴ－６０１０」、タキロンシーアイ社製）を２枚用意した。そして、一方の基材の長手方向端部に、板幅全体にわたって５ｍｍ分の長さで硬化後の厚みが１ｍｍとなるように硬化性組成物を塗布した。その後、塗布した硬化性組成物の上にもう１枚の基材の長手方向端部を重ね、その状態で２５℃、５０％ＲＨ環境下で１６８時間放置することで、硬化性組成物を硬化させて測定サンプルを得た。測定サンプルは、２枚のＰＥＴ板が長さ５ｍｍ

分だけ幅全体にわたって重なり、その重なる部分でＰＥＴ板同士が硬化性組成物の硬化物（サイズ：２５ｍｍ×５ｍｍ、厚み１ｍｍ）を介して接着されて形成されたものであり、幅２５ｍｍ、長さ１９５ｍｍのサイズを有していた。得られた測定サンプルに対して、２５℃、５０％ＲＨ環境下で、引張速度１０ｍｍ／秒で測定サンプルの長手方向に破断まで引っ張る引張試験を行い、最大荷重を接着強さとした。

Ａ：１．５ＭＰａ以上

Ｂ：１．００ＭＰａ以上１．５ＭＰａ未満

Ｃ：１．００ＭＰａ未満

[0108] ［熱伝導率］

硬化性組成物の第１剤と第２剤の熱伝導率はＡＳＴＭ　Ｄ５４７０－０６に準拠した測定装置を用いて熱抵抗を測定する方法で求めた。

具体的には、発熱体側となる測定ダイを覆うように硬化性組成物を測定時の厚さより多めに配置し、その後放熱体で挟み込み、３０ｐｓｉの荷重で硬化性組成物の厚さが１．０ｍｍ、１．５ｍｍ、２．０ｍｍになるまで圧縮して各厚さの熱抵抗を測定した。厚さはスペーサーで調整することができる。これら３つの熱抵抗の値について、横軸が厚さ、縦軸が熱抵抗値のグラフを作成し、最小二乗法により３点の近似直線を求めた。そして、その近似直線の傾きが熱伝導率となる。

熱抵抗の測定は、８０℃にて行い、Ｌｏｎｇ　Ｗｉｎ　Ｓｃｉｅｎｃｅ　ａｎｄ　Ｔｅｃｈｎｏｌｏｇｙ　Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ製のＬＷ－９３８９により行った。また、測定ダイの面積は１インチ×１インチとした。

[0109] ［粘度］

第１剤及び第２剤それぞれの試料を、レオメータ（例えば、アントンパール社製のレオメータ「ＭＣＲ－３０２ｅ」）を用いて、サンプルの温度をペルチェプレートにて２５℃に調整し、φ２５ｍｍのパラレルプレートを用い、サンプルを設置して直ちにせん断速度０．０００１～１００（１／ｓ）の範囲で連続的にせん断速度を変化させながら測定した。粘度の値は、せん断

速度３．１６（１／ｓ）における粘度を測定値とした。なお、各試料の粘度は、サンプルを設置して１０分間静置した後に測定して以下の評価基準で評価した。

Ａ：５０Ｐａ・ｓ以下

Ｂ：５０Ｐａ・ｓ超３００Ｐａ・ｓ未満

Ｃ：３００Ｐａ・ｓ以上

[0110] ［工程接着強度］

基材として、２枚のＰＥＴ板の代わりに、２５ｍｍ×１００ｍｍ×厚さ２ｍｍのアルミニウム板及びガラス繊維強化ＰＥＴ基板を用意して、これらを硬化性組成物を介して重ねわせて、その状態で１８℃、２０％ＲＨ環境下で１時間放置することで、硬化性組成物を初期硬化させて測定サンプルを得た以外は、接着試験と同様にして測定サンプルを得た。得られた測定サンプルに対して、接着試験と同様に、測定サンプルの長手方向に破断まで引っ張る引張試験を行い、最大荷重を工程接着強度とした。工程接着強度を以下の評価基準で評価した。

Ａ：０．２５ＭＰａ以上

Ｂ：０．１ＭＰａ以上０．２５ＭＰａ未満

Ｃ：０．０５ＭＰａ以上０．１ＭＰａ未満

Ｄ：０．０５ＭＰａ未満

[0111] ［圧縮荷重］

大きさが５０ｍｍ×５０ｍｍ×厚さ１２μｍのアルミホイル上に、配合通りに調製した硬化性組成物を２ｇ置き、アルミホイルで包み３５℃の恒温槽に１０分入れて、測定サンプルを得た。その後、サンプルを載せずに荷重値が３．６ｋｇになるように測定箇所に治具を押し付け、そこから１０ｍｍ離した点を測定開始位置（ゼロ点）とした。下記に示す条件で測定サンプルの圧縮荷重を測定した。第１剤及び第２剤についても同様に測定した。

試験スピード：６０ｍｍ／秒

治具サイズ：３ｃｍφ

結果読み取り値：変位９．６２ｍｍの結果を圧縮荷重値とした。

試験環境：２５℃、５０％ＲＨ

得られた圧縮荷重の値より、以下の４段階で評価を行った。なお、圧縮荷重は、硬化初期における圧縮荷重を示すものであり、値が低いほど仮接着がしやすく、可使時間も長くなる傾向になる。

（評価基準）

ＡＡ：５００Ｎ以下

Ａ：８００Ｎ以下

Ｂ：８００Ｎ超１０００Ｎ以下

Ｃ：１０００Ｎ超１５００Ｎ以下

Ｄ：１５００Ｎ超

[0112] ［実施例１～８、比較例１～３］

表２の配合に従って、各成分を混合して第１剤及び第２剤を調製した。調整した第１及び第２剤を表２に記載の質量比（Ａ：Ｂ）で室温下で混合して硬化性組成物を得た。得られた硬化性組成物に対して物性測定及び評価試験を実施した。

[0113] 各実施例、比較例で使用した樹脂成分は、以下の表１に示す通りであった。

[表1]

化合物名	商品名	メーカー名	分子量	粘度（Pa･s）	当量又は活性水素当量(g/eq)	官能基数	内訳
ビスフェノールFエポキシ樹脂	jER806	三菱ケミカル	330	2.0	165	2	
トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル	EX321	ナガセケムテックス	280	0.1	140	2	
フェニルグリシジルエーテル	エポゴーセーML	四日市合成	150	0.008	220	1	
トリメチロールプロパントリアクリレート	TMPTA	ダイセル･オルネクス	296	0.1	95	3	
ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート	DPHA	ダイセル･オルネクス	579	6.9	86	6	
トリメチロールプロパンポリ(オキシプロピレン)トリアミン	T403	HUNTSMAN社	440	0.7	81	3	(-NH2)×3
ポリ(オキシプロピレン)ジアミン	D-230	HUNTSMAN社	230	0.1	58	2	(-NH2)×2
ポリ(オキシプロピレン)ジアミン	D-400	HUNTSMAN社	430	0.3	105	2	(-NH2)×2
メタキシレンジアミンとスチレンの1:1反応物	GASKAMINE328	三菱ガス化学	330	11.3	55	2	(-NH2)と(-NH-)
アミドアミン	TD960	DIC	-	75	77	-	(-NH,-NH2)
メタキシレンジアミン(MXDA)	MXDA	三菱ガス化学	136	0.01	34	2	(-NH2)×2

[0114] また、樹脂成分以外は、以下のとおりであった。

（分散剤）

高分子系分散剤（酸性基含有コポリマー）

（熱伝導性充填材）

水酸化アルミニウム１：平均粒径１μｍ

水酸化アルミニウム２：平均粒径１０μｍ

水酸化アルミニウム３：平均粒径５０μｍ

水酸化アルミニウム４：平均粒径１０５μｍ

[0115]

[表2]

				実施例1		実施例2		実施例3		実施例4		実施例5		実施例6		実施例7		実施例8		比較例1		比較例2		比較例3	
				第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤	第1剤	第2剤
配合（質量部）	エポキシ樹脂	ビスフェノールFエポキシ樹脂		5.8		8.1		9.3		4.3		4.3		5.8		2.8				5.8		5.8		5.8	
		トリメチロールプロパン ポリグリシジルエーテル															5.8								
		フェニルグリシジルエーテル		5.8		3.5		2.3		5.8		5.8		5.8		5.8		5.8		5.8		5.8		5.8	
	アクリレート	トリメチロールプロパントリアクリレート														8									
		ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート		5		5		5		6.5		6.5		5				5		5		5		5	
	アミン	トリメチロールプロパンポリ(オキシプロピレン)トリアミン			14.4		14.4		14.4								14.4		14.4				14.5		14.5
		ポリ(オキシプロピレン)ジアミン(D-230)									14.4														
		ポリ(オキシプロピレン)ジアミン(D-400)											14.4												
		メタキシレンジアミンとスチレンの1:1反応物												14.4											
		アミドアミン																			14.5				
	分散剤	高分子分散剤		0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
熱伝導性充填材		水酸化アルミニウム1		13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.3	13.1	13.4	13.1	13.4	13.1	13.4
		水酸化アルミニウム2		17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	18.0	17.5	18.0	17.5	18.0
		水酸化アルミニウム3		17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	17.8	17.5	18.0	17.5	18.0	17.5	18.0
		水酸化アルミニウム4		35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	35.6	35.1	36.0	35.1	36.0	35.1	36.0
	触媒	純水			1.0		1.0		1.0		1.0		1.0		1.0		1.0		1.0						
物性値	官能基の含有量		mmol/g	1.20	1.77	1.23	1.77	1.25	1.77	1.28	2.48	1.28	1.37	1.20	2.61	1.28	1.77	0.85	1.77	1.20	1.89	1.20	1.79	1.20	1.79
	混合比(質量比)			1:1		1:1		1:1		1:2		1:2		1:1		1:1		1:1		1:1		8.5:1.5		2:3	
	アクリレートの含有量		質量%	16.1%		16.1%		16.1%		14.3%		14.3%		16.1%		25.8%		16.1%		16.1%		26.1%		13.0%	
	アミンの含有量		質量%	46.4%		46.4%		46.4%		63.4%		63.4%		46.4%		46.4%		46.4%		46.7%		13.4%		56.7%	
	熱伝導性充填材の充填率		体積%	70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%		70.5%	
	アクリル官能基数／エポキシ官能基数			0.95		0.89		0.87		1.44		1.44		0.95		1.94		0.86		0.95		0.95		0.95	
	第1剤と第2剤を質量比1:1で混合した際の当量比			1.48		1.44		1.42		1.94		1.07		2.18		1.39		2.10		1.58		1.50		1.50	
接着試験		評価		A		B		A		A		A		A		A		A		A		C		C	
熱伝導率			W/m･K	1.7		2.7		3.7		2.7		2.7		1.7		1.7		1.7		1.7		1.7		1.7	
粘度		3.16/sec	Pa･s	150	190	220	190	290	196	150	50	150	50	145	1000	125	190	150	190	145	2500	145	190	145	190
		単体評価		B	B	B	B	B	B	B	A	B	A	B	C	B	B	B	B	B	C	B	B	B	B
圧縮荷重		単剤	N	178	196	334	196	486	196	186	46	186	62	178	1000	138	196	137	196	178	2286	178	196	178	196
		35℃ 10min	N	398		510		638		950		608		708		948		740		3720		448		4000	
		総合評価		AA		A		A		B		A		A		B		A		D		AA		D	
工程接着		接着力@18℃1h	MPa	0.23		0.28		0.35		0.1		0.12		0.1		0.35		0.3		0.58		0		0	
		総合評価		B		A		A		B		B		B		A		A		A		D		D	

※官能基の含有量は、第１剤においては、単位量（ｇ）あたりのエポキシ樹脂に含まれるエポキシ基の数及びアクリレート化合物に含まれる（メタ）アクリロイル基の数の合計である。第２剤においては、アミンに含まれるアミノ基の活性水素の数である。

※当量比は、第１剤と第２剤を質量比１：１で混合して得た硬化性組成物における、エポキシ樹脂及びアクリレート化合物に含まれるエポキシ基と（メタ）アクリロイル基の合計数に対する、アミンに含まれるアミノ基の活性水素の数の比である。

※表２において、第１および第２剤における配合は、合計が１００質量部となるように記載した。

[0116] 以上の各実施例では、エポキシ樹脂、熱伝導性充填材、アミン化合物、及び多官能アクリレート化合物を有する硬化性組成物において、特定のアミン化合物を所定量使用し、或いは、水を所定量含有させた。そのため、塗布して短時間経過した後において一定以上の接着強度（工程接着強度）を有しており、良好な速硬化性を有する一方で、圧縮荷重は低く、可使時間を長くすることができた。さらに、各実施例の硬化性組成物は、硬化前の粘度も低くすることができた。

それに対して、各比較例の硬化性組成物は、エポキシ樹脂、熱伝導性充填材、アミン化合物、及び多官能アクリレート化合物を有していたが、特定のアミン化合物を使用せず、また、特定のアミン化合物が特定の量含有していなかったため、圧縮荷重が高くなり可使時間を長くすることができなかった。

符号の説明

[0117] １０　バッテリモジュール

１１、２１　バッテリセル

１２　バッテリモジュールの筐体（モジュール筐体）

１３、２３　間隙材

２０　バッテリアセンブリ

２５　ベース部材

請求の範囲

[請求項1] エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含み、

前記アミン化合物（Ｘ）が、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍの粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有し、

前記アミン化合物（Ｘ）の含有量が、全樹脂成分に対して１５質量％以上５５質量％以下である、硬化性組成物。

[請求項2] 前記多官能アクリレート化合物の含有量が、全樹脂成分に対して２０質量％以下である、請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項3] 前記多官能アクリレート化合物の官能基数が３以上である、請求項１に記載に硬化性組成物。

[請求項4] 前記多官能アクリレート化合物の官能基数が６以上である、請求項１に記載に硬化性組成物。

[請求項5] レオメータで測定した２５℃における粘度が３００Ｐａ・ｓ以下である請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項6] 前記エポキシ樹脂が単官能エポキシ樹脂を含む、請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項7] 前記アミン化合物（Ｘ）が、オキシプロピレン構造を有する、請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項8] 硬化性組成物全量に対して０．３質量％以上２質量％以下の水を含む、請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項9] 前記アミン化合物（Ｘ）が、３つ以上のアミノ基を有するアミン化合物を含む請求項１記載の硬化性組成物。

[請求項10] 前記エポキシ樹脂及び前記多官能アクリレート化合物を含み、第１の容器に充填される第１剤と、前記アミン化合物（Ｘ）を含み、第２の容器に充填される第２剤により構成される、請求項１に記載の硬化性組成物。

[請求項11] レオメータで測定した２５℃における前記第１剤の粘度（Ｐａ・ｓ）と、前記第２剤の粘度（Ｐａ・ｓ）との差が１５０Ｐａ・ｓ以下である請求項１０に記載の硬化性組成物。

[請求項12] 前記第１剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）に対する、前記第２剤の官能基濃度（ｍｏｌ／ｇ）の比が１．３以上２．６以下である請求項１０に記載の硬化性組成物。

[請求項13] エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物と、水とを含み、

前記水の含有量が、硬化性組成物全量に対して０．３質量％以上２．０質量％以下である、硬化性組成物。

[請求項14] 請求項１０に記載の硬化性組成物が充填される容器セットであって、前記第１剤が充填される第１の容器と、前記第２剤が充填される第２の容器を含む、容器セット。

[請求項15] エポキシ樹脂と、熱伝導性充填材と、２つ以上のアミノ基を含むアミン化合物（Ｘ）と、多官能アクリレート化合物とを含み、

前記アミン化合物（Ｘ）が、Ｅ型粘度計で測定した２５℃、１０ｒｐｍの粘度が２０Ｐａ・ｓ以下であるか、もしくは、オキシアルキレン構造を有し、

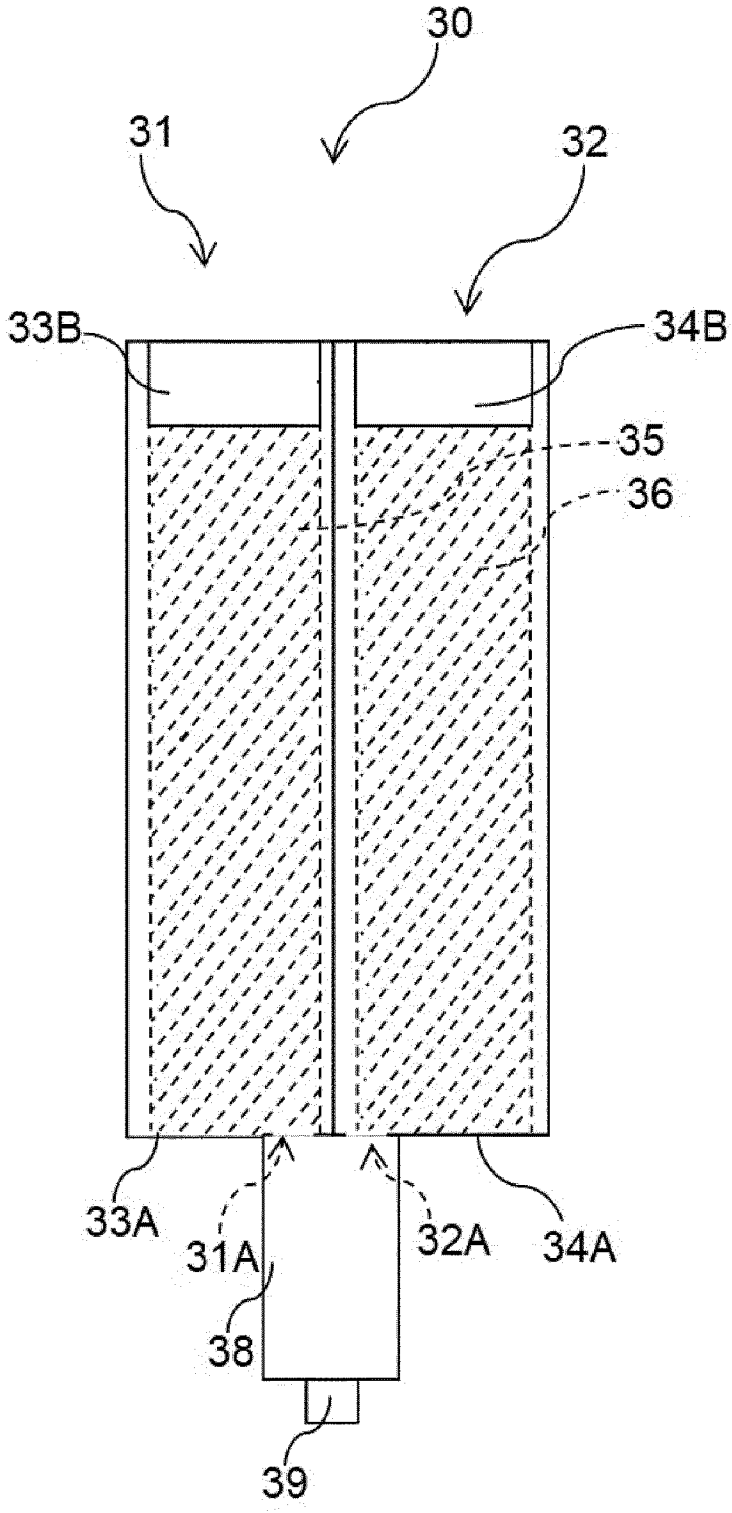
前記アミン化合物（Ｘ）の含有量が、全樹脂成分に対して１５質量％以上７０質量％以下であり、

前記アミン化合物（Ｘ）が２つのアミノ基を有するアミン化合物を含む、硬化性組成物。

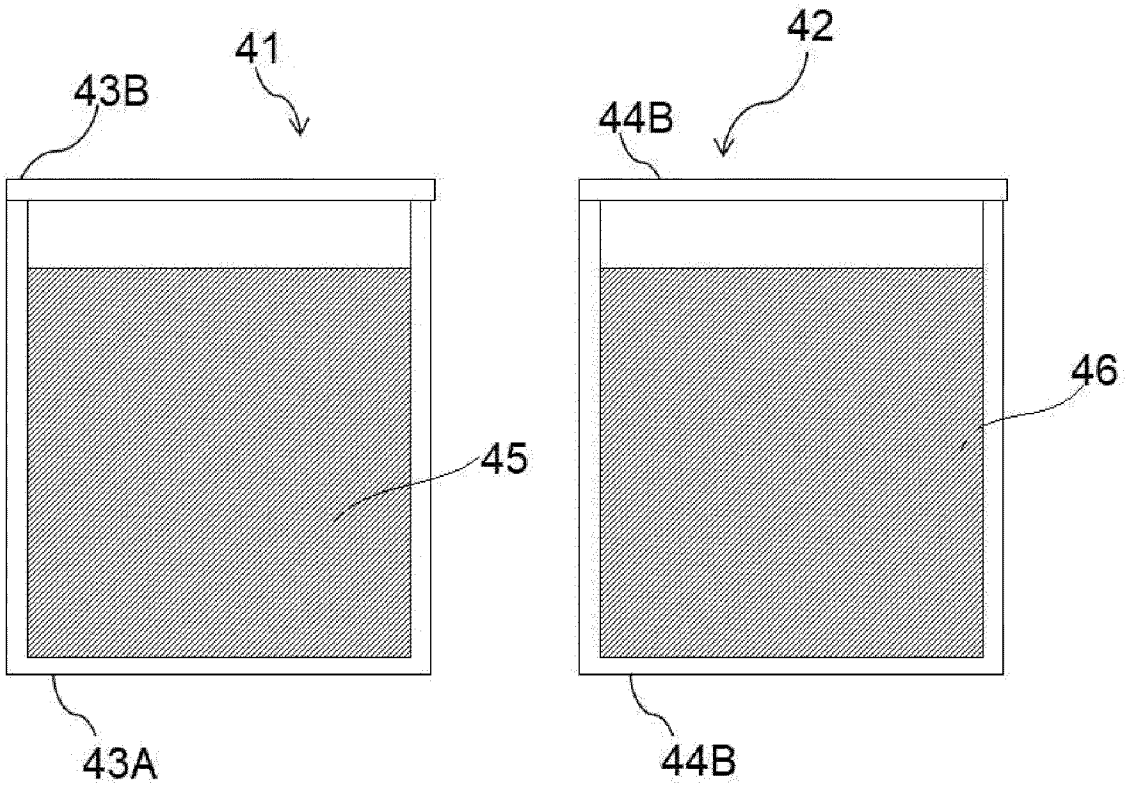
[請求項16] 請求項１～１３及び請求項１５のいずれか１項に記載の硬化性組成物の硬化物からなる、熱伝導性部材。

[請求項17] 請求項１６に記載の熱伝導性部材を備える、バッテリアセンブリ。

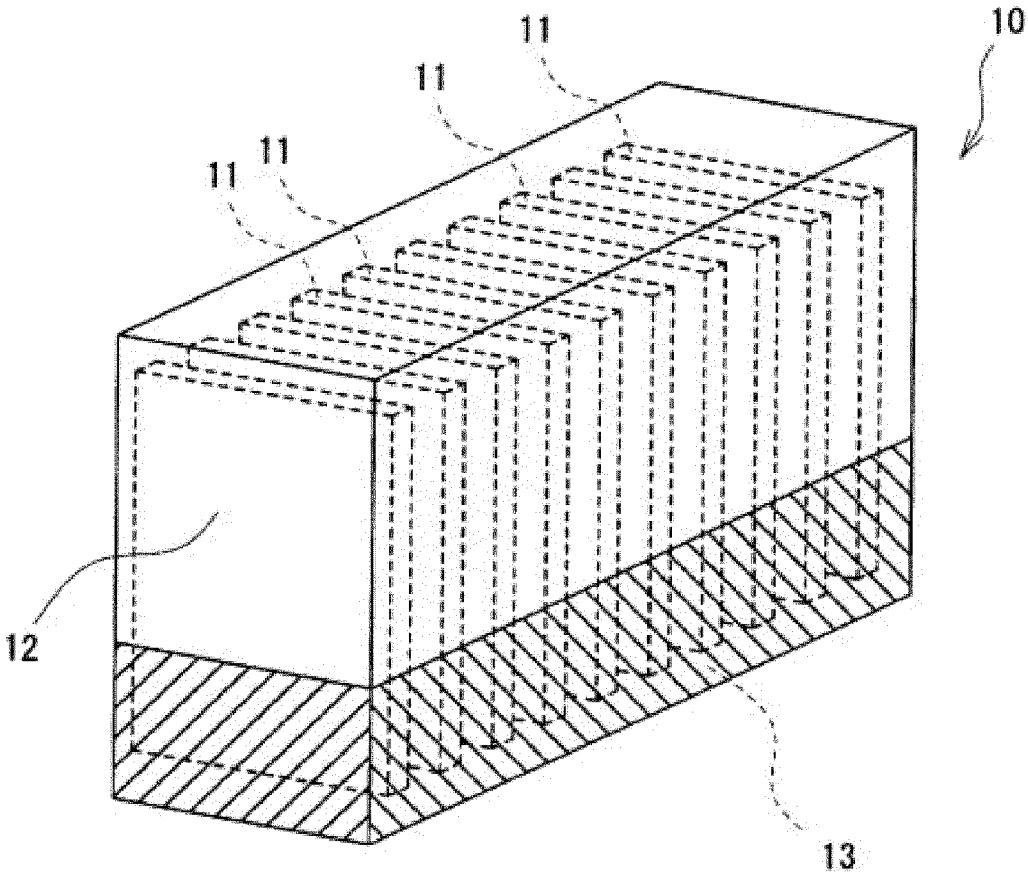
[図1]



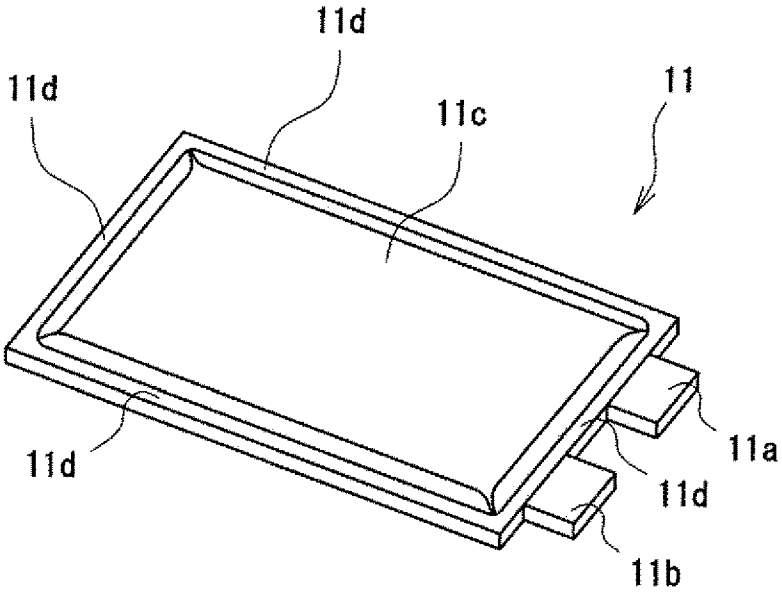
[図2]



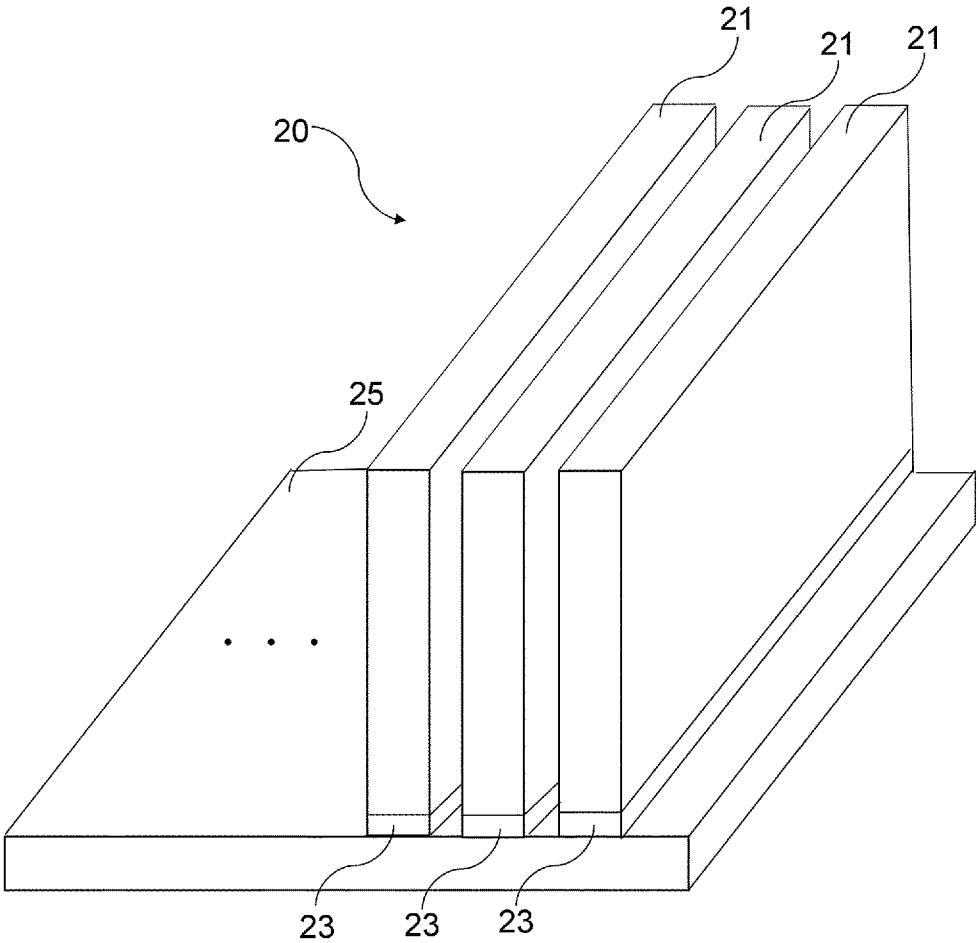
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/003193

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 63/00(2006.01)i; ***C08G 59/50***(2006.01)i; ***C08G 73/02***(2006.01)i; ***C08K 3/013***(2018.01)i; ***C08K 5/17***(2006.01)i; ***C08K 5/103***(2006.01)i; ***C09K 5/14***(2006.01)i; ***H01M 10/653***(2014.01)i
FI: C08L63/00 C; C08K5/17; C08K3/013; C08K5/103; C08G59/50; C09K5/14 E; H01M10/653; C08G73/02

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L63/00-63/10; C08G59/00-59/72; C08G73/00-73/26; C08K3/00-13/08; C09K5/00-5/20; H01M10/52-10/667

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-261722 A (JSR CORP.) 26 September 2001 (2001-09-26) claims, paragraphs [0017]-[0026], [0034], [0047]-[0049], [0052]	1-17
X	JP 2002-179769 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 26 June 2002 (2002-06-26) claims, paragraphs [0006]-[0027], [0035], examples ([table 1])	1-6, 10-12, 14-16
A		7-9, 13, 17
A	JP 2015-21118 A (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 02 February 2015 (2015-02-02) claims, paragraph [0002]	1-17
A	JP 2015-135805 A (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 27 July 2015 (2015-07-27) claims	1-17
A	JP 2011-195673 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 06 October 2011 (2011-10-06) claims	1-17

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
09 April 2024	**23 April 2024**

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/003193

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2018/079533 A1 (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 03 May 2018 (2018-05-03) claims	1-17

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/003193

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2001-261722 A	26 September 2001	(Family: none)	
JP 2002-179769 A	26 June 2002	(Family: none)	
JP 2015-21118 A	02 February 2015	(Family: none)	
JP 2015-135805 A	27 July 2015	WO 2015/093136 A1 CN 105814093 A	
JP 2011-195673 A	06 October 2011	(Family: none)	
WO 2018/079533 A1	03 May 2018	US 2019/0338171 A1 claims KR 10-2019-0057400 A CN 109890903 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/003193

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 63/00(2006.01)i; C08G 59/50(2006.01)i; C08G 73/02(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 5/17(2006.01)i; C08K 5/103(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i; H01M 10/653(2014.01)i
FI: C08L63/00 C; C08K5/17; C08K3/013; C08K5/103; C08G59/50; C09K5/14 E; H01M10/653; C08G73/02

B.　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L63/00-63/10; C08G59/00-59/72; C08G73/00-73/26; C08K3/00-13/08; C09K5/00-5/20; H01M10/52-10/667

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４年

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

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2001-261722 A (ジェイエスアール株式会社) 26.09.2001 (2001-09-26) 特許請求の範囲、［００１７］－［００２６］、［００３４］、［００４７］－［００４９］、［００５２］	1-17
X	JP 2002-179769 A (日立化成工業株式会社) 26.06.2002 (2002-06-26) 特許請求の範囲、［０００６］－［００２７］、［００３５］、実施例（［表１］）	1-6, 10-12, 14-16
A		7-9, 13, 17
A	JP 2015-21118 A (スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー) 02.02.2015 (2015-02-02) 特許請求の範囲、［０００２］	1-17
A	JP 2015-135805 A (日立化成株式会社) 27.07.2015 (2015-07-27) 特許請求の範囲	1-17
A	JP 2011-195673 A (積水化学工業株式会社) 06.10.2011 (2011-10-06) 特許請求の範囲	1-17

☑ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

*　引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
09.04.2024	23.04.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
佐藤　のぞみ 4W 4513
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/003193

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2018/079533 A1 (住友ベークライト株式会社) 03.05.2018 (2018-05-03) 請求の範囲	1-17

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/003193

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2001-261722 A	26.09.2001	（ファミリーなし）	
JP 2002-179769 A	26.06.2002	（ファミリーなし）	
JP 2015-21118 A	02.02.2015	（ファミリーなし）	
JP 2015-135805 A	27.07.2015	WO 2015/093136 A1 CN 105814093 A	
JP 2011-195673 A	06.10.2011	（ファミリーなし）	
WO 2018/079533 A1	03.05.2018	US 2019/0338171 A1 特許請求の範囲 KR 10-2019-0057400 A CN 109890903 A	