

(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
2020年8月6日(06.08.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/158574 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/20 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
C08G 59/62 (2006.01) *C08K 3/00* (2018.01)
H01L 23/36 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/002344
- (22) 国際出願日: 2020年1月23日(23.01.2020)
- (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 2019-016327 2019年1月31日(31.01.2019) JP
- (71) 出願人: 富士フイルム株式会社 (FUJIFILM CORPORATION) [JP/JP]; 〒1068620 東京都港区西麻布2丁目2番30号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 人見 誠一 (HITOMI Seiichi); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 林 大介 (HAYASHI Daisuke); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). ▲高▼橋 慶太 (TAKAHASHI Keita); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 新居 輝樹 (NIORI Teruki); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 中島 順子, 外 (NAKASHIMA Junko et al.); 〒2500111 神奈川県南足柄市竹松1250番地 F F T P M O 棟 6 F Kanagawa (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: COMPOSITION FOR HEAT CONDUCTIVE MATERIALS, HEAT CONDUCTIVE MATERIAL, HEAT CONDUCTIVE SHEET, AND DEVICE WITH HEAT CONDUCTIVE LAYER

(54) 発明の名称: 熱伝導材料形成用組成物、熱伝導材料、熱伝導シート、熱伝導層付きデバイス

(57) Abstract: The present invention provides a composition for heat conductive materials, which enables the achievement of a heat conductive material that exhibits excellent heat conductivity. The present invention also provides: a heat conductive material which is formed from this composition for heat conductive materials; a heat conductive sheet; and a device with a heat conductive layer. A composition for heat conductive materials according to the present invention contains a phenolic compound, an epoxy compound and an inorganic substance, while satisfying at least one of the following requirements: the phenolic compound contains a spirophenol compound; and the epoxy compound contains a spiroepoxy compound.

(57) 要約: 熱伝導性に優れた熱伝導材料を与え得る熱伝導材料形成用組成物を提供する。上熱伝導材料形成用組成物により形成される熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイスを提供する。熱伝導材料形成用組成物は、フェノール化合物、エポキシ化合物、及び、無機物を含む熱伝導材料形成用組成物であって、フェノール化合物が、スピロフェノール化合物を含むか、エポキシ化合物が、スピロエポキシ化合物を含むかの、少なくとも一方を満たす。



WO 2020/158574 A1

明 細 書

発明の名称：

熱伝導材料形成用組成物、熱伝導材料、熱伝導シート、熱伝導層付きデバイス

技術分野

[0001] 本発明は、熱伝導材料形成用組成物、熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイスに関する。

背景技術

[0002] パーソナルコンピュータ、一般家電、及び自動車等の様々な電気機器に用いられているパワー半導体デバイスは、近年、小型化が急速に進んでいる。小型化に伴い高密度化されたパワー半導体デバイスから発生する熱の制御が困難になっている。

このような問題に対応するため、パワー半導体デバイスからの放熱を促進する熱伝導材料が用いられている。

例えば、特許文献1には「窒化ホウ素粒子（A）とエポキシ樹脂（B）とフェノール樹脂（C）とを含有する熱硬化性接着剤からなる…絶縁樹脂層を通じて放熱させるべく用いられる…放熱用部材。（請求項1）」が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2013-89670号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明者らは、特許文献1に記載された絶縁樹脂層について検討したところ、熱伝導性について改善の余地があることを知見した。

[0005] そこで、本発明は、熱伝導性に優れた熱伝導材料を与え得る熱伝導材料形

成用組成物を提供することを課題とする。

また、本発明は、上記熱伝導材料形成用組成物により形成される熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイス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

[0006] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、以下の構成により上記課題が解決できることを見出した。

[0007] [1]

フェノール化合物、エポキシ化合物、及び、無機物を含む熱伝導材料形成用組成物であって、

上記フェノール化合物が、フェノール性水酸基及びスピロ構造を有するスピロフェノール化合物を含むか、

上記エポキシ化合物が、エポキシ基及びスピロ構造を有するスピロエポキシ化合物を含むかの、少なくとも一方を満たす、熱伝導材料形成用組成物。

[2]

スピロフェノール化合物を含む、[1]に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[3]

スピロフェノール化合物を含み、上記スピロフェノール化合物が、後述する一般式(1)で表される化合物である、[1]又は[2]に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[4]

スピロフェノール化合物を含み、上記スピロフェノール化合物が、後述する一般式(2)で表される化合物である、[1]～[3]のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

[5]

上記スピロフェノール化合物の水酸基含有量が、 6.5 mmol/g 以上である、[1]～[4]のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔6〕

上記スピロフェノール化合物の分子量が、400以下である、〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔7〕

上記無機物が、無機窒化物を含む、〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔8〕

上記無機窒化物が、窒化ホウ素を含む、〔7〕に記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔9〕

更に、上記無機物の表面修飾剤を含む、〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔10〕

上記表面修飾剤が、縮環骨格又はトリアジン骨格を有する、〔9〕に記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔11〕

更に、硬化促進剤を含む、〔1〕～〔10〕のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物。

〔12〕

〔1〕～〔11〕のいずれかに記載の熱伝導材料形成用組成物を硬化して得られる、熱伝導材料。

〔13〕

〔12〕に記載の熱伝導材料からなる、熱伝導シート。

〔14〕

デバイスと、上記デバイス上に配置された〔13〕に記載の熱伝導シートを含む熱伝導層とを有する、熱伝導層付きデバイス。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、熱伝導性に優れた熱伝導材料を与え得る熱伝導材料形成

用組成物を提供できる。

また、本発明によれば、上記熱伝導材料形成用組成物により形成される熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイスを提供できる。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の熱伝導材料形成用組成物、熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイスについて詳細に説明する。

以下に記載する構成要件の説明は、本発明の代表的な実施態様に基づいてなされる場合があるが、本発明はそのような実施態様に制限されない。

なお、本明細書において、「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

また、本明細書において、エポキシ基は、オキシラニル基とも呼ばれる官能基であり、例えば、飽和炭化水素環基の隣接する炭素原子2つがオキシ基（ $-O-$ ）により結合してオキシラン環を形成している基等もエポキシ基に含む。エポキシ基は、可能な場合、置換基（メチル基等）を有していてもよいし有していなくてもよい。

[0010] また、本明細書において、「（メタ）アクリロイル基」との記載は、「アクリロイル基及びメタクリロイル基のいずれか一方又は双方」の意味を表す。また、「（メタ）アクリルアミド基」との記載は、「アクリルアミド基及びメタクリルアミド基のいずれか一方又は双方」の意味を表す。

[0011] 本明細書において、酸無水物基は、1価の基であってもよく、2価の基であってもよい。なお、酸無水物基が1価の基を表す場合、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ピロメリット酸、及び、無水トリメリット酸等の酸無水物から任意の水素原子を除いて得られる置換基が挙げられる。また、酸無水物基が2価の基を表す場合、 $*-CO-O-CO-*$ で表される基を意図する（*は結合位置を表す）。

[0012] なお、本明細書において、置換または無置換を明記していない置換基等については、可能な場合、目的とする効果を損なわない範囲で、その基に更に置換基（例えば、後述する置換基群Y）を有していてもよいし、有していな

くてもよい。例えば、「アルキル基」という表記は、目的とする効果を損なわない範囲で、置換又は無置換のアルキル基を意味する。

なお、本明細書において「してもよい」又は「でもよい」等の表現は、「してもよい」又は「でもよい」等とされた条件を満たしてもよく、満たさなくてもよいことを意図する。例えば、「置換基を有していてもよい」とは、「置換基を有さなくてもよい」ことを含む。

また、本明細書において、「置換基を有していてもよい」という場合の置換基の種類、置換基の位置、及び置換基の数は特に制限されない。置換基の数は例えば、1個、又は、2個以上が挙げられる。

置換基の例としては水素原子を除く1価の非金属原子団が挙げられ、例えば、以下の置換基群Yから選択できる。

本明細書において、ハロゲン原子としては、例えば、塩素原子、フッ素原子、臭素原子、及び、ヨウ素原子が挙げられる。

[0013] 置換基群Y：

ハロゲン原子（-F、-Br、-Cl、-I等）、水酸基、アミノ基、カルボン酸基及びその共役塩基基、無水カルボン酸基、シアネートエステル基、不飽和重合性基、エポキシ基、オキセタニル基、アジリジニル基、チオール基、イソシアネート基、チオイソシアネート基、アルデヒド基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルジチオ基、アリールジチオ基、N-アルキルアミノ基、N,N-ジアルキルアミノ基、N-アリールアミノ基、N,N-ジアリールアミノ基、N-アルキル-N-アリールアミノ基、アシルオキシ基、カルバモイルオキシ基、N-アルキルカルバモイルオキシ基、N-アリールカルバモイルオキシ基、N,N-ジアルキルカルバモイルオキシ基、N,N-ジアリールカルバモイルオキシ基、N-アルキル-N-アリールカルバモイルオキシ基、アルキルスルホキシ基、アリールスルホキシ基、アシルチオ基、アシルアミノ基、N-アルキルアシルアミノ基、N-アリールアシルアミノ基、ウレイド基、N'-アルキルウレイド基、N',N'-ジアルキルウレイド基、N'-アリールウレ

イド基、N' , N' -ジアリールウレイド基、N' -アルキル-N' -ア
リールウレイド基、N-アルキルウレイド基、N-アリールウレイド基、N'
-アルキル-N-アルキルウレイド基、N' -アルキル-N-アリールウレ
イド基、N' , N' -ジアルキル-N-アルキルウレイド基、N' , N' -
ジアルキル-N-アリールウレイド基、N' -アリール-N-アルキルウレ
イド基、N' -アリール-N-アリールウレイド基、N' , N' -ジアリ
ール-N-アルキルウレイド基、N' , N' -ジアリール-N-アリールウレ
イド基、N' -アルキル-N' -アリール-N-アルキルウレイド基、N'
-アルキル-N' -アリール-N-アリールウレイド基、アルコキシカルボ
ニルアミノ基、アリーロキシカルボニルアミノ基、N-アルキル-N-アル
コキシカルボニルアミノ基、N-アルキル-N-アリーロキシカルボニルア
ミノ基、N-アリール-N-アルコキシカルボニルアミノ基、N-アリール
-N-アリーロキシカルボニルアミノ基、ホルミル基、アシル基、アルコキ
シカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、カルバモイル基、N-アルキ
ルカルバモイル基、N, N-ジアルキルカルバモイル基、N-アリールカル
バモイル基、N, N-ジアリールカルバモイル基、N-アルキル-N-アリ
ールカルバモイル基、アルキルスルフィニル基、アリールスルフィニル基、
アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、スルホ基 (-SO₃H) 及び
その共役塩基基、アルコキシスルホニル基、アリーロキシスルホニル基、ス
ルフィナモイル基、N-アルキルスルフィナモイル基、N, N-ジアルキル
スルフィナモイル基、N-アリールスルフィナモイル基、N, N-ジアリ
ールスルフィナモイル基、N-アルキル-N-アリールスルフィナモイル基、
スルファモイル基、N-アルキルスルファモイル基、N, N-ジアルキルス
ルファモイル基、N-アリールスルファモイル基、N, N-ジアリールスル
ファモイル基、N-アルキル-N-アリールスルファモイル基、N-アシル
スルファモイル基及びその共役塩基基、N-アルキルスルホニルスルファモ
イル基 (-SO₂NHSO₂ (a l k y l)) 及びその共役塩基基、N-アリ
ールスルホニルスルファモイル基 (-SO₂NHSO₂ (a r y l)) 及びそ

の共役塩基基、N-アルキルスルホニルカルバモイル基 ($-\text{CONHSO}_2(\text{alkyl})$) 及びその共役塩基基、N-アリールスルホニルカルバモイル基 ($-\text{CONHSO}_2(\text{aryl})$) 及びその共役塩基基、アルコキシシリル基 ($-\text{Si}(\text{Oalkyl})_3$)、アリーロキシシリル基 ($-\text{Si}(\text{Oaryl})_3$)、ヒドロキシシリル基 ($-\text{Si}(\text{OH})_3$) 及びその共役塩基基、ホスホノ基 ($-\text{PO}_3\text{H}_2$) 及びその共役塩基基、ジアルキルホスホノ基 ($-\text{PO}_3(\text{alkyl})_2$)、ジアリールホスホノ基 ($-\text{PO}_3(\text{aryl})_2$)、アルキルアリーールホスホノ基 ($-\text{PO}_3(\text{alkyl})(\text{aryl})$)、モノアルキルホスホノ基 ($-\text{PO}_3\text{H}(\text{alkyl})$) 及びその共役塩基基、モノアリーールホスホノ基 ($-\text{PO}_3\text{H}(\text{aryl})$) 及びその共役塩基基、ホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3\text{H}_2$) 及びその共役塩基基、ジアルキルホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3(\text{alkyl})_2$)、ジアリールホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3(\text{aryl})_2$)、アルキルアリーールホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3(\text{alkyl})(\text{aryl})$)、モノアルキルホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3\text{H}(\text{alkyl})$) 及びその共役塩基基、モノアリーールホスホノオキシ基 ($-\text{OPO}_3\text{H}(\text{aryl})$) 及びその共役塩基基、シアノ基、ニトロ基、アリーール基、アルケニル基、アルキニル基、及びアルキル基。

また、これらの置換基は、可能であるならば置換基同士、又は置換している基と結合して環を形成してもよいし、していなくてもよい。

[0014] [組成物]

本発明の熱伝導材料形成用組成物（以下、単に「組成物」とも言う）は、フェノール化合物、エポキシ化合物、及び、無機物を含む組成物である。

更に、上記フェノール化合物が、フェノール性水酸基及びスピロ構造を有するスピロフェノール化合物を含むか、

上記エポキシ化合物が、エポキシ基及びスピロ構造を有するスピロエポキシ化合物を含むかの、少なくとも一方を満たす。

上記のような構成で本発明の課題が解決されるメカニズムは必ずしも明らかではないが、本発明者らは、組成物に含まれるスピロフェノール化合物及

び／又はスピロエポキシ化合物によって、熱伝導材料中に剛直なスピロ構造が導入されたことが、得られる熱伝導材料の熱伝導性の向上に寄与している、と推測している。

また、本発明の組成物から得られる熱伝導材料には良好な絶縁性（電気絶縁性）も付与できる。

以下、熱伝導材料の熱伝導性及び／又は絶縁性が優れることを、本発明の効果が優れるとも言う。

[0015] 以下、組成物に含まれる成分について詳述する。

[0016] [スピロ化合物]

本発明の組成物は、フェノール化合物及びエポキシ化合物を含み、上記フェノール化合物が、フェノール性水酸基及びスピロ構造を有するスピロフェノール化合物を含むか、上記エポキシ化合物が、エポキシ基及びスピロ構造を有するスピロエポキシ化合物を含むかの、少なくとも一方を満たす。

言い換えると、本発明の組成物は、上記フェノール化合物及び上記エポキシ化合物を含み、上記フェノール化合物及び上記エポキシ化合物のうち、少なくとも一方がスピロ化合物を含む。

つまり、本発明の組成物は、スピロフェノール化合物及びスピロエポキシ化合物の少なくとも一方を含む。

本発明の効果がより優れる点から、本発明の組成物は、少なくともスピロフェノール化合物を含むのが好ましい。

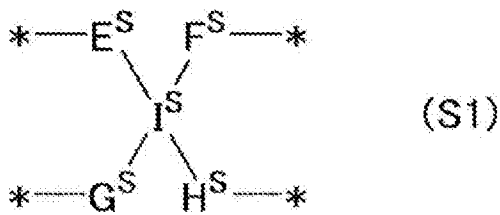
[0017] スピロ化合物とは、2個の環が、1個の原子（好ましくは炭素原子）のみを共有している構造を有する化合物である。

2個の環が共有する1個の原子をスピロ原子とも言う。

本発明の効果がより優れる点から、本発明においてスピロ化合物（スピロフェノール化合物及び／又はスピロエポキシ化合物）は、下記一般式（S 1）で表される基を有するのが好ましい。

[0018]

[化1]



[0019] 一般式 (S1) 中、*は結合位置を表す。

E^S 、 F^S 、 G^S 、及び、 H^S は、それぞれ独立に、 $-O-$ 、 $-S-$ 、又は、 I^S と直接結合する原子が炭素原子である基 ($-CH_2-$ 、又は、芳香族炭化水素基等) を表す。

中でも、 E^S 及び H^S は、 $-O-$ 、又は、 I^S と直接結合する原子が炭素原子である基が好ましい。

F^S 及び G^S は、 I^S と直接結合する原子が炭素原子である基が好ましい。

I^S は、スピロ原子である炭素原子を表す。

なお、一般式 (S1) で表される基を有するスピロ化合物においては、 F^S と G^S とを有する環と、 F^S と H^S とを有する環とが、スピロ原子として I^S を共有する。

[0020] [フェノール化合物]

本発明の組成物はフェノール化合物を含む。フェノール化合物は、フェノール性水酸基を少なくとも1個以上 (好ましくは2~10個、より好ましくは2~4個、更に好ましくは4個) 有する化合物である。

フェノール化合物は、エポキシ基を有さないのが好ましい。

[0021] <スピロフェノール化合物>

フェノール化合物は、スピロフェノール化合物を含んでよい。

特に、エポキシ化合物がスピロエポキシ化合物を含まない場合、フェノール化合物は、スピロフェノール化合物を必ず含む。

フェノール化合物がスピロフェノール化合物を含む場合、スピロフェノール化合物の含有量は、全フェノール化合物に対して、5質量%以上が好ましく、20質量%以上がより好ましく、50質量%以上が更に好ましく、85

質量%以上が特に好ましい。上限は、100質量%である。

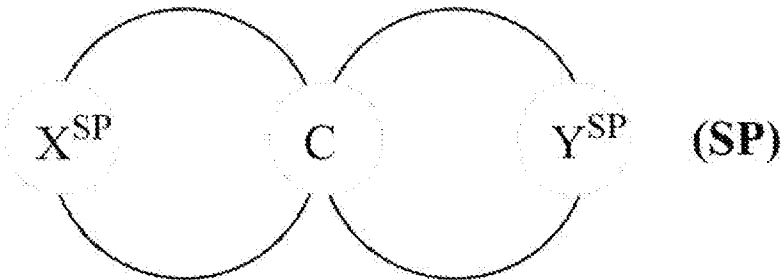
スピロフェノール化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

[0022] スピロフェノール化合物は、スピロ化合物であって、フェノール性水酸基を1個以上（好ましくは2～10個、より好ましくは2～4個、更に好ましくは4個）有する化合物である。

[0023] (一般式 (SP))

本発明の効果がより優れる点から、スピロフェノール化合物は、一般式 (SP) で表される化合物であるのが好ましい。

[0024] [化2]

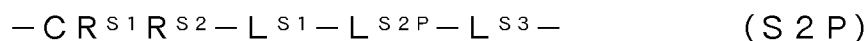


[0025] 一般式 (SP) 中、Cはスピロ原子である炭素原子を表す。

一般式 (SP) 中、X^{SP}及びY^{SP}は、それぞれ独立に、フェノール性水酸基を1個以上有する2価の連結基を表す。

X^{SP}の両末端では、それぞれ同一の炭素原子Cと結合している。Y^{SP}の両末端では、それぞれ同一の炭素原子Cと結合している。また、X^{SP}が両末端で結合する炭素原子Cと、Y^{SP}が両末端で結合する炭素原子Cとは同一であり、一般式 (SP) で表される化合物は、上記炭素原子Cをスピロ原子とするスピロ化合物である。

[0026] X^{SP}及びY^{SP}は、それぞれ独立に、一般式 (S2P) で表される基であるのが好ましい。



なお、X^{SP}における一般式 (S2P) で表される基と、Y^{SP}における一般式 (S2P) で表される基とは、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0027] 一般式 (S 2 P) 中、 R^{S1} 及び R^{S2} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

中でも、 R^{S1} 及び R^{S2} は、水素原子が好ましい。

[0028] 一般式 (S 2 P) 中、 L^{S1} は、 $-CR^{S3}R^{S4}-$ 、 $-O-$ 、又は、 $-S-$ を表す。

R^{S3} 及び R^{S4} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

R^{S3} 及び R^{S4} の置換基としては、それぞれ独立に、アルキル基又はアリール基が好ましい。

上記アルキル基は直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は 1 ~ 6 が好ましい。

上記アリール基としては、単環でも多環でもよい。上記アリール基の炭素数としては、6 ~ 15 が好ましく、6 がより好ましい。

中でも、 L^{S1} は、 $-CR^{S3}R^{S4}-$ が好ましく、 $-C(CH_3)_2-$ がより好ましい。

[0029] 一般式 (S 2 P) 中、 L^{S2P} は、フェノール性水酸基を有する 2 価の連結基を表す。

L^{S2P} は、置換基としてフェノール性水酸基を有する芳香環基、又は、 $-CR^{S5P}R^{S6P}-$ が好ましい。

[0030] 上記置換基としてフェノール性水酸基を有する芳香環基における芳香環基は、単環でも多環でもよい。上記芳香環基は、芳香族炭化水素基でも芳香族複素環基でもよい。上記芳香環基の炭素数は、6 ~ 15 が好ましく、6 がより好ましい。

上記芳香環基が置換基として有するフェノール性水酸基の数は、1 以上であり、1 ~ 5 が好ましく、1 ~ 2 がより好ましい。上記芳香環基は、水酸基 (フェノール性水酸基) 以外にも置換基 (好ましくは炭素数 1 ~ 3 のアルキル基) を有していてもよい。

上記置換基としてフェノール性水酸基を有する芳香環基は、置換基として 1 個又は 2 個の水酸基を有するベンゼン環基が好ましく、置換基として 1 個

又は2個の水酸基を有する1, 2-ベンゼンジイル基がより好ましい。

[0031] $-CR^{S5P}R^{S6P}-$ における R^{S5P} は、水素原子又は置換基を表す。

$-CR^{S5P}R^{S6P}-$ における R^{S6P} は、置換基として水酸基を有するアリール基を表す。

上記置換基として水酸基を有するアリール基におけるアリール基としては、単環でも多環でもよい。上記アリール基の炭素数としては、6~15が好ましく、6がより好ましい。

上記置換基として水酸基を有するアリール基における、置換基としての水酸基の数は、1以上であり、1~5が好ましく、1~2がより好ましい。上記置換基として水酸基を有するアリール基におけるアリール基は、水酸基（フェノール性水酸基）以外にも置換基を有していてもよい。

上記置換基として水酸基を有するアリール基は、ヒドロキシフェニル基が好ましく、4-ヒドロキシフェニル基がより好ましい。

[0032] 中でも、 L^{S2P} は、置換基としてフェノール性水酸基を有する芳香環基が好ましく、置換基として1個又は2個の水酸基を有するベンゼン環基がより好ましく、置換基として1個又は2個の水酸基を有する1, 2-ベンゼンジイル基が更に好ましい。

[0033] 一般式(S2P)中、 L^{S3} は、単結合、アルキレン基、 $-O-$ 、又は、 $-S-$ を表す。

上記アルキレン基は直鎖状でも分岐鎖状でもよく、直鎖状が好ましい。

上記アルキレン基の炭素数は1~6が好ましく、1~3がより好ましい。

上記アルキレン基として $-C(CH_3)_2-$ 、又は、 $-CH_2-CH_2-$ が好ましい。

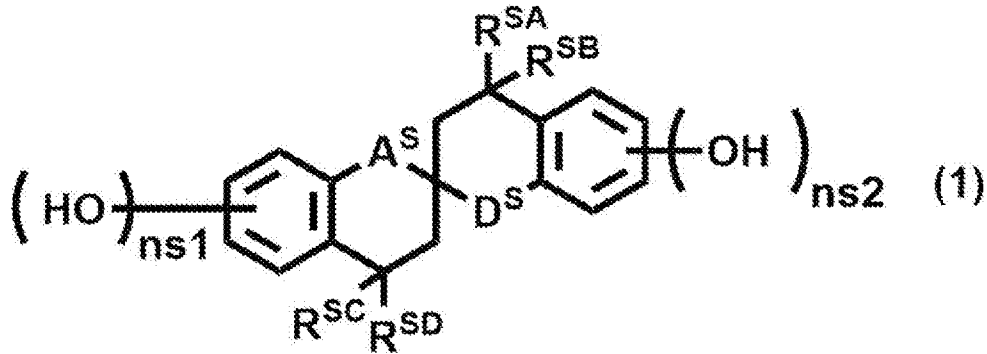
中でも、 L^{S3} は、 $-O-$ が好ましい。

[0034] (一般式(1))

本発明の効果がより優れる点から、スピロフェノール化合物は、一般式(1)で表される化合物であるのがより好ましい。

[0035]

[化3]



[0036] 一般式(1)中、 $ns1$ 及び $ns2$ は、それぞれ独立に、1~4の整数を表す。

$ns1$ 及び $ns2$ は、それぞれ独立に、1~2が好ましく、2がより好ましい。

[0037] 一般式(1)中、 A^S 及び D^S は、それぞれ独立に、 $-CR^{Sx}R^{Sy}-$ 、 $-O-$ 、又は、 $-S-$ を表す。

R^{Sx} 及び R^{Sy} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

R^{Sx} 及び R^{Sy} の置換基としては、それぞれ独立に、アルキル基又はアリール基が好ましい。

上記アルキル基は直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は1~6が好ましい。

上記アリール基としては、単環でも多環でもよい。上記アリール基の炭素数としては、6~15が好ましく、6がより好ましい。上記アリール基が有していてもよい置換基としては、例えば、水酸基が挙げられる。

[0038] 一般式(1)中、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、又は、アリール基を表す。

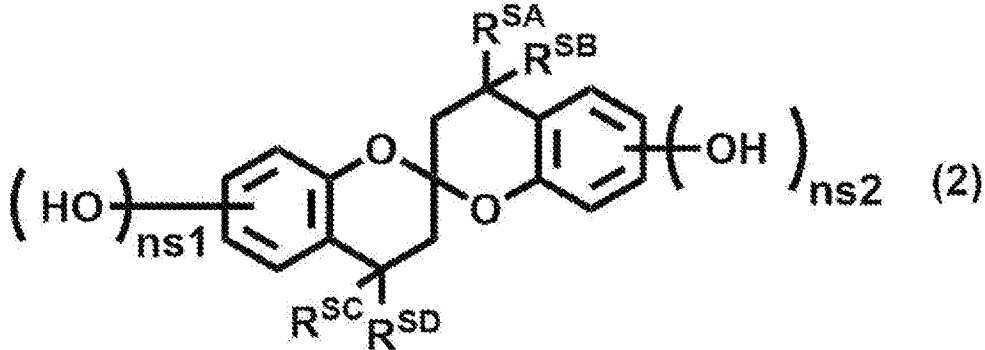
上記アルキル基は直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は1~6が好ましい。

上記アリール基としては、単環でも多環でもよい。上記アリール基の炭素数としては、6~15が好ましく、6がより好ましい。上記アリール基が有していてもよい置換基としては、例えば、水酸基が挙げられる。

[0039] (一般式(2))

本発明の効果がより優れる点から、スピロフェノール化合物は、一般式(2)で表される化合物であるのが更に好ましい。

[0040] [化4]



[0041] 一般式(2)中の、 $ns1$ 、 $ns2$ 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、一般式(1)中の $ns1$ 、 $ns2$ 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} とそれぞれ同様である。

[0042] 本発明の効果がより優れる点から、スピロフェノール化合物の分子量の下限は、200以上が好ましく、300以上が好ましく、350以上が更に好ましい。上限は、600以下が好ましく、400以下がより好ましい。

[0043] 本発明の効果がより優れる点から、スピロフェノール化合物の水酸基含有量(好ましくはフェノール性水酸基含有量)の下限は、4.0 mmol/g以上が好ましく、6.5 mmol/g以上がより好ましく、8.0 mmol/g以上が更に好ましい。上限は、25.0 mmol/g以下が好ましく、11.5 mmol/g以下が更に好ましい。

なお、上記水酸基含有量は、フェノール化合物1gが有する、水酸基(好ましくはフェノール性水酸基)の数を意図する。

また、スピロフェノール化合物は、水酸基以外にも、エポキシ基と重合反応できる活性水素含有基(カルボン酸基等)を有していてもよい。フェノール化合物の活性水素の含有量(水酸基及びカルボン酸基等における水素原子の合計含有量)の下限は、4.0 mmol/g以上が好ましく、6.5 mmol/g以上がより好ましく、8.0 mmol/g以上が更に好ましい。上

限は、25.0 mmol/g以下が好ましく、11.5 mmol/g以下が更に好ましい。

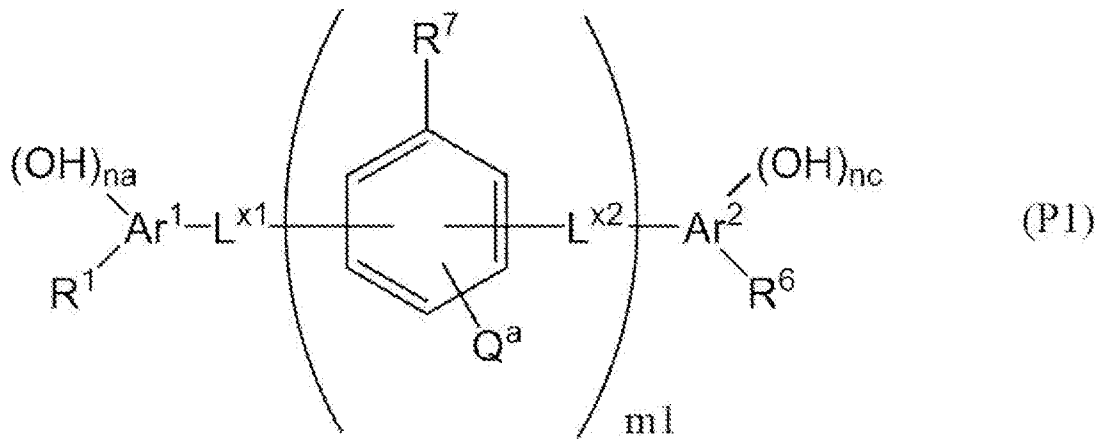
[0044] <その他のフェノール化合物>

フェノール化合物は、スピロフェノール化合物以外の、その他のフェノール化合物を含んでもよい。

[0045] (一般式 (P1))

本発明の効果がより優れる点から、その他のフェノール化合物としては、一般式 (P1) で表される化合物が好ましい。

[0046] [化5]



[0047] 一般式 (P1) 中、 m_1 は0以上の整数を表す。

m_1 は、0~10が好ましく、0~3がより好ましく、0又は1が更に好ましく、1が特に好ましい。

[0048] 一般式 (P1) 中、 n_a 及び n_c は、それぞれ独立に、1以上の整数を表す。

n_a 及び n_c は、それぞれ独立に、1~4が好ましい。

[0049] 一般式 (P1) 中、 R^1 及び R^6 は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、カルボン酸基、ボロン酸基、アルデヒド基、アルキル基、アルコキシ基、又は、アルコキシカルボニル基を表す。

上記アルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は、1~10が好ましい。上記アルキル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。

上記アルコキシ基におけるアルキル基部分、及び、上記アルコキシカルボニル基におけるアルキル基部分は、上記アルキル基と同様である。

R¹及びR⁶は、それぞれ独立に、水素原子又はハロゲン原子が好ましく、水素原子又は塩素原子がより好ましく、水素原子が更に好ましい。

[0050] 一般式 (P 1) 中、R⁷は、水素原子又は水酸基を表す。

R⁷が複数存在する場合、複数存在するR⁷は、それぞれ同一でも異なってもよい。

R⁷が複数存在する場合、複数存在するR⁷のうち、少なくとも1個のR⁷が水酸基を表すのも好ましい。

[0051] 一般式 (P 1) 中、L^{x1}は、単結合、-C (R²) (R³) -、又は、-C O-を表し、-C (R²) (R³) -又は-C O-が好ましい。

L^{x2}は、単結合、-C (R⁴) (R⁵) -、又は、-C O-を表し、-C (R⁴) (R⁵) -、又は、-C O-が好ましい。

R²~R⁵は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

上記置換基は、それぞれ独立に、水酸基、フェニル基、ハロゲン原子、カルボン酸基、ボロン酸基、アルデヒド基、アルキル基、アルコキシ基、又は、アルコキシカルボニル基が好ましく、水酸基、ハロゲン原子、カルボン酸基、ボロン酸基、アルデヒド基、アルキル基、アルコキシ基、又は、アルコキシカルボニル基がより好ましい。

上記アルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は、1~10が好ましい。上記アルキル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。

上記アルコキシ基におけるアルキル基部分、及び、上記アルコキシカルボニル基におけるアルキル基部分は、上記アルキル基と同様である。

上記フェニル基は、置換基を有していても有していなくてもよく、置換基を有する場合は1~3個の水酸基を有するのがより好ましい。

R²~R⁵は、それぞれ独立に、水素原子又は水酸基が好ましく、水素原子がより好ましい。

$L \times 1$ 及び $L \times 2$ は、それぞれ独立に、 $-CH_2-$ 、 $-CH(OH)-$ 、 $-CO-$ 、又は、 $-CH(Ph)-$ が好ましい。

上記Phは置換基を有していてもよいフェニル基を表す。

なお、一般式(P1)中に、 R^4 が複数存在する場合、複数存在する R^4 は、それぞれ同一でも異なってもよい。 R^5 が複数存在する場合、複数存在する R^5 は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0052] 一般式(P1)中、 Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ独立に、ベンゼン環基又はナフタレン環基を表す。

Ar^1 及び Ar^2 は、それぞれ独立に、ベンゼン環基が好ましい。

[0053] 一般式(P1)中、 Q^a は、水素原子、アルキル基、フェニル基、ハロゲン原子、カルボン酸基、ボロン酸基、アルデヒド基、アルコキシ基、又は、アルコキシカルボニル基を表す。

上記アルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基の炭素数は、1~10が好ましい。上記アルキル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。

上記アルコキシ基におけるアルキル基部分、及び、上記アルコキシカルボニル基におけるアルキル基部分は、上記アルキル基と同様である。

上記フェニル基は、置換基を有していても有していなくてもよい。

Q^a は、 Q^a が結合するベンゼン環基が有してもよい水酸基に対して、パラ位に結合するのが好ましい。

Q^a は、水素原子又はアルキル基が好ましい。上記アルキル基はメチル基が好ましい。

[0054] なお、一般式(P1)中に R^7 、 $L \times 2$ 、及び/又は、 Q^a が複数存在する場合、複数存在する R^7 、 $L \times 2$ 、及び/又は、 Q^a は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0055] その他のフェノール化合物としては、他にも、例えば、ベンゼントリオールなどのベンゼンポリオール、ピフェニルアラルキル型フェノール樹脂、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、芳香族炭化水素ホル

ムアルデヒド樹脂変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエンフェノール付加型樹脂、フェノールアラルキル樹脂、多価ヒドロキシ化合物とホルムアルデヒドとから合成される多価フェノールノボラック樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、トリメチロールメタン樹脂、テトラフェニロールエタン樹脂、ナフトールノボラック樹脂、ナフトールフェノール共縮ノボラック樹脂、ナフトールクレゾール共縮ノボラック樹脂、ビフェニル変性フェノール樹脂、ビフェニル変性ナフトール樹脂、アミノトリアジン変性フェノール樹脂、又は、アルコキシ基含有芳香環変性ノボラック樹脂等も好ましい。

[0056] その他のフェノール化合物の水酸基含有量（好ましくはフェノール性水酸基含有量）の下限は、 3.0 mmol/g 以上が好ましく、 7.0 mmol/g 以上がより好ましい。

上限は、 25.0 mmol/g 以下が好ましく、 20.0 mmol/g 以下がより好ましい。

また、その他のフェノール化合物は、水酸基以外にも、エポキシ基と重合反応できる活性水素含有基（カルボン酸基等）を有していてもよい。フェノール化合物の活性水素の含有量（水酸基及びカルボン酸基等における水素原子の合計含有量）の下限は、 3.0 mmol/g 以上が好ましく、 7.0 mmol/g 以上がより好ましい。上限は、 25.0 mmol/g 以下が好ましく、 20.0 mmol/g 以下がより好ましい。

[0057] その他のフェノール化合物の分子量の上限値は、 600 以下が好ましく、 500 以下がより好ましく、 450 以下が更に好ましく、 400 以下が特に好ましい。下限値は、 110 以上が好ましく、 300 以上がより好ましい。

[0058] その他のフェノール化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

[0059] なお、本発明の組成物は、フェノール化合物以外の化合物として、エポキシ基と反応可能な基を有する化合物（「その他の活性水素含有化合物」ともいう）を含んでもよい。

本発明の組成物が、その他の活性水素含有化合物を含む場合、本発明の組

成物中における、全フェノール化合物の含有量に対する、その他の活性水素含有化合物の含有量の質量比（その他の活性水素含有化合物の含有量／全フェノール化合物の含有量）は、0～1が好ましく、0～0.1がより好ましく、0～0.05が更に好ましい。

[0060] [エポキシ化合物]

本発明の組成物はエポキシ化合物を含む。エポキシ化合物は、フェノール性水酸基を少なくとも1個以上（好ましくは2個以上、より好ましくは2～10個）有する化合物である。

[0061] <スピロエポキシ化合物>

エポキシ化合物は、スピロエポキシ化合物を含んでよい。

特に、フェノール化合物がスピロフェノール化合物を含まない場合、エポキシ化合物は、スピロエポキシ化合物を必ず含む。

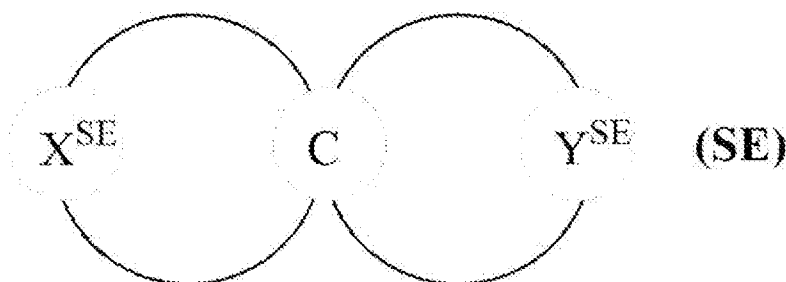
エポキシ化合物がスピロエポキシ化合物を含む場合、スピロエポキシ化合物の含有量は、全エポキシ化合物に対して、5質量%以上が好ましく、20質量%以上がより好ましく、50質量%以上が更に好ましく、85質量%以上が特に好ましい。上限は、100質量%である。

スピロエポキシ化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

[0062] (一般式 (SE))

本発明の効果がより優れる点から、スピロエポキシ化合物は、一般式 (SE) で表される化合物であるのが好ましい。

[0063] [化6]

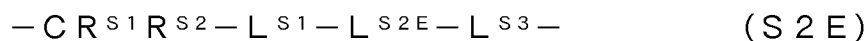


[0064] 一般式 (SE) 中、Cはスピロ原子である炭素原子を表す。

一般式 (S E) 中、 X^{SE} 及び Y^{SE} は、それぞれ独立に、エポキシ基を 1 個以上有する 2 価の連結基を表す。

X^{SE} の両末端では、それぞれ同一の炭素原子 C と結合している。 Y^{SE} の両末端では、それぞれ同一の炭素原子 C と結合している。また、 X^{SE} が両末端で結合する炭素原子 C と、 Y^{SE} が両末端で結合する炭素原子 C とは同一であり、一般式 (S E) で表される化合物は、上記炭素原子 C をスピロ原子とするスピロ化合物である。

[0065] X^{SE} 及び Y^{SE} は、それぞれ独立に、一般式 (S 2 E) で表される基であるのが好ましい。



なお、 X^{SE} における一般式 (S 2 E) で表される基と、 Y^{SE} における一般式 (S 2 E) で表される基とは、それぞれ同一でも異なってもよい。

一般式 (S 2 E) 中の、 R^{S1} 、 R^{S2} 、 L^{S1} 、及び、 L^{S3} は、上述の一般式 (S 2 P) における、 R^{S1} 、 R^{S2} 、 L^{S1} 、及び、 L^{S3} と、それぞれ同様である。

[0066] 一般式 (S 2 E) 中、 L^{S2E} は、エポキシ基を有する 2 価の連結基を表す。

L^{S2E} は、置換基としてエポキシ基含有基を有する芳香環基、又は、 $-CR^{S5E}R^{S6E}-$ が好ましい。

[0067] 上記置換基としてエポキシ基含有基を有する芳香環基における芳香環基は、単環でも多環でもよい。上記芳香環基は、芳香族炭化水素基でも芳香族複素環基でもよい。上記芳香環基の炭素数は、6～15 が好ましく、6 がより好ましい。

上記芳香環基が置換基として有するエポキシ基含有基の数は、1 以上であり、1～5 が好ましく、1～2 がより好ましい。上記芳香環基は、エポキシ基含有基以外にも置換基（好ましくは炭素数 1～3 のアルキル基）を有していてもよい。

上記置換基としてエポキシ基含有基を有する芳香環基は、置換基として 1 個又は 2 個のエポキシ基含有基を有するベンゼン環基が好ましく、置換基と

して1個又は2個のエポキシ基含有基を有する1, 2-ベンゼンジイル基がより好ましい。

[0068] なお、エポキシ基含有基とは、エポキシ基を有する基であれば制限はなく、エポキシ基そのものであってもよい。

また、エポキシ基が置換基を有していてもよい。エポキシ基が有してもよい置換基としては、炭素数1～6の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基が好ましい。

エポキシ基含有基は、エポキシ基を有する1価の基が好ましく、「 $-L^{\circ}$ -エポキシ基」で表される基がより好ましい。 L° は、単結合又は2価の連結基であり、酸素原子、アルキレン基（好ましくは炭素数1～6の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基）、又は、これらの組み合わせからなる基が好ましい。

中でも、上記エポキシ基を有する1価の基は、「 $-O-$ アルキレン基-エポキシ基」が好ましい。上記アルキレン基は、炭素数1～6の直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましく、メチレン基がより好ましい。

エポキシ基含有基が複数存在する場合、エポキシ基含有基はそれぞれ同一でも異なってもよい。

[0069] $-CR^{S5}ER^{S6}-$ における R^{S5} は、水素原子又は置換基を表す。

$-CR^{S5}ER^{S6}-$ における R^{S6} は、置換基としてエポキシ基含有基を有するアリール基を表す。

ここで言うエポキシ基含有基は、上述のエポキシ基含有基と同様である。

上記置換基としてエポキシ基含有基を有するアリール基におけるアリール基としては、単環でも多環でもよい。上記アリール基の炭素数としては、6～15が好ましく、6がより好ましい。

上記置換基としてエポキシ基含有基を有するアリール基における、置換基としてのエポキシ基含有基の数は、1以上であり、1～5が好ましく、1～2がより好ましい。上記置換基としてエポキシ基含有基を有するアリール基におけるアリール基は、エポキシ基含有基以外にも置換基を有していてもよ

い。

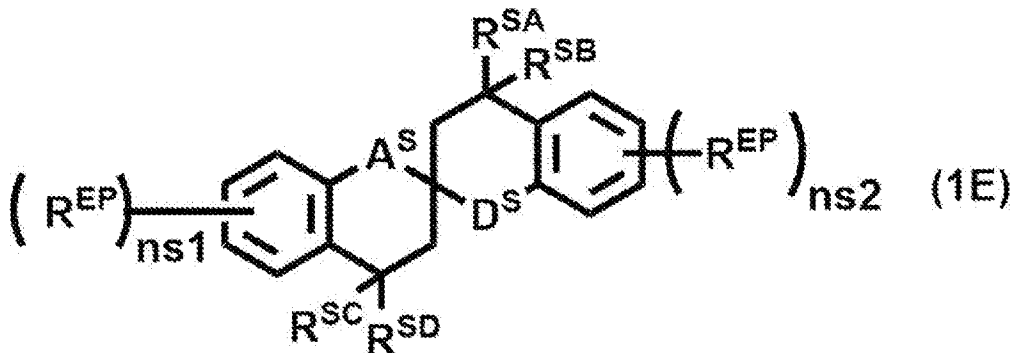
上記置換基としてエポキシ基含有基を有するアリール基は、置換基として1～2個のエポキシ基含有基を有するフェニル基が好ましく、パラ位にエポキシ基含有基を有するフェニル基がより好ましい。

[0070] 中でも、 L^{S2E} は、置換基としてエポキシ基含有基を有する芳香環基が好ましく、置換基として1個又は2個のエポキシ基含有基を有するベンゼン環基がより好ましく、置換基として1個又は2個のエポキシ基含有基を有する1,2-ベンゼンジイル基が更に好ましい。

[0071] (一般式(1E))

本発明の効果がより優れる点から、スピロエポキシ化合物は、一般式(1E)で表される化合物であるのがより好ましい。

[0072] [化7]



[0073] 一般式(1E)中の、 $ns1$ 、 $ns2$ 、 A^S 、 D^S 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、フェノール化合物の説明中で挙げた一般式(1)中の、 $ns1$ 、 $ns2$ 、 A^S 、 D^S 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} とそれぞれ同様である。

一般式(1E)中、 R^{EP} は、エポキシ基含有基を表す。

R^{EP} のエポキシ基含有基は、一般式(SE)中の説明で挙げたエポキシ基含有基と同様である。

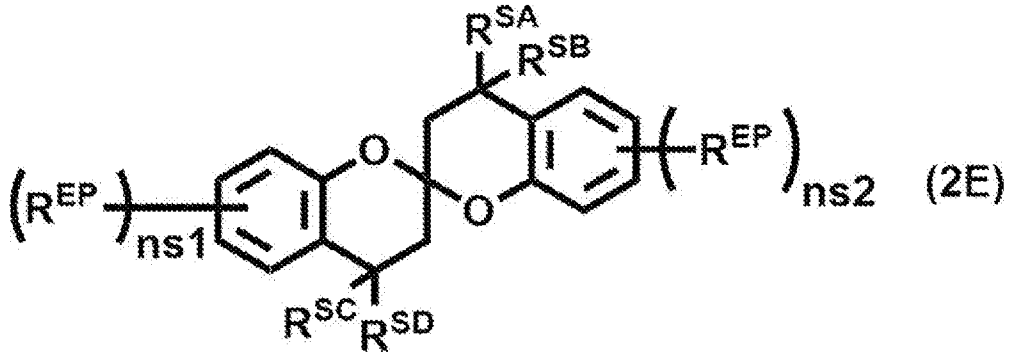
複数存在する R^{EP} は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0074] (一般式(2E))

本発明の効果がより優れる点から、スピロエポキシ化合物は、一般式(2

E) で表される化合物であるのが更に好ましい。

[0075] [化8]



[0076] 一般式 (2E) 中の、 $ns1$ 、 $ns2$ 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、フェノール化合物の説明中で挙げた一般式 (1) 中の、 $ns1$ 、 $ns2$ 、 R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} とそれぞれ同様である。

一般式 (2E) 中の R^{EP} は、一般式 (1E) 中の R^{EP} と同様である。

[0077] 本発明の効果がより優れる点から、スピロエポキシ化合物の分子量の下限は、300以上が好ましく、400以上が好ましく、450以上が更に好ましい。上限は、700以下が好ましく、550以下がより好ましい。

[0078] 本発明の効果がより優れる点から、スピロエポキシ化合物のエポキシ基含有量の下限は、2.0 mmol/g以上が好ましく、3.5 mmol/g以上がより好ましく、4.0 mmol/g以上が更に好ましい。上限は、20.0 mmol/g以下が好ましく、10.0 mmol/g以下が更に好ましい。

なお、上記エポキシ基含有量は、エポキシ化合物 1 g が有する、エポキシ基の数を意図する。

[0079] <その他のエポキシ化合物>

エポキシ化合物は、スピロエポキシ化合物以外の、その他のエポキシ化合物を含んでもよい。

その他のエポキシ化合物は、1分子中に、少なくとも1つのエポキシ基（オキシラニル基）を有する化合物である。エポキシ基は、可能な場合、置換基を有していても有していなくてもよい。

その他のエポキシ化合物が有するエポキシ基の数は、1分子中、2以上が好ましく、2~40がより好ましく、2~10が更に好ましく、2が特に好ましい。

その他のエポキシ化合物の分子量は、150~10000が好ましく、150~2000がより好ましい。

[0080] その他のエポキシ化合物のエポキシ基含有量は、2.0~20.0 mmol/gが好ましく、5.0~15.0 mmol/gがより好ましい。

なお、上記エポキシ基含有量は、エポキシ化合物1gが有する、エポキシ基の数を意図する。

エポキシ化合物は、常温（23℃）で、液状であってもよい。

[0081] その他のエポキシ化合物は、液晶性を示してもよく示さなくてもよい。

つまり、その他のエポキシ化合物は、液晶化合物であってもよい。言い換えれば、エポキシ基を有する液晶化合物であってもよい。

その他のエポキシ化合物（液晶性のその他のエポキシ化合物であってもよい）としては、例えば、少なくとも部分的に棒状構造を含む化合物（棒状化合物）、及び、少なくとも部分的に円盤状構造を含む化合物円盤状化合物が挙げられる。

以下、棒状化合物及び円盤状化合物について詳述する。

[0082] <棒状化合物>

棒状化合物であるその他のエポキシ化合物としては、アゾメチン類、アゾキシ類、シアノビフェニル類、シアノフェニルエステル類、安息香酸エステル類、シクロヘキサンカルボン酸フェニルエステル類、シアノフェニルシクロヘキサン類、シアノ置換フェニルピリミジン類、アルコキシ置換フェニルピリミジン類、フェニルジオキサン類、トラン類、及び、アルケニルシクロヘキシルベンゾニトリル類が挙げられる。以上のような低分子化合物だけではなく、高分子化合物も使用できる。上記高分子化合物は、低分子の反応性基を有する棒状化合物が重合した高分子化合物である。

好ましい棒状化合物としては、下記一般式（XXI）で表される棒状化合

物が挙げられる。

一般式 (X X I) : $Q^1 - L^{111} - A^{111} - L^{113} - M - L^{114} - A^{112} - L^{112} - Q^2$

[0083] 一般式 (X X I) 中、 Q^1 及び Q^2 はそれぞれ独立に、エポキシ基であり、 L^{111} 、 L^{112} 、 L^{113} 、及び、 L^{114} はそれぞれ独立に、単結合又は 2 価の連結基を表す。 A^{111} 及び A^{112} はそれぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 の 2 価の連結基 (スペーサ基) を表す。M はメソゲン基を表す。

Q^1 及び Q^2 のエポキシ基は、置換基を有していてもよいし、有していなくてもよい。

[0084] 一般式 (X X I) 中、 L^{111} 、 L^{112} 、 L^{113} 、及び、 L^{114} はそれぞれ独立に、単結合又は 2 価の連結基を表す。

L^{111} 、 L^{112} 、 L^{113} 、及び、 L^{114} で表される 2 価の連結基としては、それぞれ独立に、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 、 $-NR^{112}-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-CO-NR^{112}-$ 、 $-NR^{112}-CO-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CH_2-O-$ 、 $-O-CH_2-$ 、 $-O-CO-NR^{112}-$ 、 $-NR^{112}-CO-O-$ 、及び、 $-NR^{112}-CO-NR^{112}-$ からなる群より選ばれる 2 価の連結基であるのが好ましい。上記 R^{112} は炭素数 1 ~ 7 のアルキル基又は水素原子である。

中でも、 L^{113} 及び L^{114} は、それぞれ独立に、 $-O-$ が好ましい。

L^{111} 及び L^{112} は、それぞれ独立に、単結合が好ましい。

[0085] 一般式 (X X I) 中、 A^{111} 及び A^{112} は、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 20 の 2 価の連結基を表す。

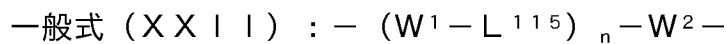
2 価の連結基は、隣接していない酸素原子及び硫黄原子等のヘテロ原子を含んでいてもよい。中でも、炭素数 1 ~ 12 の、アルキレン基、アルケニレン基、又は、アルキニレン基が好ましい。上記、アルキレン基、アルケニレン基、又は、アルキニレン基がエステル基を有していてもよいし、有していなくてもよい。

2 価の連結基は直鎖状であるのが好ましく、また、上記 2 価の連結基は置

置換基を有していてもよいし、有していなくてもよい。置換基としては、例えば、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、及び、臭素原子）、シアノ基、メチル基、及び、エチル基が挙げられる。

中でも、 A^{111} 及び A^{112} は、それぞれ独立に、炭素数1～12のアルキレン基が好ましく、メチレン基がより好ましい。

[0086] 一般式 (XXI) 中、Mはメソゲン基を表し、上記メソゲン基としては、公知のメソゲン基が挙げられる。中でも、下記一般式 (XXII) で表される基が好ましい。



[0087] 一般式 (XXII) 式中、 W^1 及び W^2 は、それぞれ独立に、2価の環状アルキレン基、2価の環状アルケニレン基、アリーレン基、又は、2価のヘテロ環基を表す。 L^{115} は、単結合又は2価の連結基を表す。 n は、1～4の整数を表す。

[0088] W^1 及び W^2 としては、例えば、1,4-シクロヘキサジイル、1,4-シクロヘキササンジイル、1,4-フェニレン、ピリミジン-2,5-ジイル、ピリジン-2,5-ジイル、1,3,4-チアジアゾール-2,5-ジイル、1,3,4-オキサジアゾール-2,5-ジイル、ナフタレン-2,6-ジイル、ナフタレン-1,5-ジイル、チオフェン-2,5-ジイル、及び、ピリダジン-3,6-ジイルが挙げられる。1,4-シクロヘキサジイルの場合、トランス体及びシス体の構造異性体のどちらの異性体であってもよく、任意の割合の混合物でもよい。中でも、トランス体が好ましい。

W^1 及び W^2 は、それぞれ置換基を有していてもよい。置換基としては、例えば、上述した置換基群Yで例示された基が挙げられ、より具体的には、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及び、ヨウ素原子）、シアノ基、炭素数1～10のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、及び、プロピル基等）、炭素数1～10のアルコキシ基（例えば、メトキシ基、及び、エトキシ基等）、炭素数1～10のアシル基（例えば、ホルミル基、及び、アセチル基等）、炭素数1～10のアルコシカルボニル基（例えば、

メトキシカルボニル基、及び、エトキシカルボニル基等)、炭素数1~10のアシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ基、及び、プロピオニルオキシ基等)、ニトロ基、トリフルオロメチル基、及び、ジフルオロメチル基等が挙げられる。

W^1 が複数存在する場合、複数存在する W^1 は、それぞれ同一でも異なってもよい。

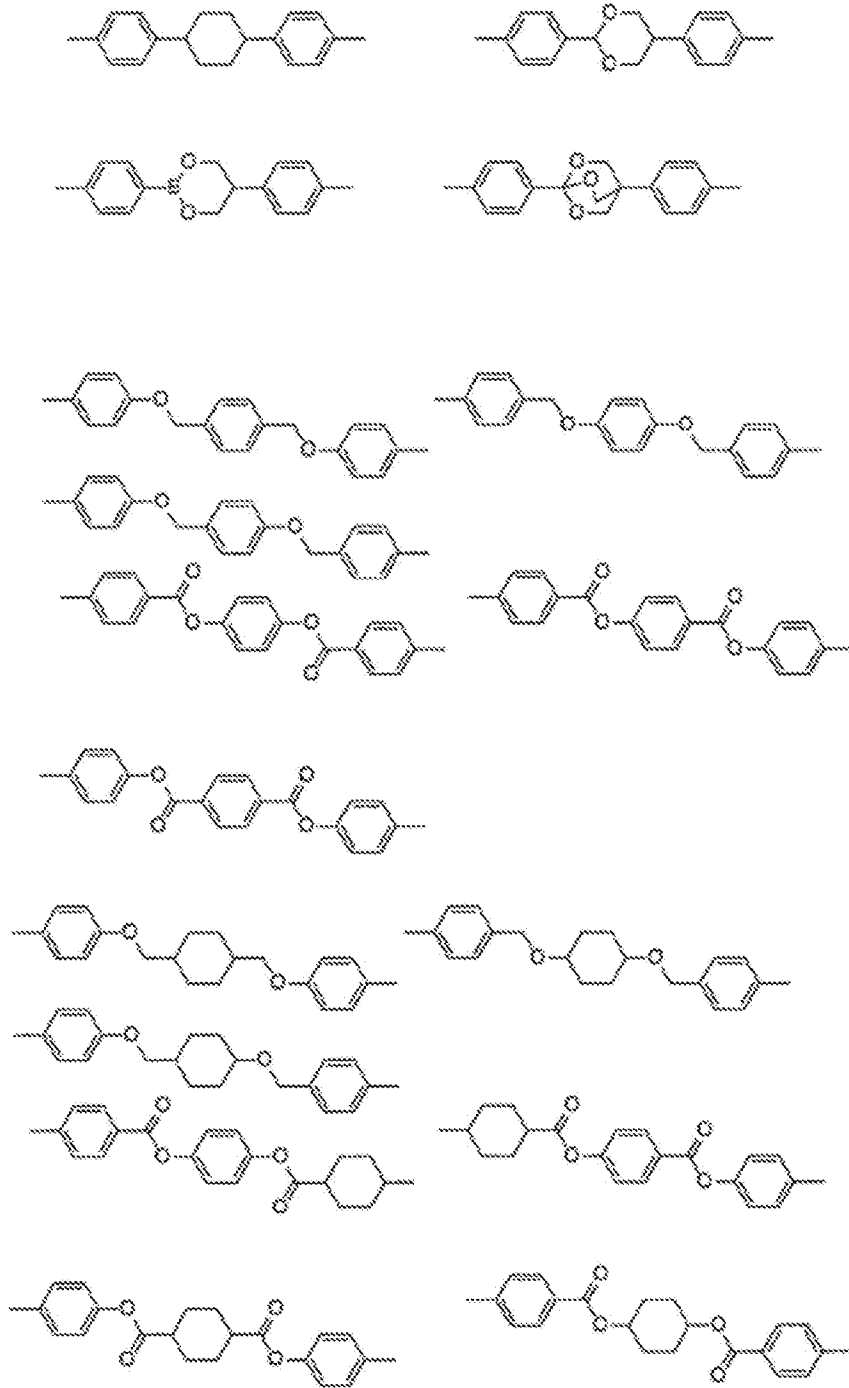
[0089] 一般式(XXII)式中、 L^{115} は、単結合又は2価の連結基を表す。 L^{115} で表される2価の連結基としては、上述した L^{111} ~ L^{114} で表される2価の連結基の具体例が挙げられ、例えば、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CH_2-O-$ 、及び、 $-O-CH_2-$ が挙げられる。

L^{115} が複数存在する場合、複数存在する L^{115} は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0090] 上記一般式(XXII)で表されるメソゲン基の基本骨格で好ましい骨格を、以下に例示する。上記メソゲン基は、これらの骨格に置換基が置換していてもよい。

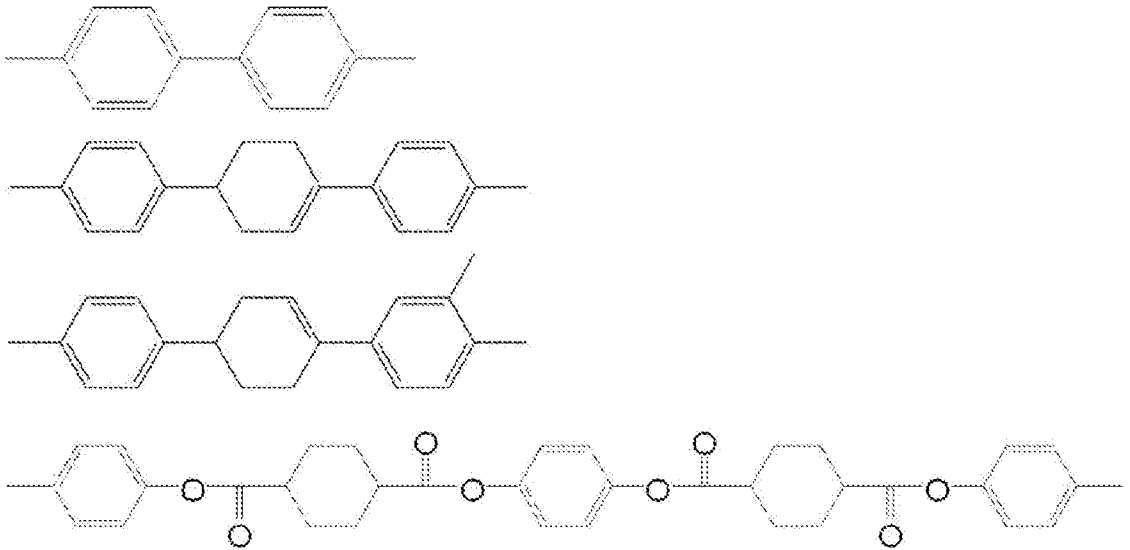
[0091]

[化9]



[0092]

[化10]



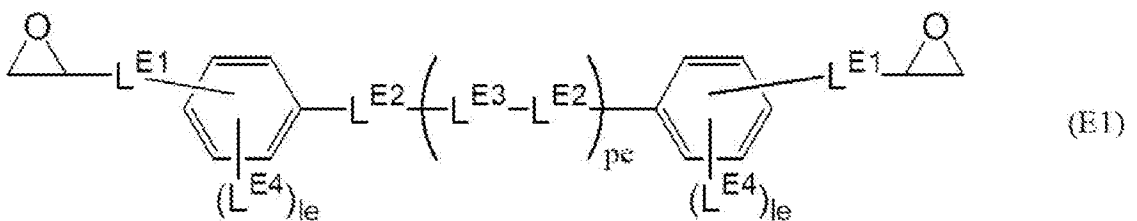
[0093] 上記骨格の中でも、得られる熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点でビフェニル骨格が好ましい。

なお、一般式 (X X I) で表される化合物は、特表平 11-513019 号公報 (WO 97/00600) に記載の方法を参照して合成できる。

棒状化合物は、特開平 11-323162 号公報及び特許 4118691 号に記載のメソゲン基を有するモノマーであってもよい。

[0094] 棒状化合物は、一般式 (E 1) で表される化合物であるのも好ましい。

[0095] [化11]



[0096] 一般式 (E 1) 中、 L^{E1} は、それぞれ独立に、単結合又は 2 価の連結基を表す。

中でも、 L^{E1} は、2 価の連結基が好ましい。

2 価の連結基は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-CH=CH-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $-CH=N-$ 、 $-N=CH-$ 、 $-N=N-$ 、置換意を有していてもよいアルキレン基、又は、これらの 2 以上の組み合わせからなる基が

好ましく、 $-O-$ アルキレン基 $-$ 又は $-$ アルキレン基 $-O-$ がより好ましい。
。

なお上記アルキレン基は、直鎖状、分岐鎖状、及び、環状のいずれでもよいが、炭素数1~2の直鎖状アルキレン基が好ましい。

複数存在する L^{E1} は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0097] 一般式(E1)中、 L^{E2} は、それぞれ独立に、単結合、 $-CH=CH-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-C(-CH_3)=CH-$ 、 $-CH=C(-CH_3)-$ 、 $-CH=N-$ 、 $-N=CH-$ 、 $-N=N-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $-N=N^+(-O^-)-$ 、 $-N^+(-O^-)=N-$ 、 $-CH=N^+(-O^-)-$ 、 $-N^+(-O^-)=CH-$ 、 $-CH=CH-CO-$ 、 $-CO-CH=CH-$ 、 $-CH=C(-CN)-$ 、又は、 $-C(-CN)=CH-$ を表す。

中でも、 L^{E2} は、それぞれ独立に、単結合、 $-CO-O-$ 、又は、 $-O-CO-$ が好ましい。

L^{E2} が複数存在する場合、複数存在する L^{E2} は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0098] 一般式(E1)中、 L^{E3} は、それぞれ独立に、単結合、又は、置換基を有していてもよい、5員環若しくは6員環の芳香族環基又は5員環若しくは6員環の非芳香族環基、又は、これらの環からなる多環基を表す。

L^{E3} で表される芳香族環基及び非芳香族環基の例としては、置換基を有していてもよい、1,4-シクロヘキサンジイル基、1,4-シクロヘキセンジイル基、1,4-フェニレン基、ピリミジン-2,5-ジイル基、ピリジン-2,5-ジイル基、1,3,4-チアジアゾール-2,5-ジイル基、1,3,4-オキサジアゾール-2,5-ジイル基、ナフタレン-2,6-ジイル基、ナフタレン-1,5-ジイル基、チオフェン-2,5-ジイル基、及び、ピリダジン-3,6-ジイル基が挙げられる。1,4-シクロヘキサンジイル基の場合、トランス体及びシス体の構造異性体のどちらの異性体であってもよく、任意の割合の混合物でもよい。中でも、トランス体であるのが好ましい。

中でも、 L^{E3} は、単結合、1, 4-フェニレン基、又は、1, 4-シクロヘキセンジイル基が好ましい。

L^{E3} で表される基が有する置換基は、それぞれ独立に、アルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、又は、アセチル基が好ましく、アルキル基（好ましくは炭素数1）がより好ましい。

なお、置換基が複数存在する場合、置換基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

L^{E3} が複数存在する場合、複数存在する L^{E3} は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0099] 一般式 (E 1) 中、 p_e は、0以上の整数を表す。

p_e が2以上の整数である場合、複数存在する $(-L^{E3}-L^{E2}-)$ は、それぞれ同一でも異なってもよい。

中でも、 p_e は、0~2が好ましく、0又は1がより好ましく、0が更に好ましい。

[0100] 一般式 (E 1) 中、 L^{E4} は、それぞれ独立に、置換基を表す。

置換基は、それぞれ独立に、アルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、又は、アセチル基が好ましく、アルキル基（好ましくは炭素数1）がより好ましい。

複数存在する L^{E4} は、それぞれ同一でも異なってもよい。また、次に説明する l_e が2以上の整数である場合、同一の $(L^{E4})_l$ 中に複数存在する L^{E4} も、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0101] 一般式 (E 1) 中、 l_e は、それぞれ独立に、0~4の整数を表す。

中でも、 l_e は、それぞれ独立に、0~2が好ましい。

複数存在する l_e は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0102] 棒状化合物は、得られる熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点でビフェニル骨格を有するのが好ましい。

言い換えると、その他のエポキシ化合物は、ビフェニル骨格を有するのが好ましく、この場合のその他のエポキシ化合物は棒状化合物であるのがより

好ましい。

[0103] <円盤状化合物>

円盤状化合物であるその他のエポキシ化合物は、少なくとも部分的に円盤状構造を有する。

円盤状構造は、少なくとも、脂環又は芳香族環を有する。特に、円盤状構造が、芳香族環を有する場合、円盤状化合物は、分子間の $\pi-\pi$ 相互作用によるスタッキング構造の形成により柱状構造を形成しうる。

円盤状構造として、具体的には、*Angew. Chem. Int. Ed.*, 2012, 51, 7990-7993又は特開平7-306317号公報に記載のトリフェニレン構造、並びに、特開2007-2220号公報及び特開2010-244038号公報に記載の3置換ベンゼン構造等が挙げられる。

[0104] その他のエポキシ化合物として円盤状化合物を用いれば、高い熱伝導性を示す熱伝導材料が得られる。その理由としては、棒状化合物が直線的（一次的）にしか熱伝導できないのに対して、円盤状化合物は法線方向に平面的（二次元的）に熱伝導できるため、熱伝導パスが増え、熱伝導率が向上する、と考えられる。

[0105] 上記円盤状化合物は、エポキシ基を3つ以上有するのが好ましい。3つ以上のエポキシ基を有する円盤状化合物を含む組成物の硬化物はガラス転移温度が高く、耐熱性が高い傾向がある。

円盤状化合物が有するエポキシ基の数は、8以下が好ましく、6以下より好ましい。

[0106] 円盤状化合物の具体例としては、C. Destrade et al., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, vol. 71, page 111 (1981) ; 日本化学会編、季刊化学総説、No. 22、液晶の化学、第5章、第10章第2節(1994) ; B. Kohne et al., *Angew. Chem. Soc. Chem. Comm.*, page 1794 (1985) ; J. Zhang

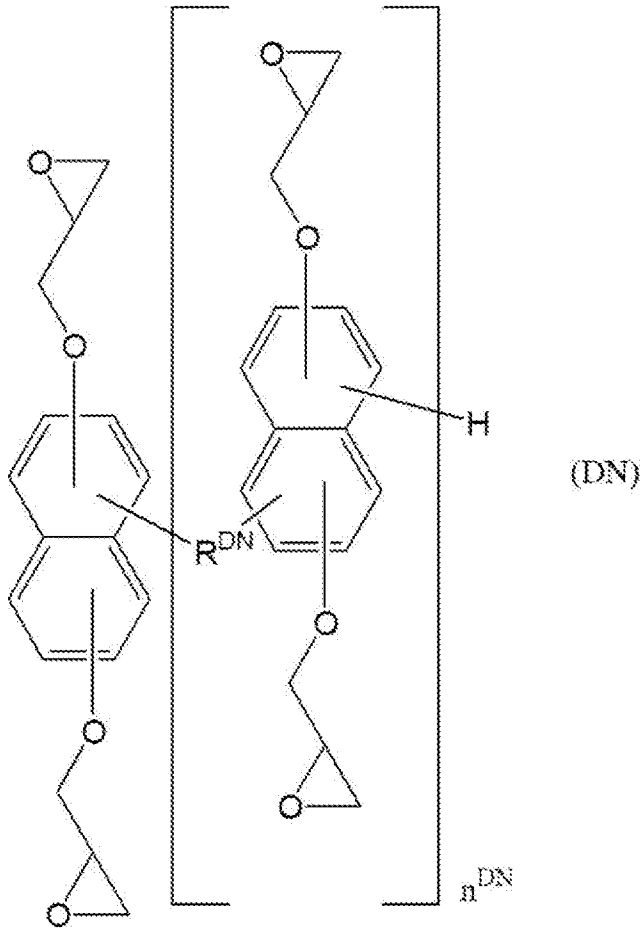
et al., J. Am. Chem. Soc., vol. 116, page 2655 (1994)、及び特許第4592225号に記載されている化合物等において末端の少なくとも1つ（好ましくは3つ以上）をエポキシ基とした化合物が挙げられる。

円盤状化合物としては、Angew. Chem. Int. Ed. 2012, 51, 7990-7993、及び特開平7-306317号公報に記載があるようなトリフェニレンを中心環としたトリフェニレン構造において、末端の1個以上（好ましくは3個以上、より好ましくは3~6個）をエポキシ基とした化合物、並びに、特開2007-2220号公報、及び、特開2010-244038号公報に記載があるようなベンゼン環を中心環とした3置換ベンゼン構造において、末端の1個以上（好ましくは3個以上、より好ましくは3個）をエポキシ基とした化合物等が挙げられる。

[0107] 上述以外の、その他のエポキシ化合物としては、例えば、一般式(DN)で表されるエポキシ化合物が挙げられる。

[0108]

[化12]



[0109] 一般式 (DN) 中、 n^{DN} は、0 以上の整数を表し、0～5 が好ましく、1 がより好ましい。

R^{DN} は、単結合又は 2 価の連結基を表す。2 価の連結基としては、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-S-$ 、アルキレン基（炭素数は、1～10 が好ましい。）、アリーレン基（炭素数は、6～20 が好ましい。）、又は、これらの組み合わせからなる基が好ましく、アルキレン基がより好ましく、メチレン基がより好ましい。

[0110] その他のエポキシ化合物としては、エポキシ基が、縮環している化合物も挙げられる。このような化合物としては、例えば、3, 4 : 8, 9-ジエポキシビシクロ [4. 3. 0] ノナン等が挙げられる。

[0111] その他のエポキシ化合物としては、他にも、例えば、ビスフェノール A、F、S、AD 等のグリシジルエーテルであるビスフェノール A 型エポキシ化

合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、ビスフェノールS型エポキシ化合物、ビスフェノールAD型エポキシ化合物等；水素添加したビスフェノールA型エポキシ化合物、水素添加したビスフェノールAD型エポキシ化合物等；フェノールノボラック型のグリシジルエーテル（フェノールノボラック型エポキシ化合物）、クレゾールノボラック型のグリシジルエーテル（クレゾールノボラック型エポキシ化合物）、ビスフェノールAノボラック型のグリシジルエーテル等；ジシクロペンタジエン型のグリシジルエーテル（ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物）；ジヒドロキシペンタジエン型のグリシジルエーテル（ジヒドロキシペンタジエン型エポキシ化合物）；ポリヒドロキシベンゼン型のグリシジルエーテル（1, 3-フェニレンビス（グリシジルエーテル）のようなポリヒドロキシベンゼン型エポキシ化合物）；ベンゼンポリカルボン酸型のグリシジルエステル（ベンゼンポリカルボン酸型エポキシ化合物）；及び、トリスフェノールメタン型エポキシ化合物が挙げられる。

[0112] その他のエポキシ化合物は、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

[0113] 本発明の組成物において、フェノール化合物がスピロフェノール化合物を含み、かつ、エポキシ化合物がスピロエポキシ化合物を含む場合、例えば、スピロフェノール化合物の含有量が全フェノール化合物に対して50質量%以上で、かつ、スピロエポキシ化合物の含有量が全エポキシ化合物に対して5質量%未満でもよい。また、例えば、スピロフェノール化合物の含有量が全フェノール化合物に対して5質量%未満で、かつ、スピロエポキシ化合物の含有量が全エポキシ化合物に対して50質量%以上でもよい。

[0114] 組成物における、エポキシ化合物の含有量とフェノール化合物の含有量との比は、全エポキシ化合物のエポキシ基と、全フェノール化合物の水酸基との当量比（エポキシ基の数/水酸基の数）が、30/70~70/30となる量が好ましく、40/60~60/40となる量がより好ましく、45/55~55/45となる量が更に好ましい。

また、組成物における、全エポキシ化合物の含有量と全フェノール化合物の含有量との比は、エポキシ化合物のエポキシ基と、フェノール化合物の活性水素（水酸基における水素原子等）との当量比（エポキシ基の数／活性水素の数）が、 $30/70 \sim 70/30$ となる量が好ましく、 $40/60 \sim 60/40$ となる量がより好ましく、 $45/55 \sim 55/45$ となる量が更に好ましい。

本発明の組成物において、固形分が有するエポキシ基の数の合計数と、固形分が有する水酸基（好ましくはフェノール性水酸基）の合計数との比との当量比（エポキシ基の数／水酸基の数）が、 $30/70 \sim 70/30$ が好ましく、 $40/60 \sim 60/40$ がより好ましく、 $45/55 \sim 55/45$ が更に好ましい。

本発明の組成物において、固形分が有するエポキシ基の数の合計数と、固形分が有する活性水素の合計数との比との当量比（エポキシ基の数／活性水素の数）が、 $30/70 \sim 70/30$ が好ましく、 $40/60 \sim 60/40$ がより好ましく、 $45/55 \sim 55/45$ が更に好ましい。

なお、固形分とは、熱伝導材料を形成する成分を意図し、溶媒は含まれない。ここでいう、熱伝導材料を形成する成分は、熱伝導材料を形成する際に反応（重合）して化学構造が変化する成分でもよい。また、熱伝導材料を形成する成分であれば、その性状が液体状であっても、固形分とみなす。

[0115] また、組成物中、エポキシ化合物とフェノール化合物との合計含有量は、組成物の全固形分に対して、 $5 \sim 90$ 質量%が好ましく、 $10 \sim 50$ 質量%がより好ましく、 $15 \sim 40$ 質量%が更に好ましい。

[0116] [無機物]

組成物は、無機物を含む。

無機物としては、従来から熱伝導材料の無機フィラーに用いられているいずれの無機物を用いてもよい。無機物としては、熱伝導材料の熱伝導性及び絶縁性がより優れる点から、無機窒化物又は無機酸化物が好ましい。

[0117] 無機物の形状は特に制限されず、粒子状であってもよく、フィルム状であ

ってもよく、又は板状であってもよい。粒子状無機物の形状は、米粒状、球形形状、立方体状、紡錘形状、鱗片状、凝集状、及び、不定形状が挙げられる。

[0118] 無機酸化物としては、例えば、酸化ジルコニウム (ZrO_2)、酸化チタン (TiO_2)、酸化ケイ素 (SiO_2)、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、酸化鉄 (Fe_2O_3 、 FeO 、 Fe_3O_4)、酸化銅 (CuO 、 Cu_2O)、酸化亜鉛 (ZnO)、酸化イットリウム (Y_2O_3)、酸化ニオブ (Nb_2O_5)、酸化モリブデン (MoO_3)、酸化インジウム (In_2O_3 、 In_2O)、酸化スズ (SnO_2)、酸化タンタル (Ta_2O_5)、酸化タングステン (WO_3 、 W_2O_5)、酸化鉛 (PbO 、 PbO_2)、酸化ビスマス (Bi_2O_3)、酸化セリウム (CeO_2 、 Ce_2O_3)、酸化アンチモン (Sb_2O_3 、 Sb_2O_5)、酸化ゲルマニウム (GeO_2 、 GeO)、酸化ランタン (La_2O_3)、及び、酸化ルテニウム (RuO_2) 等が挙げられる。

上記の無機酸化物は、1種のみを使用してもよいし、2種以上を使用してもよい。

無機酸化物は、酸化チタン、酸化アルミニウム、又は酸化亜鉛が好ましく、酸化アルミニウムがより好ましい。

無機酸化物は、非酸化物として用意された金属が、環境下等で酸化して生じている酸化物であってもよい。

[0119] 無機窒化物としては、例えば、窒化ホウ素 (BN)、窒化炭素 (C_3N_4)、窒化ケイ素 (Si_3N_4)、窒化ガリウム (GaN)、窒化インジウム (InN)、窒化アルミニウム (AlN)、窒化クロム (Cr_2N)、窒化銅 (Cu_3N)、窒化鉄 (Fe_4N)、窒化鉄 (Fe_3N)、窒化ランタン (LaN)、窒化リチウム (Li_3N)、窒化マグネシウム (Mg_3N_2)、窒化モリブデン (Mo_2N)、窒化ニオブ (NbN)、窒化タンタル (TaN)、窒化チタン (TiN)、窒化タングステン (W_2N)、窒化タングステン (WN_2)、窒化イットリウム (YN)、及び、窒化ジルコニウム (ZrN) 等が挙げられる。

上記の無機窒化物は、1種のみを使用してもよいし、2種以上を使用してもよい。

無機窒化物は、アルミニウム原子、ホウ素原子、又は、珪素原子を含むのが好ましく、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、又は、窒化珪素を含むのがより好ましく、窒化アルミニウム又は窒化ホウ素を含むのが更に好ましく、窒化ホウ素を含むのが特に好ましい。

[0120] 無機物の大きさは特に制限されないが、無機物の分散性がより優れる点で、無機物の平均粒径は500 μm 以下が好ましく、300 μm 以下がより好ましく、200 μm 以下が更に好ましい。下限は特に制限されないが、取り扱い性の点で、10nm以上が好ましく、100nm以上がより好ましい。

無機物の平均粒径としては、市販品を用いる場合、カタログ値を採用する。カタログ値が無い場合、上記平均粒径の測定方法としては、電子顕微鏡を用いて、100個の無機物を無作為に選択して、それぞれの無機物の粒径（長径）を測定し、それらを算術平均して求める。

[0121] 無機物は、1種のみを使用してもよいし、2種以上を使用してもよい。

本発明の効果がより優れる点から、無機物は、無機窒化物及び無機酸化物の少なくとも一方を含むのが好ましく、無機窒化物を少なくとも含むのがより好ましく、無機窒化物と無機酸化物との両方を含むのが更に好ましい。

本発明の効果がより優れる点から、上記無機窒化物としては、窒化ホウ素及び窒化アルミニウムの少なくとも一方を含むのが好ましく、窒化ホウ素を少なくとも含むのがより好ましい。

無機物中における無機窒化物（好ましくは窒化ホウ素及び／又は窒化アルミニウム）の含有量は、無機物の全質量に対して10～100質量%が好ましく、40～100質量%がより好ましい。

上記無機酸化物としては、酸化アルミニウムが好ましい。

熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点で、組成物は、平均粒径が20 μm 以上（好ましくは、40 μm 以上）の無機粒子を少なくとも含むのがより好

ましい。

[0122] 本発明の効果がより優れる点から、組成物中における無機物の含有量は、組成物の全固形分に対して、40～95質量%が好ましく、50～95質量%がより好ましく、60～95質量%が更に好ましい。

[0123] [表面修飾剤]

本発明の組成物は、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点から、更に表面修飾剤を含んでいてもよい。

表面修飾剤は、上述の無機物を表面修飾する成分である。

本明細書において、「表面修飾」とは無機物の表面の少なくとも一部に有機物が吸着している状態を意味する。吸着の形態は特に限定されず、結合している状態であればよい。すなわち、表面修飾は、有機物の一部が脱離して得られる有機基が無機物表面に結合している状態も含む。結合は、共有結合、配位結合、イオン結合、水素結合、ファンデルワールス結合、及び、金属結合等、いずれの結合であってもよい。表面修飾は、表面の少なくとも一部に単分子膜を形成するようになされていてもよい。単分子膜は、有機分子の化学吸着によって形成される単層膜であり、Self-Assembled Monolayer (SAM) として知られている。なお、本明細書において、表面修飾は、無機物の表面の一部のみであっても、全体であってもよい。本明細書において、「表面修飾無機物」は、表面修飾剤により表面修飾されている無機物、すなわち無機物の表面に有機物が吸着している物質を意味する。

つまり、本発明の組成物において、無機物は、表面修飾剤と共同して、表面修飾無機物（好ましくは表面修飾無機窒化物及び／又は表面修飾無機酸化物）を構成していてもよい。

表面修飾剤と、上述のフェノール化合物及びエポキシ化合物とは、互いに異なる化合物であるのが好ましい。

[0124] 表面修飾剤としては、長鎖アルキル脂肪酸等のカルボン酸、有機ホスホン酸、有機リン酸エステル、有機シラン分子（シランカップリング剤）等従来

公知の表面修飾剤を使用できる。その他、例えば、特開2009-502529号公報、特開2001-192500号公報、特許4694929号に記載の表面修飾剤を利用してもよい。

[0125] また、（好ましくは、無機物が無機窒化物（窒化ホウ素及び／又は窒化アルミニウム等）を含む場合において、）組成物は、表面修飾剤として縮環骨格又はトリアジン骨格を有する化合物を含むのが好ましい。

上記縮環骨格は、芳香族環同士の縮環骨格であるのが好ましい。

このような表面修飾剤（好ましくは後述する表面修飾剤A及び／又は表面修飾剤B）は、無機窒化物用表面修飾剤として使用するのが好ましい。

[0126] <表面修飾剤A>

表面修飾剤としては、例えば、以下に説明する表面修飾剤Aが好ましい。なお、表面修飾剤Aは、縮環骨格を有する表面修飾剤である。

表面修飾剤Aは、下記条件1及び条件2を満たす。

・条件1：以下に示す官能基群Pから選ばれる官能基（以下「特定官能基A」ともいう）を有する。

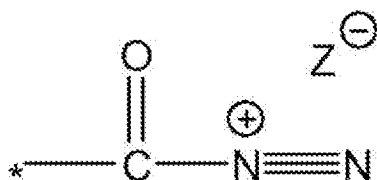
[0127] (官能基群P)

ボロン酸基 ($-B(OH)_2$)、アルデヒド基 ($-CHO$)、イソシアネート基 ($-N=C=O$)、イソチオシアネート基 ($-N=C=S$)、シアネート基 ($-O-CN$)、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基 ($-SO_2Cl$)、カルボン酸クロリド基 ($-COCl$)、オニウム基、カーボネート基 ($-O-CO-O-$)、アリールハライド基、カルボジイミド基 ($-N=C=N-$)、酸無水物基 ($-CO-O-CO-$ 、又は、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ピロメリット酸、及び無水トリメリット酸等の1価の酸無水物基)、カルボン酸基 ($-COOH$)、ホスホン酸基 ($-PO(OH)_2$)、ホスフィン酸基 ($-HPO(OH)$)、リン酸基 ($-OP(=O)(OH)_2$)、リン酸エステル基 ($-OP(=O)(OR^B)_2$)、スルホン酸基 ($-SO_3H$)、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基 ($-CN$)、ニトロ基 ($-NO_2$)、エステル基 ($-CO-O-$ 又は $-O-CO-$)、カル

ポニル基 ($-\text{CO}-$)、イミドエステル基 ($-\text{C}(\text{=NR}_c)-\text{O}-$ 又は $-\text{O}-\text{C}(\text{=NR}_c)-$)、アルコキシシリル基、アクリル基 ($-\text{OCOCH}_2=\text{CH}_2$)、メタクリル基 ($-\text{OCOCH}(\text{CH}_3)=\text{CH}_2$)、オキセタニル基、ビニル基 ($-\text{CH}=\text{CH}_2$)、アルキニル基 (アルキンから水素原子を一つ除いた基。例えば、エチニル基、及びプロパー-2-イン-1-イル基等が含まれる。)、マレイミド基、チオール基 ($-\text{SH}$)、水酸基 ($-\text{OH}$)、ハロゲン原子 (F原子、Cl原子、Br原子、及びI原子)、及びアミノ基からなる群より選ばれる官能基。

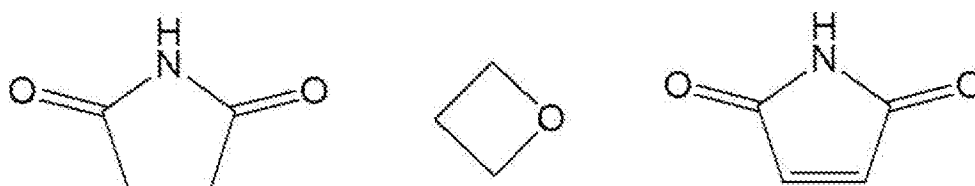
[0128] 上記アシルアジド基は、下記構造により表される基を意図する。なお、式中の*は結合位置を表す。アシルアジド基のカウンターアニオン (Z^-) は特に限定されず、例えばハロゲンイオンが挙げられる。

[0129] [化13]



[0130] 上記コハク酸イミド基、オキセタニル基、及びマレイミド基は、それぞれ下記式より表される化合物から、任意の位置の水素原子を一つ除いて形成される基を表す。

[0131] [化14]



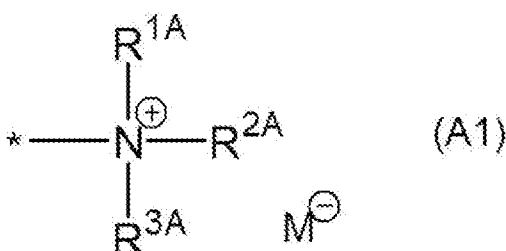
[0132] また、上記オニウム基とは、オニウム塩構造を有する基を意味する。オニウム塩とは、化学結合に関与しない電子対を有する化合物が、その電子対によって、他の陽イオン形の化合物と配位結合して生ずる化合物である。通常、オニウム塩は、カチオンとアニオンとを含む。

オニウム塩構造としては特に限定されないが、例えば、アンモニウム塩構造、ピリジニウム塩構造、イミダゾリウム塩構造、ピロリジニウム塩構造、

ピペリジニウム塩構造、トリエチレンジアミン塩構造、ホスホニウム塩構造、スルホニウム塩構造、及びチオピリリウム塩構造等が挙げられる。なお、カウンターとなるアニオンの種類は特に限定されず、公知のアニオンが用いられる。アニオンの価数も特に限定されず、例えば、1～3価が挙げられ、1～2価が好ましい。

オニウム基としては、中でも、下記一般式（A1）で表されるアンモニウム塩構造を有する基が好ましい。

[0133] [化15]



[0134] 一般式（A1）中、 $R^{1A} \sim R^{3A}$ は、それぞれ独立して、水素原子又はアルキル基（直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれも含む。）を表す。アルキル基中の炭素数は、例えば1～10であり、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。 M^- は、アニオンを表す。

*は、結合位置を表す。なお、アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

[0135] 上記アリアルハライド基としては、芳香環基にハロゲン原子が1個以上置換した基であれば特に限定されない。上記芳香環基としては、単環構造及び多環構造のいずれであってもよいが、フェニル基が好ましい。また、ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられ、フッ素原子が好ましい。なお、アリアルハライド基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

[0136] アリアルハライド基としては、具体的には、フルオロフェニル基、パーフルオロフェニル基、クロロフェニル基、ブロモフェニル基、及びヨードフェニル基等が挙げられる。

[0137] 上記リン酸エステル基としては、 $-OP(=O)(OR^B)_2$ で表される基

であれば特に限定されない。上記R^Bとしては、水素原子又は1価の有機基が挙げられる。ただし、R^Bのいずれか1つ以上は1価の有機基を表す。1価の有機基としては、例えば、アルキル基（直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれも含む。）及びアリール基が挙げられる。アルキル基中の炭素数は、例えば1～10であり、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。なお、アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。また、アリール基としては、特に限定されないが、例えばフェニル基、及びピレニル基等が挙げられる。

[0138] 上記ハロゲン化アルキル基としては特に限定されないが、例えば、炭素数1～10のアルキル基にハロゲン原子が1個以上置換した基が挙げられる。上記アルキル基（直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれも含む。）の炭素数は、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられ、フッ素原子、塩素原子、又は臭素原子が好ましい。なお、ハロゲン化アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

[0139] 上記イミドエステル基としては、 $-C(=NR^C)-O-$ 又は $-O-C(=NR^C)-$ で表される基であれば特に限定されない。上記R^Cとしては、例えば、水素原子及びアルキル基（直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれも含む。）が挙げられる。アルキル基中の炭素数は、例えば1～10であり、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。なお、アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

なお、イミドエステル基は、イミン窒素の化学結合に関与しない電子対が他の陽イオン（例えば、水素イオン）と配位結合してオニウム塩構造となってもよい。

[0140] 上記アルコキシシリル基としては特に限定されないが、例えば、下記一般式(A2)で表される基が挙げられる。

[0141] 一般式(A2)： $*-Si(OR^D)_3$

一般式(A2)中、R^Dは、それぞれ独立して、アルキル基（直鎖状、分岐

鎖状及び環状のいずれも含む。)を表す。*は、結合位置を表す。

R^Dで表されるアルキル基としては、例えば、炭素数1～10のアルキル基が挙げられ、炭素数1～6が好ましく、炭素数1～3がより好ましい。

具体的には、トリメチトキシシリル基及びトリエトキシシリル基等が挙げられる。

なお、アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

[0142] 上記アミノ基としては特に限定されず、1級、2級、及び3級のいずれであってもよい。具体的には、 $-N(R^E)_2$ （R^Eは、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基（直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれも含む。））が挙げられる。アルキル基中の炭素数は、例えば1～10であり、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。なお、アルキル基は、更に置換基（例えば、置換基群Y）を有していてもよい。

[0143] 表面修飾剤A中、上記特定官能基Aの数は1以上であれば特に限定されない。また、その上限は特に限定されないが、15以下が好ましい。中でも、表面修飾無機窒化物の分散性により優れる点で、1～8が好ましく、1～3がより好ましく、1又は2が更に好ましい。

[0144] ・条件2：芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造を有する。

[0145] 上記芳香族炭化水素環としては特に限定されないが、例えば、5員以上の単環式芳香族炭化水素環が挙げられる。環員数の上限は特に制限されないが、10員以下の場合が多い。芳香族炭化水素環としては、5員又は6員の単環式芳香族炭化水素環が好ましい。

芳香族炭化水素環としては、例えば、シクロペンタジエニル環及びベンゼン環等が挙げられる。

[0146] 上記芳香族複素環としては特に限定されないが、例えば、5員以上の単環式芳香族炭化水素環が挙げられる。環員数の上限は特に制限されないが、10員以下の場合が多い。芳香族複素環としては、例えば、5員又は6員の単

環式芳香族複素環が好ましい。

芳香族複素環としては、例えば、チオフェン環、チアゾール環、イミダゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、及び、トリアジン環が挙げられる。

[0147] 上記縮合構造としては、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造であれば特に限定されないが、本発明の効果により優れる点で、中でも、芳香族炭化水素環を2環以上含む縮環構造が好ましく、ベンゼン環を2環以上含む縮環構造がより好ましく、ベンゼン環を3環以上含む縮環構造が更に好ましい。なお、上記縮合構造中に含まれる芳香族炭化水素環及び芳香族複素環の個数の上限は特に制限されないが、例えば、10個以下の場合が多い。

芳香族炭化水素環を2環以上含む縮環構造としては、具体的に、ビフェニレン、インダセン、アセナフチレン、フルオレン、フェナレン、フェナントレン、アントラセン、フルオランテン、アセフェナンスリレン、アセアンスリレン、ピレン、クリセン、テトラセン、プレイアデン、ピセン、ペリレン、ペンタフェン、ペンタセン、テトラフェニレン、ヘキサフェン、及びトリフェニレンからなる群より選ばれる縮合環からなる縮合構造が好ましく、本発明の効果により優れる点で、上記のうち、ベンゼン環を2環以上含む縮合環からなる縮合構造がより好ましく、ベンゼン環を3環以上含む縮合環からなる縮合構造が更に好ましく、ピレン又はペリレンからなる縮合構造が特に好ましい。

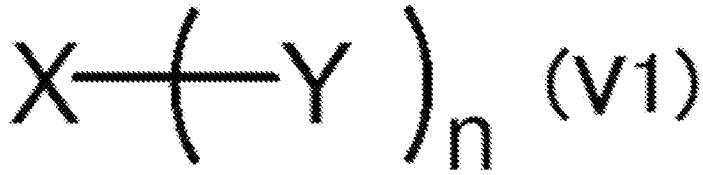
[0148] 上記表面修飾剤Aは、分散性がより向上する点で、一般式(V1)で表される化合物であるのが好ましく、一般式(V2)で表される化合物であるのがより好ましい。

以下、一般式(V1)で表される化合物及び一般式(V2)で表される化合物についてそれぞれ説明する。

(一般式(V1)で表される化合物)

[0149]

[化16]



[0150] 一般式 (V 1) 中、Xは、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造を有するn個の有機基を表す。

[0151] 上記Xは、n個の有機基 (nは1以上の整数) を表す。nは、1以上の整数であれば特に限定されない。また、その上限は特に限定されないが、15以下の整数であるのが好ましい。中でも、表面修飾無機窒化物の分散性により優れる点で、1~8が好ましく、1~3がより好ましく、1又は2が更に好ましい。

[0152] 上記X中における芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造としては、上述した構造が挙げられ、また好ましい態様も同じである。

[0153] 上記Xで表されるn個の有機基としては、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造を有しさえすれば特に限定されないが、本発明の効果がより優れる点で、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環からn個の水素原子を引き抜いて形成される基であるのが好ましい。

なお、上記縮環構造は、特定官能基A以外に、更に置換基 (例えば、置換基群Y) を有していてもよい。

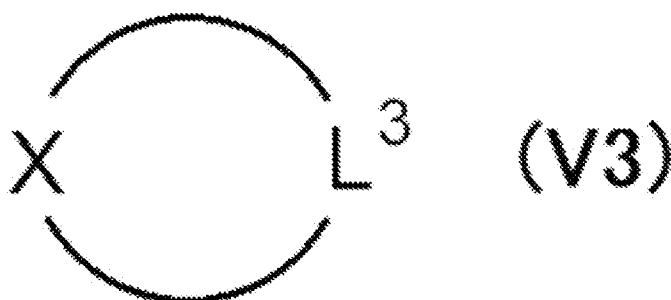
[0154] 上記Yは、下記一般式 (B 1) で表される1個の基、下記一般式 (B 2) で表される1個の基、若しくは下記一般式 (B 4) で表される1個の基を表すか、又は、nが2以上の整数を表す場合には、複数のYが結合してなる下記一般式 (B 3) で表される2個の基を表す。

言い換えると、nが1である場合には、上記Yは、下記一般式 (B 1) で表される1個の基、下記一般式 (B 2) で表される1個の基、又は下記一般式 (B 4) で表される1個の基を表す。

nが2以上の整数を表す場合には、上記Yは、下記一般式(B1)で表される1価の基、下記一般式(B2)で表される1価の基、若しくは下記一般式(B4)で表される1価の基を表すか、又は、複数のYが結合してなる下記一般式(B3)で表される2価の基を表す。なお、nが2以上の場合、複数あるYはそれぞれ同じでも、異なってもよい。

なお、Yが、下記一般式(B3)で表される2価の基を表す場合、一般式(V1)で表される化合物は、下記一般式(V3)で表される。

[0155] [化17]



[0156] 一般式(V3)中、Xは、上述した一般式(V1)中のXと同義である。

また、L³は、後述する一般式(B3)中のL³と同義である。

[0157] 一般式(B1) : *¹-L¹-P¹

一般式(B1)中、L¹は、単結合又は2価の連結基を表す。

2価の連結基としては特に限定されないが、例えば、-O-、-S-、-NR^F- (R^Fは、水素原子、又はアルキル基を表す。)、2価の炭化水素基(例えば、アルキレン基、アルケニレン基(例:-CH=CH-)、アルキニレン基(例:-C≡C-)、及びアリーレン基)、上述した官能基群P中の2価の有機基(カーボネート基(-O-CO-O-)、カルボジイミド基(-N=C=N-)、酸無水物基(-CO-O-CO-)、エステル基(-CO-O-又は-O-CO-)、カルボニル基(-CO-)、イミドエステル基(-C(=NR^C)-O-又は-O-C(=NR^C)-))、又は、これらを組み合わせた基が挙げられる。

上記組み合わせた基としては、例えば、-(2価の炭化水素基)-X¹¹¹-

、 $-X^{111}-$ （2価の炭化水素基） $-$ 、 $-$ （2価の炭化水素基） $-X^{111}-$ （2価の炭化水素基） $-$ 、 $-X^{111}-$ （2価の炭化水素基） $-X^{111}-$ （2価の炭化水素基） $-$ 、又は、 $-$ （2価の炭化水素基） $-X^{111}-$ （2価の炭化水素基） $-X^{111}-$ 等が挙げられる。なお、 $-X^{111}-$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^F-$ 、上述した官能基群P中の2価の有機基、又は、これらを組み合わせた基である。上記組み合わせた基の総炭素数は、例えば、1~20であり、1~12が好ましい。

[0158] 上記P¹は、上述した官能基群P中の1価の有機基（ボロン酸基（ $-B(OH)_2$ ）、アルデヒド基（ $-CHO$ ）、イソシアネート基（ $-N=C=O$ ）、イソチオシアネート基（ $-N=C=S$ ）、シアネート基（ $-O-CN$ ）、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基（ $-SO_2Cl$ ）、カルボン酸クロリド基（ $-COCl$ ）、オニウム基、アリアルハライド基、酸無水物基（無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ピロメリット酸、及び、無水トリメリット酸等の1価の酸無水物基が挙げられる。）、カルボン酸基（ $-COOH$ ）、ホスホン酸基（ $-PO(OH)_2$ ）、ホスフィン酸基（ $-HP(O)(OH)$ ）、リン酸基（ $-OP(=O)(OH)_2$ ）、リン酸エステル基（ $-OP(=O)(OR^B)_2$ ）、スルホン酸基（ $-SO_3H$ ）、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基（ $-CN$ ）、ニトロ基（ $-NO_2$ ）、アルコキシシリル基、アクリル基（ $-OCOCH_2=CH_2$ ）、メタクリル基（ $-OCOCH(CH_3)=CH_2$ ）、オキセタニル基、ビニル基（ $-CH=CH_2$ ）、アルキニル基（アルキンから水素原子を一つ除いた基。例えば、エチニル基、及びプロパー2-イン-1-イル基等が含まれる。）、マレイミド基、チオール基（ $-SH$ ）、水酸基（ $-OH$ ）、ハロゲン原子（F原子、Cl原子、Br原子、及びI原子））を表す。

*¹は、上記Xとの結合位置を表す。

[0159] 一般式（B2）： $*^2-L^2-P^2$

一般式（B2）中、L²は、上述した官能基群P中の2価の有機基（カーボネート基（ $-O-CO-O-$ ）、カルボジイミド基（ $-N=C=N-$ ）、酸

無水物基（ $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ ）、エステル基（ $-\text{CO}-\text{O}-$ 又は $-\text{O}-\text{CO}-$ ）、カルボニル基（ $-\text{CO}-$ ）、又はイミドエステル基（ $-\text{C}(\text{=NR}^{\text{C}})-\text{O}-$ 又は $-\text{O}-\text{C}(\text{=NR}^{\text{C}})-$ ）を含む2価の連結基を表す。

上記 L^2 としては、例えば、上述した官能基群P中の2価の有機基、又は、上述した官能基群P中の2価の有機基と、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NR}^{\text{F}}-$ （ R^{F} は、水素原子、又はアルキル基を表す。）、及び2価の炭化水素基（例えば、アルキレン基、アルケニレン基（例： $-\text{CH}=\text{CH}-$ ）、アルキニレン基（例： $-\text{C}\equiv\text{C}-$ ）、及びアリーレン基）からなる群より選ばれる連結基と、を組み合わせた基が挙げられる。

上記組み合わせた基としては、例えば、 $-(2\text{価の炭化水素基})-\text{X}^{112}-$ 等が挙げられる。なお、 $-\text{X}^{112}-$ は、上述した官能基群P中の2価の有機基、又は、上述した官能基群P中の2価の有機基と、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、及び $-\text{NR}^{\text{F}}-$ から選ばれる2価の基とを組み合わせた基である。上記組み合わせた基の総炭素数は、例えば、1~20であり、1~12が好ましい。

[0160] 上記 P^2 は、1価の有機基を表す。上記 P^2 で表される1価の有機基としては、特に限定されず、例えば、アルキル基が挙げられる。アルキル基中の炭素数は、例えば1~10であり、1~6が好ましく、1~3がより好ましい。

*²は、上記Xとの結合位置を表す。

[0161] 一般式(B3)： $*^{31}-L^3-*^{32}$

一般式(B3)中、 L^3 は、上述した官能基群P中の2価の有機基（カーボネート基（ $-\text{O}-\text{CO}-\text{O}-$ ）、カルボジイミド基（ $-\text{N}=\text{C}=\text{N}-$ ）、酸無水物基（ $-\text{CO}-\text{O}-\text{CO}-$ ）、エステル基（ $-\text{CO}-\text{O}-$ 又は $-\text{O}-\text{CO}-$ ）、カルボニル基（ $-\text{CO}-$ ）、又はイミドエステル基（ $-\text{C}(\text{=NR}^{\text{C}})-\text{O}-$ 又は $-\text{O}-\text{C}(\text{=NR}^{\text{C}})-$ ）を含む2価の連結基を表す。

上記 L^3 としては、例えば、上述した官能基群P中の2価の有機基、又は、上述した官能基群P中の2価の有機基と、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NR}^{\text{F}}-$ （ R^{F} は、水素原子、又はアルキル基を表す。）、及び2価の炭化水素基（例えば

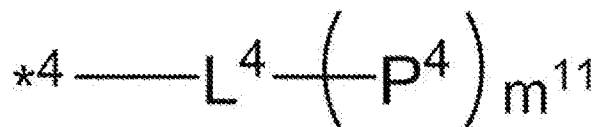
、アルキレン基、アルケニレン基（例： $-\text{CH}=\text{CH}-$ ）、アルキニレン基（例： $-\text{C}\equiv\text{C}-$ ）、及びアリーレン基）からなる群より選ばれる連結基と、を組み合わせた基が挙げられる。

上記組み合わせた基としては、例えば、 $-(2\text{価の炭化水素基})-\text{X}^{113}-$ （2価の炭化水素基） $-$ 、 $-(2\text{価の炭化水素基})-\text{X}^{113}-$ 、 $-\text{X}^{113}-$ （2価の炭化水素基） $-$ 、及び $-\text{X}^{113}-$ （2価の炭化水素基） $-\text{X}^{113}-$ 等が挙げられる。なお、 $-\text{X}^{113}-$ は、上述した官能基群P中の2価の有機基、又は、上述した官能基群P中の2価の有機基と、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、及び $-\text{NR}^{\text{F}}-$ から選ばれる2価の基とを組み合わせた基である。上記組み合わせた基の総炭素数は、例えば、1~20であり、1~12が好ましい。

*³¹及び*³²は、上記Xとの結合位置を表す。つまり、上記L³は、上記Xで表される縮環構造上の異なる2つの炭素とともに環を形成する。

[0162] 一般式（B4）：

[化18]



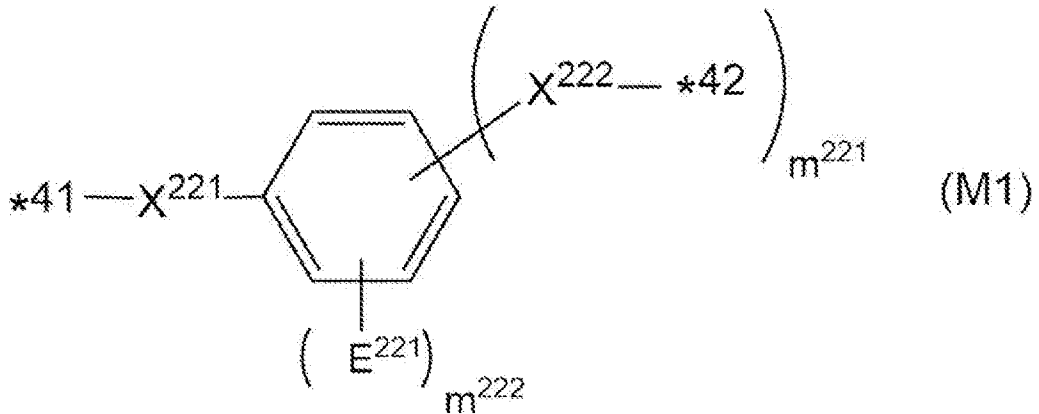
[0163] 一般式（B4）中、L⁴は、m¹¹+1価の連結基を表す。

m¹¹は2以上の整数を表す。m¹¹の上限値としては特に制限されないが、例えば、100以下であり、30以下が好ましく、20以下がより好ましく、15以下が更に好ましい。m¹¹の下限値としては特に制限されないが、4以上が好ましい。

L⁴で表される連結基としては特に制限されないが、例えば、m¹¹+1価の芳香族炭化水素環又は下記一般式（M1）で表される基が挙げられる。

[0164]

[化19]



[0165] 上記一般式 (M1) 中、 X^{221} 及び X^{222} は、それぞれ独立に、単結合又は 2 価の連結基を表す。 X^{221} 及び X^{222} で表される 2 価の連結基としては、上述した一般式 (B1) 中の L^1 で表される 2 価の連結基と同義である。

E^{221} は、置換基を表す。 E^{221} で表される置換基としては、置換基群 Y で例示された基が挙げられる。

m^{221} は、2 ~ 5 の整数を表す。 m^{221} としては、中でも 2 又は 3 が好ましい。

m^{222} は、0 ~ 3 の整数を表す。

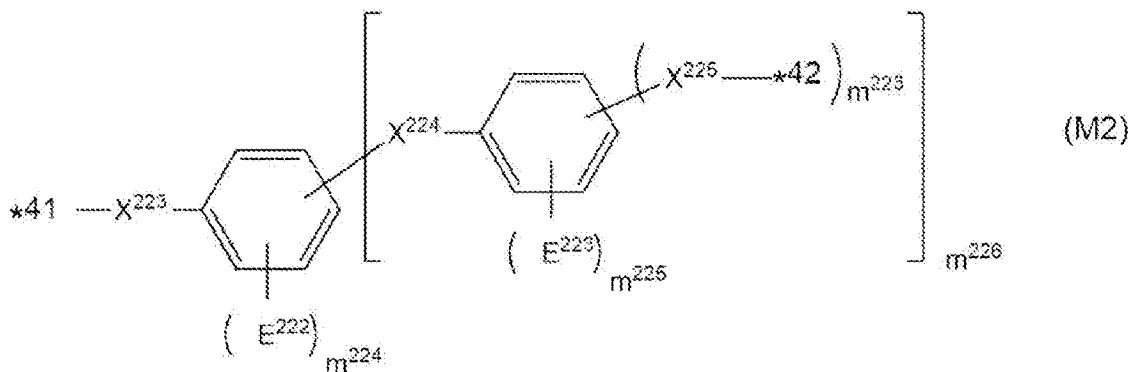
但し、 $m^{221} + m^{222}$ は、2 ~ 5 の整数を表す。

*41 は、上記 X との結合位置を表す。

*42 は、上記 P⁴ との結合位置を表す。

[0166] 上記一般式 (M1) で表される基は、中でも、下記一般式 (M2) で表される基が好ましい。

[0167] [化20]



[0168] 上記一般式 (M 2) 中、 X^{223} 、 X^{224} 、及び X^{225} は、それぞれ独立に、単結合又は2価の連結基を表す。 X^{223} 、 X^{224} 、及び X^{225} で表される2価の連結基としては、上述した一般式 (B 1) 中の L^1 で表される2価の連結基と同義である。

E^{222} 及び E^{223} は、それぞれ独立に、置換基を表す。 E^{222} 及び E^{223} で表される置換基としては、置換基群 Y で例示された基が挙げられる。

m^{223} は、1～5の整数を表す。 m^{223} としては、中でも2又は3が好ましい。

m^{224} は、0～3の整数を表す。

m^{225} は、0～4整数を表す。

m^{226} は、2～5の整数を表す。 m^{226} としては、中でも2又は3が好ましい。

但し、 $m^{224} + m^{226}$ は、2～5の整数を表す。また、 $m^{223} + m^{225}$ は、1～5の整数を表す。

$*^{41}$ は、上記 X との結合位置を表す。

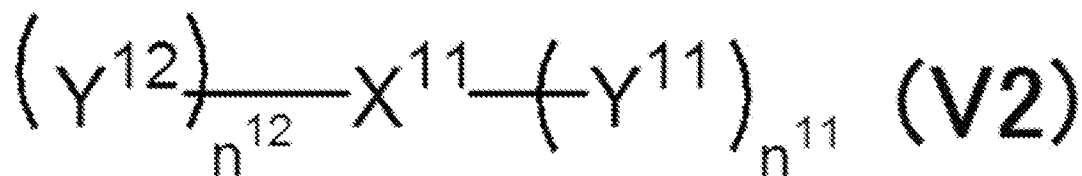
$*^{42}$ は、上記 P^4 との結合位置を表す。

[0169] 上記 P^4 は、上述した一般式 (B 1) 中の P^1 と同義である。

$*^4$ は、上記 X との結合位置を表す。

[0170] (一般式 (V 2) で表される化合物)

[化21]



[0171] 一般式 (V 2) 中、 X^{11} は、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造を有する $n^{11} + n^{12}$ 価の有機基を表す。

上記 X^{11} は、 $n^{11} + n^{12}$ 価の有機基 (n^{11} 、 n^{12} は、それぞれ独立して1

以上の整数)を表す。 n^{11} 、 n^{12} は、それぞれ独立して、1以上の整数であれば特に限定されない。また、 $n^{11} + n^{12}$ の上限は特に限定されないが、15以下の整数であるのが好ましい。中でも、表面修飾無機物の分散性により優れる点で、2~8が好ましく、2~3がより好ましく、2が更に好ましい。

[0172] 上記 X^{11} 中における芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造としては、上述した構造が挙げられ、また好ましい態様も同じである。

[0173] 上記 X^{11} で表される $n^{11} + n^{12}$ 価の有機基としては、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環構造を有しさえすれば特に限定されないが、本発明の効果がより優れる点で、芳香族炭化水素環及び芳香族複素環からなる群より選ばれる2環以上を含む縮環から $n^{11} + n^{12}$ 個の水素原子を引き抜いて形成される基であるのが好ましい。

なお、上記縮環構造は、 Y^{11} 及び Y^{12} 以外に、更に置換基(例えば、置換基群 Y)を有していてもよい。

[0174] 上記 Y^{11} は、下記官能基群 Q から選ばれる官能基を含む。下記官能基群 Q に挙げられる官能基は、上述した官能基群 P に挙げられる官能基の中でも、特に、無機物(特に無機窒化物)への吸着性に優れる傾向がある基に相当する。

また、上記 Y^{12} は、下記官能基群 R から選ばれる官能基を含む。下記官能基群 R に挙げられる官能基は、上述した官能基群 P に挙げられる官能基の中でも、組成物の硬化を促進しやすい機能を有する基に相当する。

[0175] (官能基群 Q)

ボロン酸基($-B(OH)_2$)、アルデヒド基($-CHO$)、イソシアネート基($-N=C=O$)、イソチオシアネート基($-N=C=S$)、シアネート基($-O-CN$)、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基($-SO_2Cl$)、カルボン酸クロリド基($-COCl$)、オニウム基、カーボネート基($-O-CO-O-$)、アリーールハライド基、カルボジイ

ミド基 ($-N=C=N-$)、酸無水物基 ($-CO-O-CO-$ 、又は、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ピロメリット酸、及び無水トリメリット酸等の1価の酸無水物基)、ホスホン酸基 ($-PO(OH)_2$)、ホスフィン酸基 ($-HPO(OH)$)、リン酸基 ($-OP(=O)(OH)_2$)、リン酸エステル基 ($-OP(=O)(OR^B)_2$)、スルホン酸基 ($-SO_3H$)、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基 ($-CN$)、ニトロ基 ($-NO_2$)、エステル基 ($-CO-O-$ 又は $-O-CO-$)、カルボニル基 ($-CO-$)、イミドエステル基 ($-C(=NR_C)-O-$ 又は $-O-C(=NR_C)-$)、及びハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及び、ヨウ素原子)からなる群より選ばれる官能基。

[0176] (官能基群R)

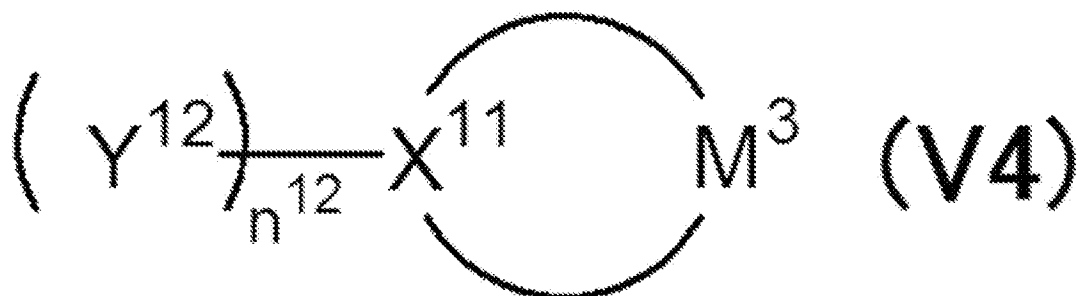
カルボン酸基 ($-COOH$)、アルコキシシリル基、アクリル基 ($-OCCOCH_2=CH_2$)、メタクリル基 ($-OCOCH(CH_3)=CH_2$)、オキセタニル基、ビニル基 ($-CH=CH_2$)、アルキニル基(アルキンから水素原子を一つ除いた基。例えば、エチニル基、及びプロパー-2-イン-1-イル基等が含まれる。)、マレイミド基、チオール基 ($-SH$)、水酸基 ($-OH$)、及びアミノ基からなる群より選ばれる官能基。

[0177] 一般式(V2)中、上記Y¹¹は、具体的に、下記一般式(C1)で表される1価の基若しくは下記一般式(C2)で表される1価の基を表すか、又は、n¹¹が2以上の整数を表す場合には、複数のY¹¹が結合してなる下記一般式(C3)で表される2価の基を表す。

言い換えると、n¹¹が1である場合には、上記Y¹¹は、下記一般式(C1)で表される1価の基又は下記一般式(C2)で表される1価の基を表す。n¹¹が2以上の整数を表す場合には、上記Y¹¹は、下記一般式(C1)で表される1価の基若しくは下記一般式(C2)で表される1価の基を表すか、又は、複数のY¹¹が結合してなる下記一般式(C3)で表される2価の基を表す。なお、n¹¹が2以上の場合、複数あるY¹¹はそれぞれ同じでも、異なってもよい。

[0178] なお、上記 Y^{11} が、下記一般式 (C3) で表される2価の基を表す場合、一般式 (V2) で表される化合物は、下記一般式 (V4) で表される。

[0179] [化22]



[0180] 一般式 (V4) 中、 X^{11} 、 Y^{12} 、及び、 n^{12} は、上述した一般式 (V2) 中の X^{11} 、 Y^{12} 、及び n^{12} と同義である。また、 M^3 は、後述する一般式 (C3) 中の M^3 と同義である。

[0181] 一般式 (C1) : $*^1 - M^1 - Q^1$

一般式 (C1) 中、 M^1 は、単結合又は2価の連結基を表す。 M^1 で表される2価の連結基としては、上述した L^1 と同義であり、また、好ましい態様も同じである。

上記 Q^1 は、上述する官能基群Q中の1価の有機基（ボロン酸基（ $-B(OH)_2$ ）、アルデヒド基（ $-CHO$ ）、イソシアネート基（ $-N=C=O$ ）、イソチオシアネート基（ $-N=C=S$ ）、シアネート基（ $-O-CN$ ）、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基（ $-SO_2Cl$ ）、カルボン酸クロリド基（ $-COCl$ ）、オニウム基、アリールハライド基、酸無水物基（無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ピロメリット酸、及び、無水トリメリット酸等の1価の酸無水物基が挙げられる。）、ホスホン酸基（ $-PO(OH)_2$ ）、ホスフィン酸基（ $-HPO(OH)$ ）、リン酸基（ $-OP(=O)(OH)_2$ ）、リン酸エステル基（ $-OP(=O)(OR^B)_2$ ）、スルホン酸基（ $-SO_3H$ ）、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基（ $-CN$ ）、ニトロ基（ $-NO_2$ ）、又はハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及び、ヨウ素原子）を表す。 $*^1$ は、上記 X^{11} との結合位置を表す。

[0182] 一般式 (C2) : $*^2 - M^2 - Q^2$

一般式 (B 2) 中、 M^2 は、上述した L^2 と同義であり、また、好ましい態様も同じである。上記 Q^2 は、1 価の有機基を表す。 Q^2 で表される1 価の連結基としては、上述した P^2 と同義であり、また、好ましい態様も同じである。 $*^2$ は、上記 X^{11} との結合位置を表す。

[0183] 一般式 (C 3) : $*^{31}-M^3-*^{32}$

一般式 (B 3) 中、 M^3 は、上述した L^3 と同義であり、また、好ましい態様も同じである。 $*^{31}$ 及び $*^{32}$ は、上記 X^{11} との結合位置を表す。つまり、上記 M^3 は、上記 X^{11} で表される縮環構造上の異なる2つの炭素とともに環を形成する。

[0184] 上記 Y^{12} は、下記一般式 (D 1) で表される1 価の基、又は下記一般式 (D 2) で表される1 価の基を表す。

一般式 (D 1) : $*^1-W^1-R^1$

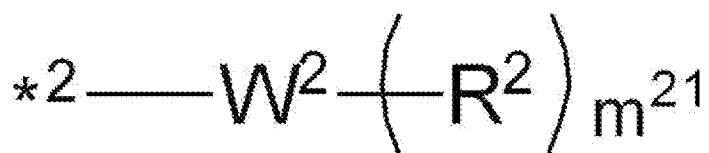
一般式 (D 1) 中、 W^1 は、単結合又は2 価の連結基を表す。 R^1 は、カルボン酸基、アルコキシシリル基、アクリル基、メタクリル基、オキセタニル基、ビニル基、アルキニル基、マレイミド基、チオール基、水酸基、又はアミノ基を表す。 $*^1$ は、上記 X^{11} との結合位置を表す。なお、上記 R^1 は、上述した官能基群R中に挙げた官能基を表す。

W^1 で表される2 価の連結基としては、上述した L^1 と同義であり、また、好ましい態様も同じである。

$*^1$ は、上記 X^{11} との結合位置を表す。

[0185] 一般式 (D 2) :

[化23]



[0186] 一般式 (D 2) 中、 W^2 は、 $m^{21}+1$ 価の連結基を表す。

m^{21} は、2 以上の整数を表す。 m^{21} の上限値としては特に制限されないが、例えば、100以下であり、30以下が好ましく、20以下がより好まし

く、15以下が更に好ましい。m²¹の下限値としては特に制限されないが、4以上が好ましい。

R²は、カルボン酸基、アルコキシシリル基、アクリル基、メタクリル基、オキセタニル基、ビニル基、アルキニル基、マレイミド基、チオール基、水酸基、又はアミノ基を表す。なお、上記R²は、上述した官能基群R中に挙げた官能基を表す。

W²で表されるm²¹+1価の連結基としては、上述したL⁴と同義であり、また、好ましい態様も同じである。

*²は、上記X¹¹との結合位置を表す。

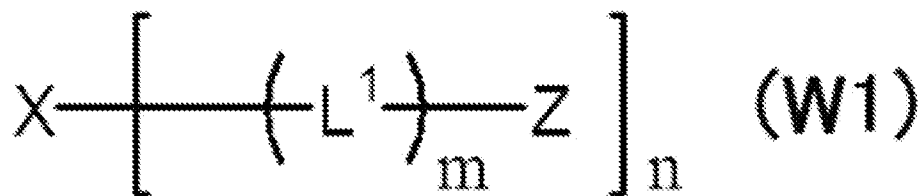
[0187] 上記表面修飾剤Aの分子量は、例えば、150以上であり、表面修飾無機窒化物の分散性により優れる点で、200以上が好ましく、また、溶解度の観点から、2,000以下が好ましく、1,000以下がより好ましい。

[0188] <表面修飾剤B>

また、表面修飾剤は、以下に説明する、表面修飾剤Bであるのも好ましい。

表面修飾剤Bは、下記一般式(W1)で表される化合物である。

[0189] [化24]



[0190] 一般式(W1)中、Xは、置換基を有してもよい、ベンゼン環基又はヘテロ環基を表す。つまり、Xは、置換基を有してもよいベンゼン環基、又は、置換基を有してもよいヘテロ環基を表す。

上記ヘテロ環基としては、特に限定されないが、例えば、脂肪族ヘテロ環基及び芳香族ヘテロ環基が挙げられる。なお、脂肪族ヘテロ環基としては、5員環基、6員環基、若しくは、7員環基、又は、その縮合環基が挙げられる。また、芳香族ヘテロ環基としては、5員環基、6員環基、若しくは、7

員環基、又は、その縮合環基が挙げられる。

なお、上記縮合環基においては、ベンゼン環基等のヘテロ環基以外の環基が含まれていてもよい。

上記脂肪族ヘテロ環基の具体例としては、特に限定されないが、例えば、オキサラン環基、オキサン環基、ピペリジン環基、及び、ピペラジン環基等が挙げられる。

[0191] 上記芳香族ヘテロ環基が含むヘテロ原子としては、例えば、窒素原子、酸素原子、及び、硫黄原子が挙げられる。芳香族ヘテロ環基の炭素数は特に限定されないが、3～20が好ましい。

上記芳香族ヘテロ環基の具体例としては特に限定されないが、フラン環基、チオフェン環基、ピロール環基、オキサゾール環基、イソオキサゾール環基、オキサジアゾール環基、チアゾール環基、イソチアゾール環基、チアジアゾール環基、イミダゾール環基、ピラゾール環基、トリアゾール環基、フラザン環基、テトラゾール環基、ピリジン環基、ピリダジン環基、ピリミジン環基、ピラジン環基、トリアジン環基、テトラジン環基、ベンゾフラン環基、イソベンゾフラン環基、ベンゾチオフェン環基、インドール環基、インドリン環基、イソインドール環基、ベンゾオキサゾール環基、ベンゾチアゾール環基、インダゾール環基、ベンゾイミダゾール環基、キノリン環基、イソキノリン環基、シンノリン環基、フタラジン環基、キナゾリン環基、キノキサリン環基、ジベンゾフラン環基、ジベンゾチオフェン環基、カルバゾール環基、アクリジン環基、フェナントリジン環基、フェナントロリン環基、フェナジン環基、ナフチリジン環基、プリン環基、及び、プテリジン環基等が挙げられる。

Xで表されるヘテロ環基は、芳香族ヘテロ環基であるのが好ましい。

中でも、Xは、ベンゼン環基又はトリアジン環基であるのが好ましく、トリアジン環基がより好ましい。

Xが置換基を有する場合、置換基は後述する特定官能基Bを含むのが好ましい。

一般式 (W1) 中、 n は 3 ~ 6 の整数を表し、 X には、 $[-(L^1)_m-Z]$ で表される基が n 個結合している。

[0192] 一般式 (W1) 中、 $[-(L^1)_m-Z]$ で表される基は、 X と直接結合する基である。

複数存在し得る L^1 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいアリーレン基、エステル基 ($-CO-O-$ 又は $-O-CO-$)、エーテル基 ($-O-$)、チオエステル基 ($-SO-O-$ 又は $-O-SO-$)、チオエーテル基 ($-S-$)、カルボニル基 ($-CO-$)、 $-NR^N-$ 、アゾ基 ($-N=N-$)、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基を表す。

なお、 R^N は、水素原子又は置換基を有していてもよい炭素数 1 ~ 10 の有機基を表す。

[0193] L_1 で表されるアリーレン基の炭素数は、6 ~ 20 が好ましく、6 ~ 10 がより好ましく、6 が更に好ましい。中でも、アリーレン基は、フェニレン基であるのが好ましい。

上記アリーレン基がフェニレン基の場合、隣接する基 (X 、 L_1 、及び、 Z のうちの 2 個の基で、2 個の基が共に L_1 の場合を含む) と結合する位置に特に制限はなく、オルト位、メタ位、及び、パラ位のいずれの位置で結合していてもよく、パラ位で結合しているのが好ましい。上記アリーレン基は置換基を有しても有さなくてもよく、有さないのが好ましい。上記アリーレン基が置換基を有する場合、置換基は後述する特定官能基 B を含むのが好ましい。

L_1 がエステル基の場合、エステル基中の炭素原子は X の側に存在するのが好ましい。 L_1 がチオエステル基の場合、チオエステル基中の硫黄原子は X の側に存在するのが好ましい。

L_1 で表される不飽和炭化水素基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよく、環状構造を有してもよい。不飽和炭化水素基の炭素数は、2 ~ 10 が好ましく、2 ~ 5 がより好ましく、2 ~ 3 が更に好ましく、2 が特に好ましい。ただし、上記炭素数に、上記不飽和炭化水素基が有し得る置換基に含まれる炭素原子

の数は含まない。上記不飽和炭化水素基が有する不飽和結合は、二重結合（ $-C=C-$ ）でも、三重結合（ $-C\equiv C-$ ）でもよい。上記不飽和炭化水素基は置換基を有しても有さなくてもよく、有さないのが好ましい。上記不飽和炭化水素基が置換基を有する場合、置換基は特定官能基Bを含むのが好ましい。

L_1 で表される $-NR^N-$ の R^N が、置換基を有していてもよい炭素数1~10の有機基である場合、 R^N は置換基を有していてもよい炭素数1~10アルキル基であるのが好ましく、置換基を有していてもよい炭素数1~5のアルキル基であるのが好ましく、置換基を有していてもよい炭素数1~3のアルキル基であるのが好ましい。上記アルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよく、環状構造を有してもよい。 R^N は水素原子が好ましい。

[0194] m は0以上の整数を表す。 m は、0~10の整数が好ましく、0~5の整数がより好ましく、0~2の整数が更に好ましく、1~2の整数が特に好ましい。

m が0の場合、 Z は X と直接結合する。

m が1の場合、 L^1 は、置換基を有してもよいアリーレン基、エステル基、エーテル基、チオエステル基、チオエーテル基、カルボニル基、 $-NR^N-$ 、アゾ基、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基であるのが好ましく、置換基を有してもよいアリーレン基、エステル基、エーテル基、カルボニル基、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基であるのがより好ましく、エステル基、エーテル基、カルボニル基、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基であるのが更に好ましい。

m が2の場合、 $[-(L^1)_m-Z]$ は $[-L^1-L^1-Z]$ であり、 X と結合する L^1 は、置換基を有してもよいアリーレン基であるのが好ましい。この場合、 Z と結合する L^1 は、エステル基、エーテル基、チオエステル基、チオエーテル基、カルボニル基、 $-NR^N-$ 、アゾ基、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基であるのが好ましく、エステル基、又は、置換基を有してもよい不飽和炭化水素基であるのがより好ましい。

m が2よりも大きい場合、 $[-(L^1)_m-Z]$ 中に複数存在する L^1 は同一でも異なってもよいが、互いに結合する L^1 同士は異なっているのが好ましい。

[0195] 一般式(W1)中の $-(L^1)_m-$ は、一般式(Lq)で表される基であるのが好ましい。つまり、 $[-(L^1)_m-Z]$ で表される基は、 $[-L^a-Z]$ で表される基であるのが好ましい。

一般式(Lq) $-L^a-$

[0196] L^a は、単結合、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-COO-$ 、フェニレン基、 $-C=C-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $-$ フェニレン基 $-COO-$ 、又は、 $-$ フェニレン基 $-C\equiv C-$ を表す。

[0197] Z は、置換基を有してもよい、アリール基又はヘテロ環基を表す。つまり、 Z は、置換基を有してもよいアリール基、又は、置換基を有してもよいヘテロ環基を表す。

Z で表されるアリール基の炭素数は、6~20が好ましく、6~14がより好ましく、6が更に好ましい。アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、及び、アントラセニル基等が挙げられる。

Z で表されるヘテロ環基としては、上述のXがなり得るヘテロ環基が同様に挙げられる。また、 Z で表されるヘテロ環基は芳香族性を示すのが好ましい。

中でも、 Z は、アリール基であるのが好ましく、フェニル基又はアントラセニル基であるのがより好ましく、フェニル基であるのが更に好ましい。

Z は、置換基を有するのも好ましく、上記置換基が後述する特定官能基Bを含むのがより好ましい。1個の Z が有する置換基の数は、0~5が好ましく、0~2がより好ましく、1~2が更に好ましい。

複数存在する Z のうち少なくとも1個が、特定官能基Bを含む置換基を有するのが好ましい。

表面修飾剤Bは、複数存在する Z の置換基に含まれる特定官能基Bを、合計で、1以上有するのが好ましく、2以上有するのがより好ましく、3以上

有するのが更に好ましい。

表面修飾剤Bが有する、複数存在するZの置換基に含まれる特定官能基Bの合計数の上限に特に制限はないが、15以下が好ましく、10以下がより好ましく、8以下が更に好ましい。

[0198] 上述の通り、一般式(W1)中、nは3~6の整数を表す。複数の $[-(L^1)_m-Z]$ の各基は、同一でも異なってもよい。

つまり、一般式(W1)中、複数存在するmは同一でも異なってもよく、 L^1 が複数存在する場合において複数存在する L^1 は同一でも異なってもよく、複数存在するZは同一でも異なってもよい。

複数存在するmは、いずれも同一であるのも好ましい。また、複数存在するmが、いずれも1以上の整数を表すのが好ましく、いずれも2以上の整数を表すのも好ましい。

複数存在する $[-(L^1)_m-Z]$ は、Zが有する置換基以外いずれの構成も同一であるのも好ましく、Zが有する置換基も含めていずれの構成も同一であるのも好ましい。

nは、3又は6であるのが好ましい。

$[-(L^1)_m-Z]$ 中に、 $(L^1)_m$ でもZでもあり得る基が存在する場合、その基は $(L^1)_m$ であるとする。例えば、 $[-(L^1)_m-Z]$ が、 $[-$ ベンゼン環基-ベンゼン環基-ハロゲン原子]である場合、左側のベンゼン環基は $(L^1)_m$ であって、Zではない。より具体的には、上記の場合、「 $m=1$ 、 L^1 はフェニレン基(アリーレン基)、かつ、Zは置換基としてはハロゲン原子を有するフェニル基(アリール基)」であって、「 $m=0$ 、かつ、Zは置換基としてアリールハライド基を有するフェニル基(アリール基)」ではない。

[0199] また、一般式(W1)で表される表面修飾剤Bは、ベンゼン環基を4個以上有するのが好ましい。例えば、表面修飾剤Bは、トリフェニルベンゼンの構造を有するのも好ましい。

また、一般式(W1)で表される表面修飾剤Bが、ベンゼン環基とトリア

ジン環基とを合計4個以上有するのも好ましい。この場合、例えば、Xがトリアジン環基であるのも好ましい。

[0200] (特定官能基B)

表面修飾剤Bは、特定官能基Bを1個以上有するのが好ましく、2個以上有するのがより好ましい。

特定官能基Bとは、ボロン酸基、アルデヒド基、水酸基、カルボン酸基、イソシアネート基、イソチオシアネート基、シアネート基、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基、カルボン酸クロリド基、オニウム基、カーボネート基、アリールハライド基、カルボジイミド基、酸無水物基（1価の酸無水物基）、ホスホン酸基、ホスフィン酸基、リン酸基、リン酸エステル基、スルホン酸基、ハロゲン原子、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基、ニトロ基、イミドエステル基、アルコキシカルボニル基、アルコキシシリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、オキセタニル基、ビニル基、アルキニル基、マレイミド基、チオール基、アミノ基、及び、シリル基からなる群より選ばれる基である。

中でも、特定官能基Bとしては、水酸基、アミノ基、酸無水物基、チオール基、カルボン酸基、アクリロイル基、メタクリロイル基、又は、ビニル基が好ましい。

[0201] なお、上記水酸基は、 $-OH$ 基が直接炭素原子に結合している基を意図する。例えば、カルボン酸基（ $-COOH$ ）に含まれる形態で存在する $-OH$ 基は、水酸基ではないとする。

上記アルコキシカルボニル基としては、 $-CO-O-R^f$ で表される基であれば特に限定されない。上記 R^f は、アルキル基（直鎖状、分岐鎖状、及び、環状のいずれも含む。）を表す。

R^f で表されるアルキル基の炭素数としては、例えば、1～10が挙げられ、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。

また、特定官能基Bのうち、特定官能基Aと重複する官能基は、特定官能基Aに関して説明した通りである。

[0202] 表面修飾剤Bが、複数の特定官能基Bを有する場合、複数の特定官能基Bは同一でも異なってもよい。

特定官能基Bが存在する位置は特に制限されず、例えば、特定官能基Bは一般式(W1)中のXの置換基に含まれていてもよく、アリーレン基又は不飽和炭化水素基である場合のL¹の置換基に含まれていてもよく、Zの置換基に含まれていてもよい。

なお、特定官能基Bは、特定官能基B以外の基と結合して、1個の置換基を形成してもよい。

また、特定官能基Bは1個の置換基中に複数含まれていてもよい。

[0203] 特定官能基Bを含む置換基としては、一般式(R_x)で表される基、一般式(R_y)で表される基、又は、一般式(R_z)で表される基が好ましい。

[0204] 一般式(R_x) $-Lx^1-Qx$

一般式(R_y) $-Ly^1-Qy$

一般式(R_z) $-Lz^1-Sz-(Lz^2-Qz)$ 。

[0205] 一般式(R_x)中、L_x¹は、単結合又は2価の連結基を表す。

2価の連結基としては特に制限されないが、例えば、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、2価の炭化水素基からなる群より選ばれるいずれか1種又は2種以上を組み合わせた2価の連結基を表す。

上記2価の炭化水素基は、更に置換基(例えば、置換基群Yで例示された基)を有していてもよい。

上記2価の炭化水素基としては、例えば、アルキレン基、アルケニレン基(例： $-CH=CH-$)、アルキニレン基(例： $-C\equiv C-$)、及び、アリーレン基(例：フェニレン基)が挙げられる。上記アルキレン基としては、直鎖状、分岐鎖状、環状のいずれであってもよいが直鎖状が好ましい。また、その炭素数は、1~10が好ましく、1~6がより好ましく、1~4が更に好ましい。

L_x¹としては、単結合、 $-AL-$ 、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-AL-$ 、 $-AL-CO-$ 、 $-O-AL-O-$ 、 $-O-CO-AL-$ 、 $-CO-O-$

AL—、—AL—NH—CO—、—O—AL—O—AL—、—CO—O—AL—O—、又は、—O—AL—O—Ar—が好ましい。

上記ALは、炭素数1～10のアルキレン基（炭素数は、1～6が好ましく、1～4がより好ましい。）を表す。

上記Arは、炭素数6～20アリーレン基（フェニレン基が好ましい）を表す。なお、Lx¹が「—O—AL—O—Ar—」である場合、「—O—AL—O—Ar—」中のArがQxと結合する。

Qxは、1価の特定官能基Bを表す。具体的には、アルデヒド基、水酸基、カルボン酸基、イソシアネート基、イソチオシアネート基、シアネート基、アシルアジド基、コハク酸イミド基、スルホニルクロリド基、カルボン酸クロリド基、オニウム基、アリーールハライド基、ホスホン酸基、ホスフィン酸基、リン酸基、スルホン酸基、リン酸エステル基、ハロゲン原子、酸無水物基、ハロゲン化アルキル基、ニトリル基、ニトロ基、アルコキシカルボニル基、アルコキシシリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、オキセタンニル基、ビニル基、アルキニル基、マレイミド基、チオール基、アミノ基、エポキシ基、及び、シリル基が挙げられる。

[0206] 一般式(Ry)中、Ly¹は、カルボジイミド基、カーボネート基、又は、イミドエステル基を含む2価の連結基を表す。Ly¹で表される2価の連結基は、カルボジイミド基、カーボネート基、又は、イミドエステル基を含んでいればよく、他の連結基との組み合わせでもよい。他の連結基としては、アルキレン基が挙げられる。例えば、Ly¹は、—アルキレン基—Ly³—アルキレン基—であってもよい。Ly³は、カルボジイミド基、カーボネート基、又は、イミドエステル基を表す。

上記Qyは、1価の有機基を表す。上記Qyで表される1価の有機基としては、特に限定されず、例えば、アルキル基が挙げられる。アルキル基中の炭素数は、例えば1～10であり、1～6が好ましく、1～3がより好ましい。

[0207] 一般式(Rz)中、sは2～3の整数を表す。sは、2が好ましい。

[0208] Lz^1 は、上記 Lx^1 が表し得る基を表し、好ましい条件も同様である。

[0209] 複数存在する Lz^2 は、それぞれ独立に、単結合又は2価の連結基を表す。

2価の連結基としては特に制限されないが、例えば、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、及び、2価の炭化水素基からなる群より選ばれるいずれか1種又は2種以上を組み合わせた2価の連結基を表す。

上記2価の炭化水素基は、更に置換基（例えば、置換基群Yで例示された基）を有していてもよい。

上記2価の炭化水素基としては、例えば、アルキレン基、アルケニレン基（例： $-CH=CH-$ ）、アルキニレン基（例： $-C\equiv C-$ ）、及び、アリーレン基（例：フェニレン基）が挙げられる。上記アルキレン基としては、直鎖状、分岐鎖状、及び、環状のいずれであってもよいが直鎖状が好ましい。また、その炭素数は、1~10が好ましく、1~6がより好ましく、1~4が更に好ましい。

Lz^2 としては、単結合、 $-AL-$ 、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-AL-$ 、 $-AL-CO-$ 、 $-O-AL-O-$ 、 $-O-CO-AL-$ 、 $-CO-O-AL-$ 、 $-AL-NH-CO-$ 、 $-O-AL-O-AL-$ 、 $-CO-O-AL-O-$ 、 $-O-AL-O-Ar-$ 、又は、 $-O-Ar-$ が好ましい。

上記ALは、炭素数1~10のアルキレン基（炭素数は、1~6が好ましく、1~4がより好ましい。）を表す。

上記Arは、炭素数6~20アリーレン基（フェニレン基が好ましい）を表す。

[0210] Sz は、 $(s+1)$ 価の連結基を表す。

Sz としては、 $(s+1)$ 価の芳香環基が好ましい。上記芳香環基は芳香族炭化水素環基でも芳香族ヘテロ環基でもよく、ベンゼン環基又はトリアジン環基が好ましい。

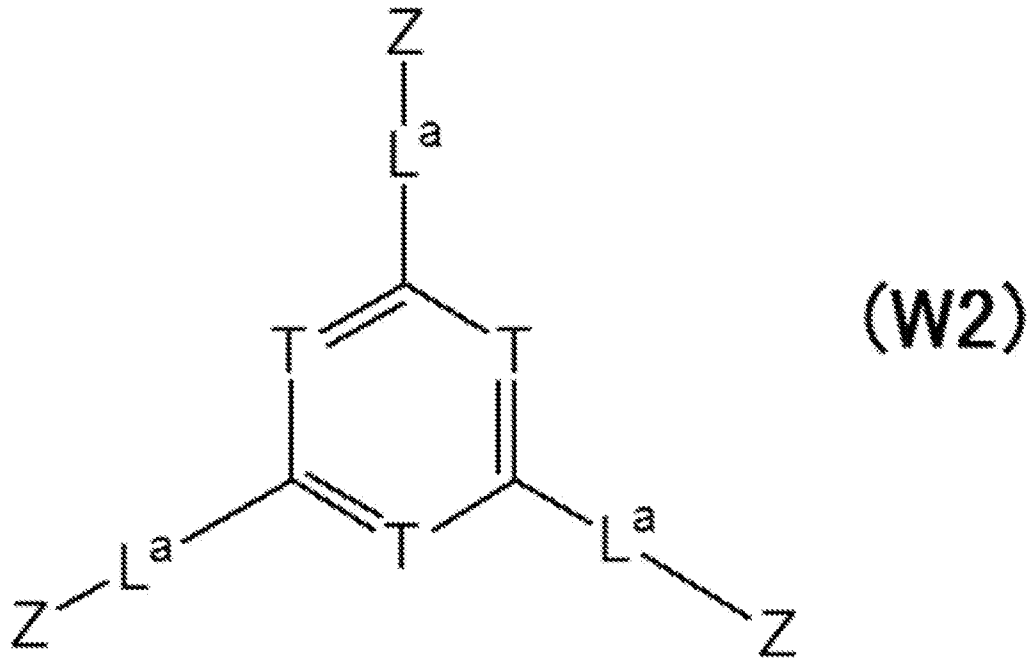
[0211] Qz は、1 価の特定官能基Bを表す。

複数存在する Qz は、それぞれ独立に、上記 Qx が表し得る基を表し、好ましい条件も同様である。

[0212] (一般式 (W2) で表される化合物)

表面修飾剤Bは、下記一般式 (W2) で表される化合物であるのが好ましい。

[0213] [化25]



[0214] 一般式 (W2) 中、 L^a 及び Z の定義は、上述した通りである。なお、複数の L^a は、同一であっても、異なってもよい。複数の Z は、同一であっても、異なってもよい。

[0215] T は、それぞれ独立に、 $-CR^a=$ 、又は、 $-N=$ を表す。 R^a は、水素原子、1価の特定官能基B、又は、 $-L^a-Z$ を表す。 L^a 及び Z の定義は、上述した通りである。

例えば、全ての T が $-CR^a=$ であり、かつ、全ての R^a が $-L^a-Z$ である場合、一般式 (W2) で表される化合物は6個の $-L^a-Z$ で表される基を有する。

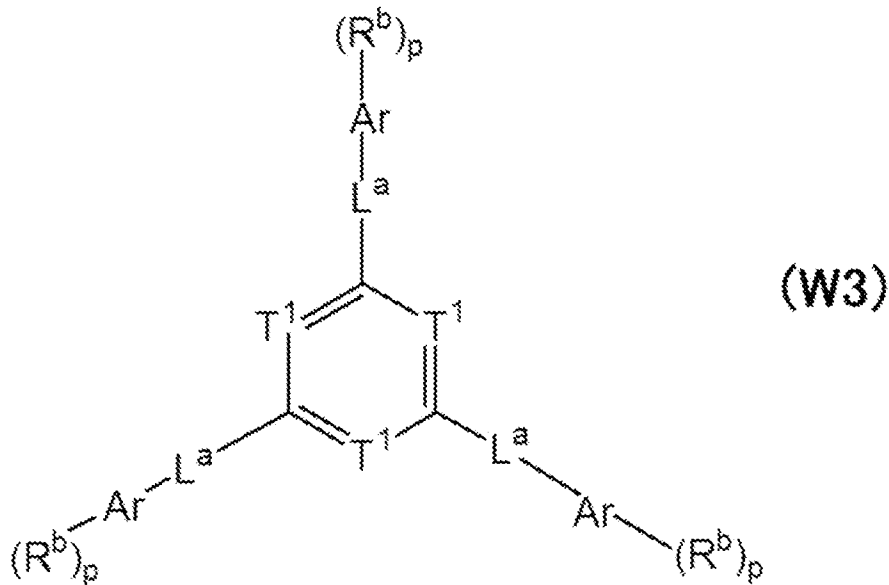
また、全ての T が $-N=$ である場合、一般式 (W2) で表される化合物はトリアジン環を有する。

[0216] (一般式 (W3) で表される化合物)

一般式 (W2) で表される化合物としては、一般式 (W3) で表される化

化合物が好ましい。

[0217] [化26]



[0218] 一般式 (W3) 中、 L^a の定義は、上述した通りである。なお、複数の L^a は、同一であっても、異なってもよい。

A_r は、それぞれ独立に、アリール基を表す。アリール基の好適態様としては、 Z で表されるアリール基が挙げられる。

R^b は、それぞれ独立に、特定官能基 B を含む置換基を表す。特定官能基 B の定義は、上述した通りである。また、特定官能基 B を含む置換基としては、一般式 (R_x) で表される基、一般式 (R_y) で表される基、又は、一般式 (R_z) で表される基が好ましい。

p は、それぞれ独立に、0~5の整数を表す。 p は、0~2が好ましい。中でも、一般式 (W3) 中の3つの p のうち、2つの p が0で、かつ、1つの p が1である態様1、又は、3つの p が全て1である態様2が好ましい。

[0219] 一般式 (W3) 中、 T^1 は、それぞれ独立に、 $-C R^c=$ 、又は、 $-N=$ を表す。 R^c は、水素原子、1価の特定官能基 B 、又は $-L^a-A_r-(R^b)_p$ を表す。 L^a 、 A_r 、 R^b 及び p の定義は、上述した通りである。

[0220] 上記表面修飾剤 B の分子量は、表面修飾無機窒化物の分散性により優れる点から、300以上が好ましく、350以上がより好ましい。また、上記表

面修飾剤Bの分子量は、溶解度に優れる点から、3000以下が好ましく、2000以下がより好ましい。

表面修飾剤Bは、公知の方法に従って合成できる。

[0221] <その他の表面修飾剤>

また、組成物は、（好ましくは、無機物が無機酸化物（酸化アルミニウム等）を含む場合において、）表面修飾剤として有機シラン分子（好ましくはアルコキシシリル基を有する化合物）を含むのも好ましい。上記有機シラン分子としては、表面修飾剤A、表面修飾剤B、及び、これらのいずれにも該当しないその他の表面修飾剤が挙げられる。

上記その他の表面修飾剤は無機酸化物用表面修飾剤として使用するのが好ましく、酸化アルミニウム用表面修飾剤として使用するのがより好ましい。

上記その他の表面修飾剤である有機シラン分子としては、例えば、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリエトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリエトキシシラン、及び、3-ウレイドプロピルトリエトキシシランが挙げられる。

[0222] 表面修飾剤は、1種単独で使用してもよく2種以上使用してもよい。

組成物が表面修飾剤を含む場合、表面修飾剤の含有量は、全無機物に対して、0.01~10質量%が好ましく、0.10~5質量%がより好ましい。

無機窒化物用表面修飾剤（好ましくは表面修飾剤A及び表面修飾剤B）の含有量は、全無機窒化物（好ましくは、窒化ホウ素及び／又は窒化アルミニウム）に対して、0.01~10質量%が好ましく、0.10~5質量%がより好ましい。

表面修飾剤としての有機シラン分子（好ましくはその他の表面修飾剤である有機シラン分子）の含有量は、全無機酸化物（好ましくは酸化アルミニウム）に対して、0.01~10質量%が好ましく、0.10~5質量%がよ

り好ましい。

[0223] [硬化促進剤]

組成物は、更に、硬化促進剤を含んでいてもよい。

硬化促進剤の種類は制限されず、例えば、トリフェニルホスフィン、三フッ化ホウ素アミン錯体、及び、特開2012-67225号公報の段落0052に記載の化合物が挙げられる。その他にも、2-メチルイミダゾール（商品名；2MZ）、2-ウンデシルイミダゾール（商品名；C11-Z）、2-ヘプタデシルイミダゾール（商品名；C17Z）、1,2-ジメチルイミダゾール（商品名；1,2DMZ）、2-エチル-4-メチルイミダゾール（商品名；2E4MZ）、2-フェニルイミダゾール（商品名；2PZ）、2-フェニル-4-メチルイミダゾール（商品名；2P4MZ）、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール（商品名；1B2MZ）、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール（商品名；1B2PZ）、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール（商品名；2MZ-CN）、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール（商品名；C11Z-CN）、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテイト（商品名；2PZCNS-PW）、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン（商品名；2MZ-A）、2,4-ジアミノ-6-[2'-ウンデシルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン（商品名；C11Z-A）、2,4-ジアミノ-6-[2'-エチル-4'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン（商品名；2E4MZ-A）、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジンイソシアヌル酸付加物（商品名；2MA-OK）、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール（商品名；2PHZ-PW）、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール（商品名；2P4MHZ-PW）、及び、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール（商品名；2PZ-CN）などのイミダゾール系硬化促進剤等が挙げられる（いずれも四国化成工業（株）製）。

硬化促進剤は、1種単独で使用してもよく2種以上使用してもよい。

硬化促進剤の含有量は、全エポキシ化合物に対して、0.01～10質量%が好ましく、0.10～5質量%がより好ましい。

[0224] [分散剤]

組成物は、更に、分散剤を含んでいてもよい。

組成物が分散剤を含むと、エポキシ化合物及びフェノール化合物を含む組成物中での無機物の分散性が向上し、より優れた熱伝導率と接着性を実現できる。

[0225] 分散剤としては、通常使用される分散剤から適宜選択できる。例えば、DISPERBYK-106 (BYK-Chemie GmbH製)、DISPERBYK-111 (BYK-Chemie GmbH製)、ED-113 (楠本化成株式会社製)、アジスパーPN-411 (味の素ファインテクノ製)、及び、REB122-4 (日立化成工業製)等が挙げられる。

分散剤は1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

分散剤の含有量は、全無機物に対して、0.01～10質量%が好ましく、0.1～5質量%がより好ましい。

[0226] [溶媒]

組成物は、更に、溶媒を含んでいてもよい。

溶媒の種類は特に制限されず、有機溶媒であるのが好ましい。有機溶媒としては、例えば、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、酢酸エチル、メチルエチルケトン、ジクロロメタン、及び、テトラヒドロフラン等が挙げられる。

組成物が溶媒を含む場合、溶媒の含有量は、組成物の固形分濃度を、20～90質量%とする量が好ましく、30～85質量%とする量がより好ましく、40～85質量%とする量が更に好ましく、50～80質量%とする量が特に好ましい。

[0227] [組成物の製造方法]

組成物の製造方法は特に制限されず、公知の方法を採用でき、例えば、上

述した各種成分を混合して製造できる。混合する際には、各種成分を一括で混合しても、順次混合してもよい。

成分を混合する方法に特に制限はなく、公知の方法を使用できる。混合に使用する混合装置は、液中分散機が好ましく、例えば、自転公転ミキサー、高速回転せん断型攪拌機等の攪拌機、コロイドミル、ロールミル、高圧噴射式分散機、超音波分散機、ビーズミル、及び、ホモジナイザーが挙げられる。混合装置は1種単独で使用してもよく、2種以上使用してもよい。混合の前後に、及び／又は、同時に、脱気処理を行ってもよい。

[0228] [組成物の硬化方法]

本発明の組成物を硬化処理して本発明の熱伝導材料が得られる。

組成物の硬化方法は、特に制限されないが、熱硬化反応が好ましい。

熱硬化反応の際の加熱温度は特に制限されない。例えば、50～250℃の範囲で適宜選択すればよい。また、熱硬化反応を行う際には、温度の異なる加熱処理を複数回にわたって実施してもよい。

硬化処理は、フィルム状又はシート状とした組成物について行うのが好ましい。具体的には、例えば、組成物を塗布成膜し硬化反応を行えばよい。

硬化処理を行う際は、基材上に組成物を塗布して塗膜を形成してから硬化させるのが好ましい。この際、基材上に形成した塗膜に、更に異なる基材を接触させてから硬化処理を行ってもよい。硬化後に得られた硬化物（熱伝導材料）は、基材の一方又は両方と分離してもよいし分離しなくてもよい。

また、硬化処理を行う際に、別々の基材上に組成物を塗布して、それぞれ塗膜を形成し、得られた塗膜同士を接触させた状態で硬化処理を行ってもよい。硬化後に得られた硬化物（熱伝導材料）は、基材の一方又は両方と分離してもよいし分離しなくてもよい。

硬化処理の際には、プレス加工を行ってもよい。プレス加工に使用するプレスに制限はなく、例えば、平板プレスを使用してもよいしロールプレスを使用してもよい。

ロールプレスを使用する場合は、例えば、基材上に塗膜を形成して得た塗

膜付き基材を、2本のロールが対向する1対のロールに挟持し、上記1対のロールを回転させて上記塗膜付き基材を通過させながら、上記塗膜付き基材の膜厚方向に圧力を付加するのが好ましい。上記塗膜付き基材は、塗膜の片面にのみ基材が存在していてもよいし、塗膜の両面に基材が存在していてもよい。上記塗膜付き基材は、ロールプレスに1回だけ通過させてもよいし複数回通過させてもよい。

平板プレスによる処理とロールプレスによる処理とは一方のみを実施してもよいし両方を実施してもよい。

[0229] また、硬化処理は、組成物を半硬化状態にした時点で終了してもよい。半硬化状態の本発明の熱伝導材料を、使用されるデバイス等に接触するように配置した後、更に加熱等により硬化を進行させ、本硬化させてもよい。上記本硬化させる際の加熱等によって、デバイスと本発明の熱伝導材料とが接着するのも好ましい。

硬化反応を含む熱伝導材料の作製については、「高熱伝導性コンポジット材料」（シーエムシー出版、竹澤由高著）を参照できる。

[0230] 熱伝導材料の形状に特に制限はなく、用途に応じて様々な形状に成形できる。成形された熱伝導材料の典型的な形状としては、例えば、シート状が挙げられる。

つまり、本発明の熱伝導材料は、熱伝導シートであるのも好ましい。

また、本発明の熱伝導材料の熱伝導性は異方的ではなく等方的であるのが好ましい。

[0231] 熱伝導材料は、絶縁性（電気絶縁性）であるのが好ましい。言い換えると、本発明の組成物は、熱伝導性絶縁組成物であるのが好ましい。

例えば、熱伝導材料の23℃相対湿度65%における体積抵抗率は、 $10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上が好ましく、 $10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上がより好ましく、 $10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上が更に好ましい。上限は特に制限されないが、通常 $10^{18} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下である。

[0232] [熱伝導材料の用途]

本発明の熱伝導材料は放熱シート等の放熱材として使用でき、各種デバイスの放熱用途に使用できる。より具体的には、デバイス上に本発明の熱伝導材料を含む熱伝導層を配置して熱伝導層付きデバイスを作製して、デバイスからの発熱を効率的に熱伝導層で放熱できる。

本発明の熱伝導材料は十分な熱伝導性を有するとともに、高い耐熱性を有しているため、パーソナルコンピュータ、一般家電、及び、自動車等の様々な電気機器に用いられているパワー半導体デバイスの放熱用途に適している。

更に、本発明の熱伝導材料は、半硬化状態であっても十分な熱伝導性を有するため、各種装置の部材の隙間等の、光硬化のための光を到達させるのが困難な部位に配置する放熱材としても使用できる。また、接着性にも優れるため、熱伝導性を有する接着剤としての使用も可能である。

[0233] 本発明の熱伝導材料は、本組成物から形成される部材以外の、他の部材と組み合わせて使用されてもよい。

例えば、シート状の熱伝導材料（熱伝導シート）は、本組成物から形成された層の他の、シート状の支持体と組み合わせられていてもよい。

シート状の支持体としては、プラスチックフィルム、金属フィルム、又は、ガラス板が挙げられる。プラスチックフィルムの材料としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステル、ポリカーボネート、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン、ポリアミド、ポリオレフィン、セルロース誘導体、及び、シリコンが挙げられる。金属フィルムとしては、銅フィルムが挙げられる。

シート状の熱伝導材料（熱伝導シート）の膜厚は、100～300 μm が好ましく、150～250 μm がより好ましい。

実施例

[0234] 以下に実施例に基づいて本発明を更に詳細に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、及び、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更できる。したがって、本発明の範囲は以下に示す実施

例により限定的に解釈されるべきではない。

[0235]〔組成物の調製及び評価〕

〔各種成分〕

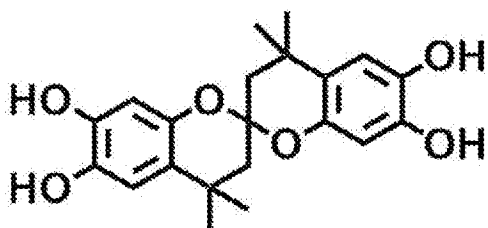
以下に、実施例及び比較例で使用了各種成分を示す。

<フェノール化合物>

以下に、実施例及び比較例で使用了フェノール化合物を示す。

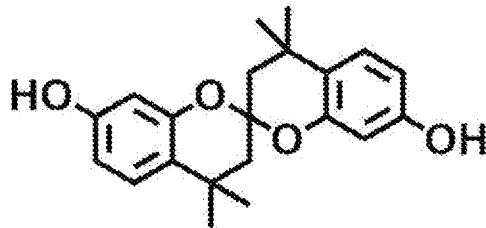
[0236]

[化27]



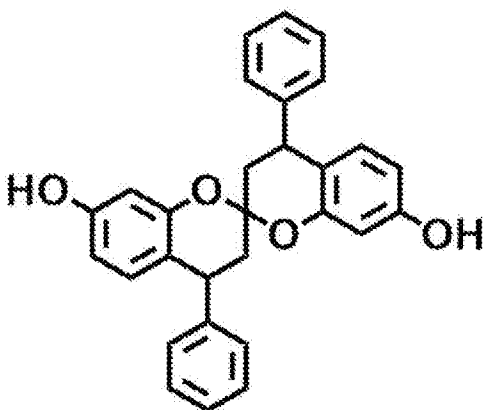
Molecular Weight: 372.42

A-1



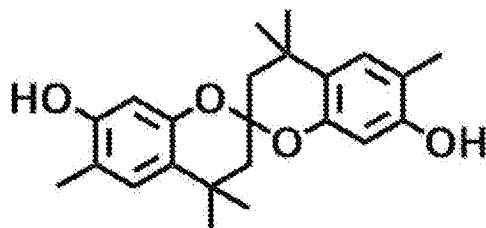
Molecular Weight: 340.42

A-2



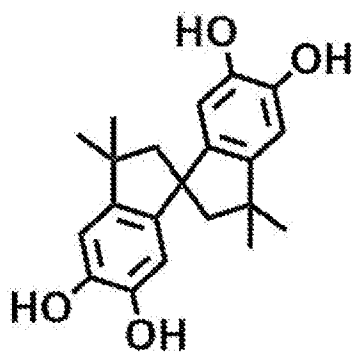
Molecular Weight: 436.51

A-3



Molecular Weight: 368.47

A-4



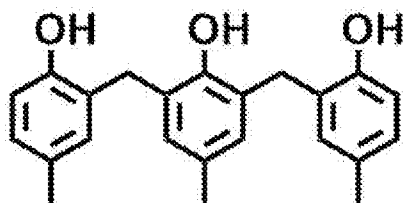
Molecular Weight: 340.42

A-5



Molecular Weight: 336.48

A-6



Molecular Weight: 348.44

D-1

[0237] <エポキシ化合物>

以下に、実施例及び比較例で使用したエポキシ化合物を示す。

なお、下記B-5は2種類のエポキシ化合物の混合物である（商品名：エポトートZX-1059、東都化成株式会社製）。

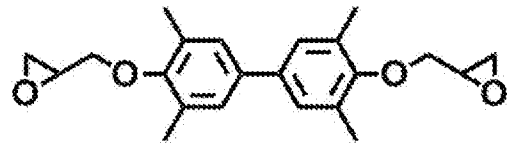
[0238]

[化28]



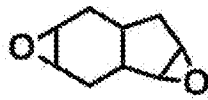
Molecular Weight: 298.34

B-1



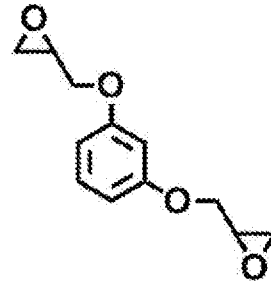
Molecular Weight: 354.45

B-2



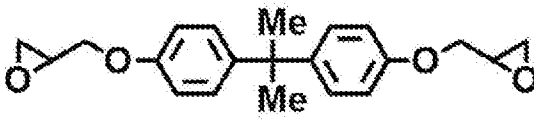
Molecular Weight: 152.19

B-3



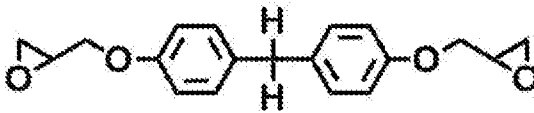
Molecular Weight: 222.24

B-4

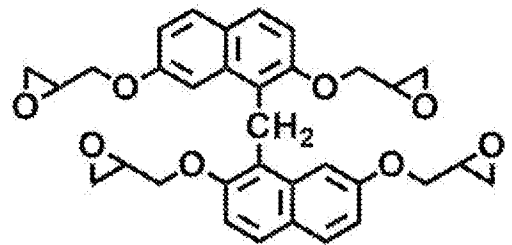


Molecular Weight: 340.42

B-5

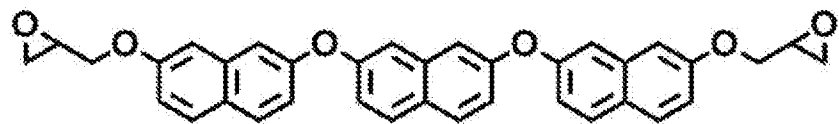


Molecular Weight: 312.37



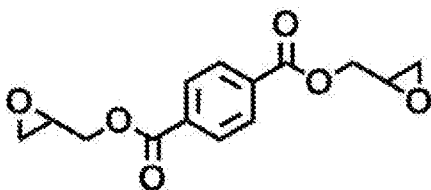
Molecular Weight: 556.61

B-6



Molecular Weight: 556.61

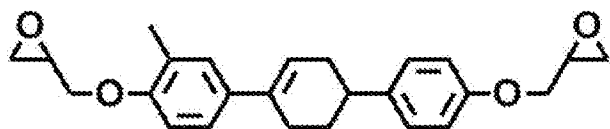
B-7



Molecular Weight: 278.26

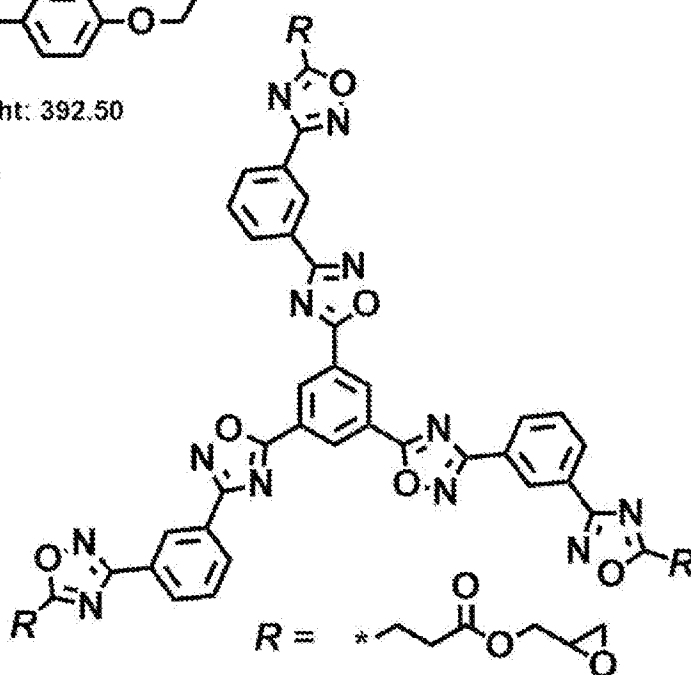
B-8

[0239] [化29]



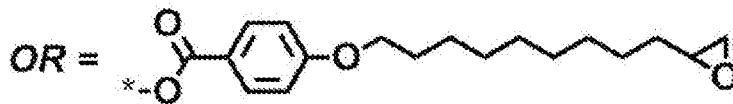
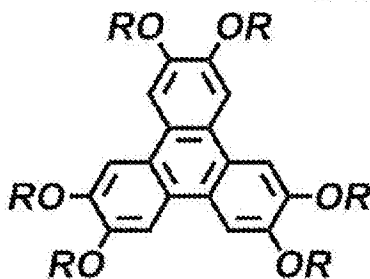
Molecular Weight: 392.50

B-9



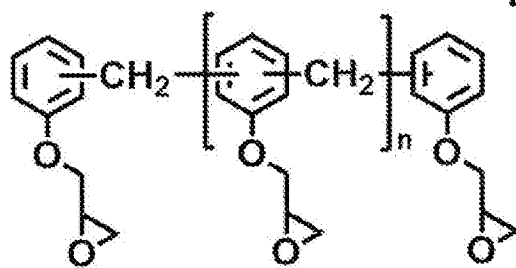
Molecular Weight: 1099

B-10

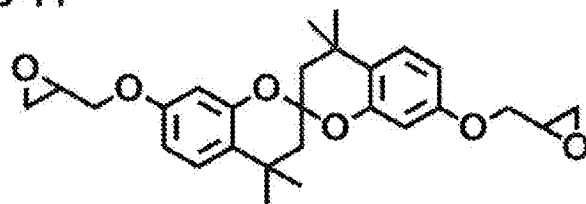


Molecular Weight: 2055

B-11



n ≒ 5
B-12



Molecular Weight: 452.55

B-13

[0240] <無機物>

以下に、実施例及び比較例で使用した無機物を示す。

「PTX-60」：凝集状窒化ホウ素（平均粒径：60 μm 、モーメンティブ製）

「PT-110」：平板状窒化ホウ素（平均粒径：45 μm 、モーメンティブ製）

「AA-3」：酸化アルミニウム（平均粒径：3 μm 、住友化学製）

「AA-04」：酸化アルミニウム（平均粒径：0.4 μm 、住友化学製）

「S-50」：窒化アルミニウム（平均粒径：55 μm 、MARUWA製）

「HP40 MF100」：凝集状窒化ホウ素（平均粒径：40 μm 、水島合金鉄製）

[0241] <硬化促進剤>

以下に、実施例及び比較例で使用した硬化促進剤を示す。

「TPP」：トリフェニルホスフィン

「2PZ-CN」：1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール（四国化成工業製）

「2PHZ-PW」：2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール（四国化成工業製）

[0242] <溶媒>

溶媒として、シクロペンタノンを使用した。

[0243] <分散剤>

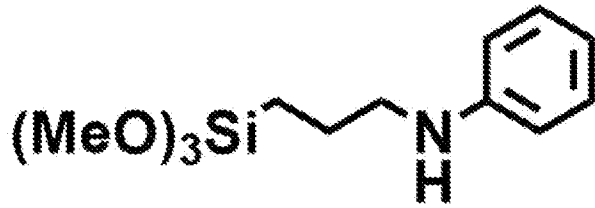
分散剤として、DISPERBYK-106（酸性基を有するポリマー塩）を使用した。

[0244] <酸化アルミニウム用表面処理剤（有機シラン分子）>

酸化アルミニウム用表面修飾剤として、下記化合物を使用した。

[0245]

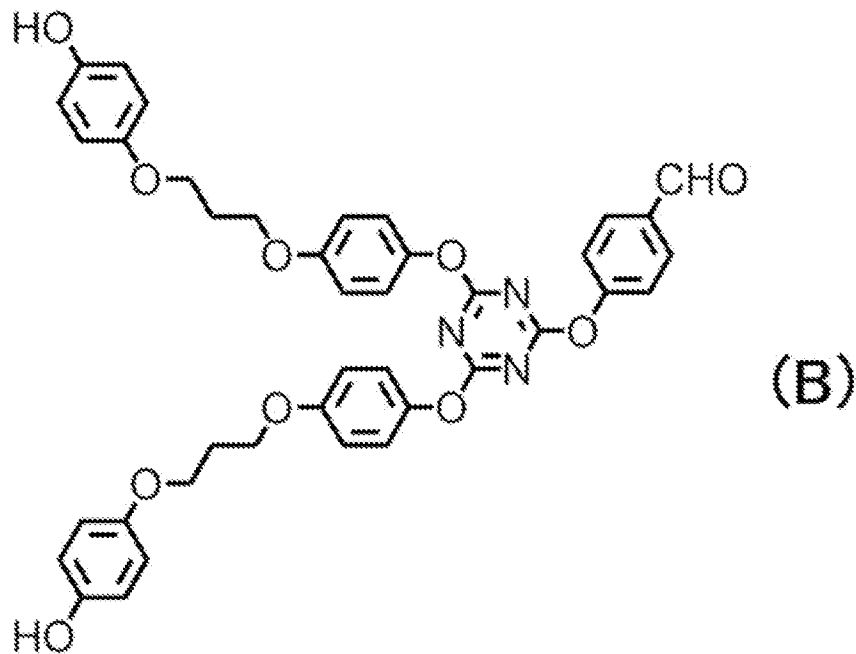
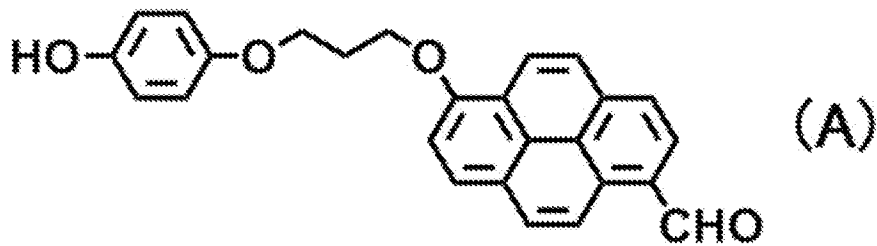
[化30]



[0246] <無機窒化物用表面修飾剤>

以下に、実施例及び比較例で使用した無機窒化物用表面修飾剤を示す。

[0247] [化31]



[0248] [組成物の調製]

下記表 1 に示す組み合わせのエポキシ化合物とフェノール化合物とを、当量（エポキシ化合物のエポキシ基の数と、フェノール化合物の水酸基の数とが等しくなる量）で配合した硬化液を調製した。

上記硬化液、溶媒、分散剤、表面修飾剤（酸化アルミニウム用表面修飾剤、無機窒化物用表面修飾剤）、及び、硬化促進剤の順で混合した後、無機物を添加した。得られた混合物を自転公転ミキサー（THINKY社製、あわとり練太郎ARE-310）で5分間処理して、各実施例又は比較例の組成物（熱伝導材料形成用組成物）を得た。

[0249] ここで、溶媒の添加量は、組成物の固形分濃度が50～80質量%になる量とした。

なお、組成物の固形分濃度は、組成物の粘度がそれぞれ同程度になるように、上記範囲内で組成物ごとに調整した。

硬化促進剤の添加量は、組成物中の硬化促進剤の含有量が、エポキシ化合物の含有量に対して、1質量%となる量とした。使用した硬化促進剤の種類を表1に示す。

無機物の添加量（全無機物の合計）は、組成物中の無機物の含有量が、組成物の全固形分に対して、表1に示す値（質量%）になる量とした。

また、無機物は、各無機物の含有量の比（質量比）が表1に示す関係を満たすように混合して使用した。

分散剤の添加量は、組成物中の分散剤の含有量が、無機物の含有量に対して、0.2質量%となる量とした。

酸化アルミニウム用表面修飾剤の添加量は、組成物中の酸化アルミニウム用表面修飾剤の含有量が、酸化アルミニウムの含有量（AA-3とAA04との合計含有量）に対して、0.2質量%となる量とした。なお、組成物が酸化アルミニウムを含まない場合、酸化アルミニウム用表面修飾剤は使用しない。

無機窒化物用表面修飾剤を使用する場合、無機窒化物用表面修飾剤の添加量は、組成物中の無機窒化物用表面修飾剤の含有量が、無機窒化物の含有量（PTX-60、PT-110、HP-40 MF100、S-50の合計添加量）に対して、0.3質量%となる量とした。

[0250] [評価]

<熱伝導性>

アプリケーションを用いて、離型処理したポリエステルフィルム（NP-100A パナック社製、膜厚100 μ m）の離型面上に、調製した組成物を均一に塗布し、120 $^{\circ}$ Cで5分間放置して塗膜を得た。

このような塗膜付きポリエステルフィルムを2枚作製し、2枚の塗膜付きポリエステルフィルム同士を塗膜面同士で貼り合せてから、空気下で熱プレス（熱板温度65 $^{\circ}$ C、圧力12MPaで1分間処理）することで半硬化膜を得た。得られた半硬化膜を空気下で熱プレス（熱板温度160 $^{\circ}$ C、圧力12MPaで20分間処理した後、更に、常圧下で180 $^{\circ}$ C90分）で処理して塗膜を硬化し、樹脂シートを得た。樹脂シートの両面にあるポリエステルフィルムを剥がし、平均膜厚200 μ mの熱伝導性シートを得た。

[0251] 各組成物を用いて得られた、それぞれの熱伝導性シートを用いて、熱伝導性評価を実施した。下記の方法で熱伝導率の測定を行い、下記の基準に従って熱伝導性を評価した。

[0252] （熱伝導率（W/m \cdot k）の測定）

（1）NETZSCH社製の「LFA467」を用いて、レーザーフラッシュ法で熱伝導性シートの厚み方向の熱拡散率を測定した。

（2）メトラー・トレド社製の天秤「XS204」を用いて、熱伝導性シートの比重をアルキメデス法（「固体比重測定キット」使用）で測定した。

（3）セイコーインスツル社製の「DSC320/6200」を用い、10 $^{\circ}$ C/分の昇温条件の下、25 $^{\circ}$ Cにおける熱伝導性シートの比熱を求めた。

（4）得られた熱拡散率に比重及び比熱を乗じて、熱伝導性シートの熱伝導率を算出した。

[0253] （評価基準）

測定された熱伝導率を下記基準に照らして区分し、熱伝導性を評価した。

「A+」：15W/m \cdot K以上

「A」：10W/m \cdot K以上15W/m \cdot K未満

「B」：8W/m \cdot K以上10W/m \cdot K未満

「C」： $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上 $8\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

「D」： $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 未満

結果を表1に示す。

[0254] <絶縁性>

上記「熱伝導性」の評価と同様にして作製した熱伝導性シートの、 23°C 相対湿度65%における体積抵抗値を、ハイレスタMCP-HT450型（株）三菱化学アナリテック製）を用いて測定した。

[0255] （評価基準）

測定された熱伝導性シート体積抵抗値を下記基準に照らして区分し、絶縁性を評価した。

「A」： $10^{14}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上

「B」： $10^{12}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上 $10^{14}\Omega\cdot\text{cm}$ 未満

「C」： $10^{10}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上 $10^{12}\Omega\cdot\text{cm}$ 未満

「D」： $10^{10}\Omega\cdot\text{cm}$ 未満

[0256] [結果]

以下、表1を示す。

表1中、「フェノール化合物」の欄における「構造」の欄は、使用したフェノール化合物の構造を示す。「S1」はフェノール化合物が一般式（1）で表される化合物であることを意味する。「S」はフェノール化合物が、一般式（1）で表される化合物以外のスピロフェノール化合物であることを意味する。「-」は、フェノール化合物がスピロフェノール化合物ではないことを意味する。

「エポキシ化合物」の欄における「構造」の欄は、使用したエポキシ化合物の構造を示す。「S1」はエポキシ化合物が一般式（1E）で表される化合物であることを意味する。「-」は、エポキシ化合物がスピロエポキシ化合物ではないことを意味する。

「官能基数」の欄は、使用したフェノール化合物の水酸基含有量（ mmol/g ）を示す。

「表面修飾剤種類」の欄は、無機窒化物用表面修飾剤の使用の有無、及び、無機窒化物用表面修飾剤を使用した場合における使用した無機窒化物用表面修飾剤の種類を示す。

[0257] [表1]

表1	組成物の特徴											評価	
	フェノール化合物				球状/柱状		酸化促進剤	無機窒化物 (質量%)	無機窒化物含有率 (質量%)	表面修飾剤	製造法	評価	評価
	種類	構造	分子量	分子量 (標準偏差)	構造	構造							
実施例1	A-1	S1	372	10.0	B-2	-	TPP	PTX-60/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	A	A+	A	
実施例2	A-1	S1	372	10.0	B-2	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例3	A-1	S1	372	10.0	B-2	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例4	A-1	S1	372	10.0	B-2	-	3PHZ-PW	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例5	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	PTX-60/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	A	A+	A	
実施例6	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	TPP	PTX-60/AA-3/AA-04 ~60/30/10	79	A	A+	A	
実施例7	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	PTX-60/AA-3/AA-04 ~60/30/10	78	A	A+	A	
実施例8	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	TPP	PI-110/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	A	A+	A	
実施例9	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例10	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	A	A+	A	
実施例11	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	70	A	A+	A	
実施例12	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	78	A	A+	A	
実施例13	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例14	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	A	A+	A	
実施例15	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	70	A	A+	A	
実施例16	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	78	A	A+	A	
実施例17	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	B	A+	A	
実施例18	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	70	B	A+	A	
実施例19	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	HPF	HP-40 MF100のみ	78	B	A+	A	
実施例20	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例21	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	3PHZ-PW	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例22	A-1	S1	372	10.0	B-4	-	TPP	S-60/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	B	A	
実施例23	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	TPP	PTX-60のみ	63	なし	A	A	
実施例24	A-1	S1	372	10.0	B-1	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例25	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	HPF	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例26	A-1	S1	372	10.0	B-5	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例27	A-1	S1	372	10.0	B-6	-	HPF	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例28	A-1	S1	372	10.0	B-7	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例29	A-1	S1	372	10.0	B-2	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例30	A-1	S1	372	10.0	B-9	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例31	A-1	S1	372	10.0	B-10	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例32	A-1	S1	372	10.0	B-11	-	HPF	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例33	A-1	S1	372	10.0	B-12	-	TPP	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	A	A	
実施例34	B-1	-	384	7.0	B-10	S1	HPF	HP-40 MF100/AA-3/AA-04 ~60/30/10	63	なし	B	A	
実施例35	A-1	S1	372	10.0	B-1	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例36	A-1	S1	372	10.0	B-1	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例37	A-1	S1	372	10.0	B-1	-	3PHZ-PW	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例38	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例39	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例40	A-1	S1	372	10.0	B-3	-	3PHZ-PW	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例41	A-1	S1	372	10.0	B-5	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例42	A-1	S1	372	10.0	B-5	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例43	A-1	S1	372	10.0	B-5	-	3PHZ-PW	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例44	A-1	S1	372	10.0	B-8	-	HPF	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	
実施例45	A-1	S1	372	10.0	B-6	-	3PZ-CN	HP-40 MF100のみ	63	なし	A	A	

[0258]

[表2]

表1 (備考)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				球形化合物		酸化促進剤	無機物配合 (質量%)	無機物含有率 (質量%)	表面積 (m ² /g)		吸着率 (%)
	種類	構造	分子量	密度 (g/mol)	種類	構造						
実施例46	A-1	S1	372	10.0	B-8	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例47	A-1	S1	372	10.0	B-7	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例48	A-1	S1	372	10.0	B-7	-	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例49	A-1	S1	372	10.0	B-7	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例50	A-1	S1	372	10.0	B-8	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例51	A-1	S1	372	10.0	B-8	-	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例52	A-1	S1	372	10.0	B-8	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例53	A-1	S1	372	10.0	B-9	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例54	A-1	S1	372	10.0	B-9	-	2PZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例55	A-1	S1	372	10.0	B-9	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例56	A-1	S1	372	10.0	B-10	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例57	A-1	S1	372	10.0	B-10	-	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例58	A-1	S1	372	10.0	B-10	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例59	A-1	S1	372	10.0	B-11	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例60	A-1	S1	372	10.0	B-11	-	2PZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例61	A-1	S1	372	10.0	B-11	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例62	A-1	S1	372	10.0	B-12	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例63	A-1	S1	372	10.0	B-12	-	2PZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例64	A-1	S1	372	10.0	B-12	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	A	A
実施例65	D-1	-	384	7.8	B-13	S1	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例66	D-1	-	384	7.8	B-13	S1	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例67	D-1	-	384	7.8	B-13	S1	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例68	A-2	S1	340	5.9	B-1	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例69	A-2	S1	340	5.9	B-2	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例70	A-2	S1	340	5.9	B-3	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例71	A-2	S1	340	5.9	B-4	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例72	A-2	S1	340	5.9	B-5	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例73	A-2	S1	340	5.9	B-5	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例74	A-2	S1	340	5.9	B-7	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例75	A-2	S1	340	5.9	B-8	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例76	A-2	S1	340	5.9	B-9	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例77	A-2	S1	340	5.9	B-10	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例78	A-2	S1	340	5.9	B-11	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例79	A-2	S1	340	5.9	B-12	-	TFP	HF-40 MF100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	B	A
実施例80	A-2	S1	340	5.9	B-1	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例81	A-2	S1	340	5.9	B-1	-	2PZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例82	A-2	S1	340	5.9	B-1	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例83	A-2	S1	340	5.9	B-2	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例84	A-2	S1	340	5.9	B-2	-	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例85	A-2	S1	340	5.9	B-2	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例86	A-2	S1	340	5.9	B-3	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例87	A-2	S1	340	5.9	B-3	-	2FZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例88	A-2	S1	340	5.9	B-3	-	2PHZ-PW	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例89	A-2	S1	340	5.9	B-4	-	TFP	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A
実施例90	A-2	S1	340	5.9	B-4	-	2PZ-CN	HF-40 MF100のみ	63	なし	B	A

[0259]

[表3]

表1 (続き)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				エポキシ化合物		硬化促進剤	無溶剤配合 (質量比)	無溶剤含有率 (質量%)	表面乾燥時間 (時間)	熱伝導率	絶縁係数
	種類	構造	分子量	官能基数 (mmol/g)	種類	構造						
実施例91	A-7	S1	340	5.8	B-4	-	2F1Z-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例92	A-2	S1	340	5.8	B-5	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	B	A
実施例93	A-2	S1	340	5.8	B-5	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例94	A-2	S1	340	5.8	B-5	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例95	A-2	S1	340	5.8	B-6	-	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例96	A-2	S1	340	5.8	B-6	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例97	A-2	S1	340	5.8	B-6	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例98	A-2	S1	340	5.8	B-7	-	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例99	A-2	S1	340	5.8	B-7	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例100	A-2	S1	340	5.8	B-7	-	2F1Z-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例101	A-2	S1	340	5.8	B-8	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	B	A
実施例102	A-2	S1	340	5.8	B-8	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例103	A-2	S1	340	5.8	B-8	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例104	A-2	S1	340	5.8	B-9	-	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例105	A-2	S1	340	5.8	B-9	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例106	A-2	S1	340	5.8	B-9	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例107	A-2	S1	340	5.8	B-10	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例108	A-2	S1	340	5.8	B-10	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例109	A-2	S1	340	5.8	B-10	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例110	A-2	S1	340	5.8	B-11	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例111	A-2	S1	340	5.8	B-11	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例112	A-2	S1	240	5.8	B-11	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例113	A-2	S1	140	5.8	B-12	-	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例114	A-2	S1	340	5.8	B-12	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	A
実施例115	A-2	S1	340	5.8	B-12	-	2F1Z-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	A
実施例116	A-3	S1	436	4.6	B-1	-	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	B	B
実施例117	A-3	S1	436	4.6	B-2	-	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	B	B
実施例118	A-3	S1	436	4.6	B-3	-	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	B	B
実施例119	A-3	S1	436	4.6	B-4	-	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	62	なし	B	B
実施例120	A-3	S1	436	4.6	B-5	-	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	62	なし	B	B
実施例121	A-3	S1	436	4.6	B-6	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例122	A-3	S1	436	4.6	B-7	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例123	A-3	S1	436	4.6	B-8	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例124	A-3	S1	436	4.6	B-9	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例125	A-3	S1	436	4.6	B-10	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例126	A-3	S1	436	4.6	B-11	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例127	A-3	S1	436	4.6	B-12	-	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	B	B
実施例128	A-3	S1	436	4.6	B-1	-	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	B
実施例129	A-3	S1	436	4.6	B-1	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	B
実施例130	A-3	S1	436	4.6	B-1	-	2F1Z-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	B
実施例131	A-3	S1	436	4.6	B-2	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	B
実施例132	A-3	S1	436	4.6	B-2	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	B
実施例133	A-3	S1	436	4.6	B-2	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	B	B
実施例134	A-3	S1	436	4.6	B-3	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	B
実施例135	A-3	S1	436	4.6	B-3	-	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	B	B

[0260]

[表4]

表) (続き)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				ホルキン化合物		硬化 促進剤	無機物配合 (質量比)	無機物 含有量 (質量%)	表面 修飾剤 種類	発色 率	透明 性
	種類	構造	分子量	官能基数 (mmol/g)	種類	構造						
実施例136	A-3	S1	436	4.6	B-3	--	2F4Z-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例137	A-3	S1	436	4.6	B-4	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例138	A-3	S1	436	4.6	B-4	--	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例139	A-3	S1	436	4.6	B-4	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例140	A-3	S1	436	4.6	B-5	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例141	A-3	S1	436	4.6	B-5	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例142	A-3	S1	436	4.6	B-5	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例143	A-3	S1	436	4.6	B-6	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例144	A-3	S1	436	4.6	B-6	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例145	A-3	S1	436	4.6	B-6	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例146	A-3	S1	436	4.6	B-7	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例147	A-3	S1	436	4.6	B-7	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例148	A-3	S1	436	4.6	B-7	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例149	A-3	S1	436	4.6	B-8	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例150	A-3	S1	436	4.6	B-8	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例151	A-3	S1	436	4.6	B-8	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例152	A-3	S1	436	4.6	B-9	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例153	A-3	S1	436	4.6	B-9	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例154	A-3	S1	436	4.6	B-9	--	2F4Z-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例155	A-3	S1	436	4.6	B-10	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例156	A-3	S1	436	4.6	B-10	--	2F2-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例157	A-3	S1	436	4.6	B-10	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	E	B
実施例158	A-3	S1	436	4.6	B-11	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例159	A-3	S1	436	4.6	B-11	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例160	A-3	S1	436	4.6	B-11	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	B
実施例161	A-3	S1	436	4.6	B-12	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例162	A-3	S1	436	4.6	B-12	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例163	A-3	S1	436	4.6	B-12	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	B
実施例164	A-4	S1	368	5.4	B-1	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	62	なし	E	A
実施例165	A-4	S1	368	5.4	B-2	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	62	なし	E	A
実施例166	A-4	S1	368	5.4	B-3	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例167	A-4	S1	368	5.4	B-4	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	62	なし	E	A
実施例168	A-4	S1	368	5.4	B-5	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例169	A-4	S1	368	5.4	B-5	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例170	A-4	S1	368	5.4	B-7	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	62	なし	E	A
実施例171	A-4	S1	368	5.4	B-8	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例172	A-4	S1	368	5.4	B-9	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例173	A-4	S1	368	5.4	B-10	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	62	なし	E	A
実施例174	A-4	S1	368	5.4	B-11	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例175	A-4	S1	368	5.4	B-12	--	TFP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :50/30/10	63	なし	E	A
実施例176	A-4	S1	368	5.4	B-1	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	A
実施例177	A-4	S1	368	5.4	B-1	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	A
実施例178	A-4	S1	368	5.4	B-1	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	62	なし	E	A
実施例179	A-4	S1	368	5.4	B-2	--	TFP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	A
実施例180	A-4	S1	368	5.4	B-2	--	2PZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	E	A

[0261]

[表5]

表) (続き)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				球形化合物		硬化 促進剤	無機物割合 (質量比)	無機物 含有率 (質量%)	表面 修飾剤 種類	発汗 率	粘 着性
	種類	構造	分子量	官能基数 (mmol/g)	種類	構造						
実施例181	A-4	S1	366	5.4	B-2	--	2F4Z-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例182	A-4	S1	366	5.4	B-3	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例183	A-4	S1	366	5.4	B-3	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例184	A-4	S1	366	5.4	B-3	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例185	A-4	S1	366	5.4	B-4	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例186	A-4	S1	366	5.4	B-4	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例187	A-4	S1	366	5.4	B-4	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例188	A-4	S1	366	5.4	B-5	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例189	A-4	S1	366	5.4	B-5	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例190	A-4	S1	366	5.4	B-5	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例191	A-4	S1	366	5.4	B-6	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例192	A-4	S1	366	5.4	B-6	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例193	A-4	S1	366	5.4	B-6	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例194	A-4	S1	366	5.4	B-7	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例195	A-4	S1	366	5.4	B-7	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例196	A-4	S1	366	5.4	B-7	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例197	A-4	S1	366	5.4	B-8	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例198	A-4	S1	366	5.4	B-8	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例199	A-4	S1	366	5.4	B-8	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例200	A-4	S1	366	5.4	B-9	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例201	A-4	S1	366	5.4	B-9	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例202	A-4	S1	366	5.4	B-9	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例203	A-4	S1	366	5.4	B-10	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例204	A-4	S1	366	5.4	B-10	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例205	A-4	S1	366	5.4	B-10	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例206	A-4	S1	366	5.4	B-11	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例207	A-4	S1	366	5.4	B-11	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例208	A-4	S1	366	5.4	B-11	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例209	A-4	S1	366	5.4	B-12	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例210	A-4	S1	366	5.4	B-12	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例211	A-4	S1	366	5.4	B-12	--	2PHZ-PW	HP-46 MF 100のみ	61	なし	E	A
実施例212	A-5	S	340	11.8	B-1	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例213	A-5	S	340	11.8	B-2	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例214	A-5	S	340	11.8	B-3	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例215	A-5	S	340	11.8	B-4	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例216	A-5	S	340	11.8	B-5	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例217	A-5	S	340	11.8	B-6	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例218	A-5	S	340	11.8	B-7	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例219	A-5	S	340	11.8	B-8	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例220	A-5	S	340	11.8	B-9	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例221	A-5	S	340	11.8	B-10	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例222	A-5	S	340	11.8	B-11	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例223	A-5	S	340	11.8	B-12	--	TPP	HP-46 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	61	なし	C	B
実施例224	A-5	S	340	11.8	B-1	--	TPP	HP-46 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例225	A-5	S	340	11.8	B-1	--	2F2-CN	HP-46 MF 100のみ	61	なし	C	B

[0262]

[表6]

表) (続き)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				球状化合物		硬化 促進剤	無機物配合 (質量比)	無機物 含有量 (質量%)	表面 修飾剤 種類	発色 率	透明 性
	種類	構造	分子量	官能基数 (mmol/g)	種類	構造						
実施例226	A-5	S	340	11.8	B-1	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例227	A-5	S	340	11.8	B-2	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例228	A-5	S	340	11.8	B-2	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例229	A-5	S	340	11.8	B-2	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例230	A-5	S	340	11.8	B-3	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例231	A-5	S	340	11.8	B-3	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例232	A-5	S	340	11.8	B-3	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例233	A-5	S	340	11.8	B-4	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例234	A-5	S	340	11.8	B-4	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例235	A-5	S	340	11.8	B-4	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例236	A-5	S	340	11.8	B-5	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例237	A-5	S	340	11.8	B-5	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例238	A-5	S	340	11.8	B-5	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例239	A-5	S	340	11.8	B-6	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例240	A-5	S	340	11.8	B-6	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例241	A-5	S	340	11.8	B-6	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例242	A-5	S	340	11.8	B-7	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例243	A-5	S	340	11.8	B-7	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例244	A-5	S	340	11.8	B-7	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例245	A-5	S	340	11.8	B-8	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例246	A-5	S	340	11.8	B-8	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例247	A-5	S	340	11.8	B-8	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例248	A-5	S	340	11.8	B-9	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例249	A-5	S	340	11.8	B-9	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例250	A-5	S	340	11.8	B-9	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例251	A-5	S	340	11.8	B-10	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例252	A-5	S	340	11.8	B-10	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例253	A-5	S	340	11.8	B-10	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例254	A-5	S	340	11.8	B-11	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例255	A-5	S	340	11.8	B-11	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例256	A-5	S	340	11.8	B-11	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例257	A-5	S	340	11.8	B-12	--	TPP	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例258	A-5	S	340	11.8	B-12	--	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例259	A-5	S	340	11.8	B-12	--	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	61	なし	C	B
実施例260	A-6	S	336	6.0	B-1	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例261	A-6	S	336	6.0	B-2	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例262	A-6	S	336	6.0	B-3	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例263	A-6	S	336	6.0	B-4	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例264	A-6	S	336	6.0	B-5	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例265	A-6	S	336	6.0	B-6	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例266	A-6	S	336	6.0	B-7	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例267	A-6	S	336	6.0	B-8	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例268	A-6	S	336	6.0	B-9	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例269	A-6	S	336	6.0	B-10	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C
実施例270	A-6	S	336	6.0	B-11	--	TPP	HP-40 MF 100/AA-3/AA-04 :60/30/10	63	なし	C	C

[0263]

[表7]

表1 (続き)	組成物の特徴										評価	
	フェノール化合物				球形化合物		炭化 炭素量	無機物配合 (質量%)	無機物 含有率 (質量%)	炭素 含有率 (質量%)	熱伝導 率	熱伝 導性
	種類	構造	分子量	分子量 (g/mol)	種類	構造						
実施例271	A-8	S	336	8.0	B-12	-	HPF	HP-40 MF 100-AA-3/AA-04 =0.30/1.0	63	なし	C	C
実施例272	A-9	S	336	8.0	B-1	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例273	A-9	S	336	8.0	B-1	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例274	A-8	S	336	8.0	B-1	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例275	A-9	S	336	8.0	B-2	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例276	A-8	S	336	8.0	B-2	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例277	A-8	S	336	8.0	B-2	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例278	A-8	S	336	8.0	B-3	-	HPF	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例279	A-8	S	336	8.0	B-3	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例280	A-8	S	336	8.0	B-3	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例281	A-9	S	336	8.0	B-4	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例282	A-8	S	336	8.0	B-4	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例283	A-9	S	336	8.0	B-4	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例284	A-9	S	336	8.0	B-5	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例285	A-9	S	336	8.0	B-5	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例286	A-8	S	336	8.0	B-5	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例287	A-8	S	336	8.0	B-5	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例288	A-8	S	336	8.0	B-6	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例289	A-8	S	336	8.0	B-6	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例290	A-8	S	336	8.0	B-7	-	HPF	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例291	A-8	S	336	8.0	B-7	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例292	A-8	S	336	8.0	B-7	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例293	A-8	S	336	8.0	B-8	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例294	A-8	S	336	8.0	B-8	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例295	A-8	S	336	8.0	B-8	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例296	A-9	S	336	8.0	B-9	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例297	A-8	S	336	8.0	B-9	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例298	A-8	S	336	8.0	B-9	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例299	A-9	S	336	8.0	B-10	-	TPP	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例300	A-8	S	336	8.0	B-10	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例301	A-8	S	336	8.0	B-10	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例302	A-8	S	336	8.0	B-11	-	HPF	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例303	A-8	S	336	8.0	B-11	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例304	A-8	S	336	8.0	B-11	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例305	A-8	S	336	8.0	B-12	-	HPF	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例306	A-8	S	336	8.0	B-12	-	2FZ-CN	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
実施例307	A-9	S	336	8.0	B-12	-	2PHZ-PW	HP-40 MF 100のみ	63	なし	C	C
比較例	B-1	-	384	7.0	B-2	-	TPP	HP-40 MF 100-AA-3/AA-04 =0.30/1.0	63	なし	D	D

[0264] 表に示す結果より、本発明の組成物を用いれば、熱伝導性に優れる熱伝導材料が得られることが確認された。また、上記熱伝導材料は、絶縁性にも優れることが確認された。

[0265] 組成物が窒化ホウ素を含む場合、得られる熱伝導材料の熱伝導性がより優れることが確認された。

(実施例2と実施例22との比較等)

[0266] スピロフェノール化合物が、一般式(1)で表される化合物である場合、得られる熱伝導材料の熱伝導性及び／又は絶縁性がより優れることが確認された。

(実施例212~307と、他の実施例との比較等)

[0267] スピロフェノール化合物の分子量が400以下である場合、得られる熱伝導材料の絶縁性がより優れることが確認された。

(フェノール化合物A-3を使用した実施例と、フェノール化合物A-1、

A-2、A-4を使用した実施例との比較（一般式（1）で表される化合物を使用した実施例同士の比較）等）

[0268] スピロフェノール化合物の水酸基含有量が6.5 mmol/g以上である場合、得られる熱伝導材料の熱伝導性及び／又は絶縁性がより優れることが確認された。

（フェノール化合物A-2、A-3、A-4を使用した実施例と、フェノール化合物A-1を使用した実施例との比較（一般式（1）で表される化合物を使用した実施例同士の比較）、フェノール化合物A-6を使用した実施例と、フェノール化合物A-5を使用した実施例との比較（一般式（1）で表される化合物以外のスピロフェノール化合物を使用した実施例同士の比較）等）

[0269] 表面修飾剤として縮環骨格又はトリアジン骨格を有する化合物を使用する場合、得られる熱伝導材料の熱伝導性がより優れることが確認された（実施例1、5～8、10～12、14～19の結果等）。

請求の範囲

[請求項1] フェノール化合物、エポキシ化合物、及び、無機物を含む熱伝導材料形成用組成物であって、

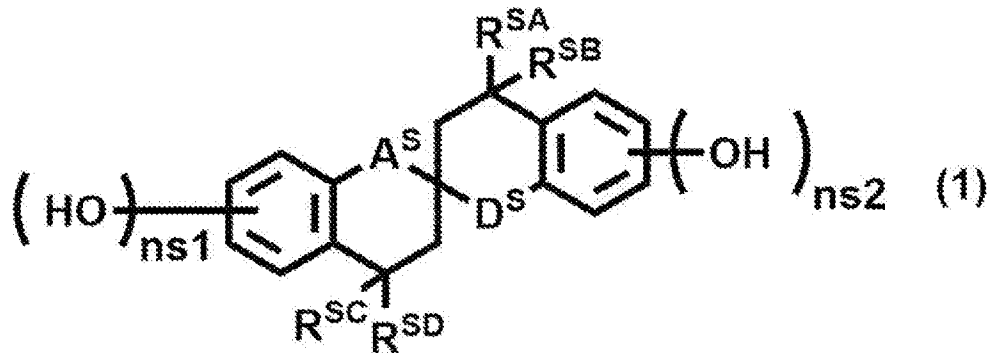
前記フェノール化合物が、フェノール性水酸基及びスピロ構造を有するスピロフェノール化合物を含むか、

前記エポキシ化合物が、エポキシ基及びスピロ構造を有するスピロエポキシ化合物を含むかの、少なくとも一方を満たす、熱伝導材料形成用組成物。

[請求項2] 前記スピロフェノール化合物を含む、請求項1に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項3] 前記スピロフェノール化合物を含み、前記スピロフェノール化合物が、一般式(1)で表される化合物である、請求項1又は2に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[化1]



一般式(1)中、 $ns1$ 及び $ns2$ は、それぞれ独立に、1~4の整数を表す。

A^S 及び D^S は、それぞれ独立に、 $-C R^{Sx} R^{Sy}-$ 、 $-O-$ 、又は、 $-S-$ を表す。

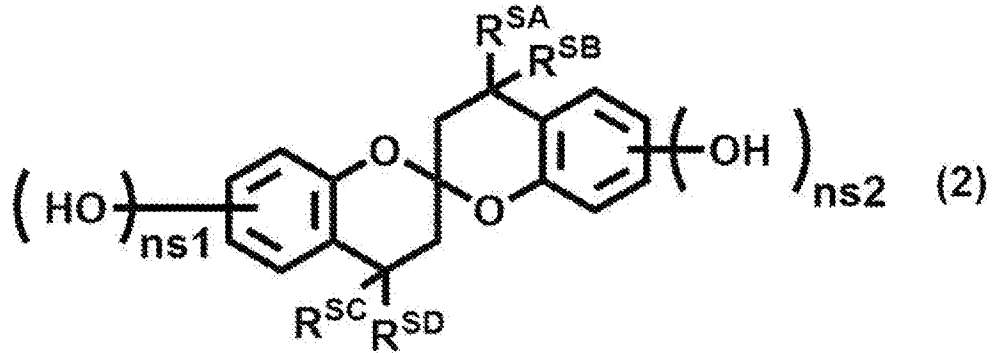
R^{Sx} 及び R^{Sy} は、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、又は、アリール基を表す。

[請求項4] 前記スピロフェノール化合物を含み、前記スピロフェノール化合物

が、一般式（２）で表される化合物である、請求項１～３のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[化2]



一般式（２）中、 $n s 1$ 及び $n s 2$ は、それぞれ独立に、１～４の整数を表す。

R^{SA} 、 R^{SB} 、 R^{SC} 、及び、 R^{SD} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、又は、アリール基を表す。

[請求項5] 前記スピロフェノール化合物の水酸基含有量が、 6.5 mmol/g 以上である、請求項１～４のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項6] 前記スピロフェノール化合物の分子量が、４００以下である、請求項１～５のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項7] 前記無機物が、無機窒化物を含む、請求項１～６のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項8] 前記無機窒化物が、窒化ホウ素を含む、請求項７に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項9] 更に、前記無機物の表面修飾剤を含む、請求項１～８のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項10] 前記表面修飾剤が、縮環骨格又はトリアジン骨格を有する、請求項９に記載の熱伝導材料形成用組成物。

[請求項11] 更に、硬化促進剤を含む、請求項１～１０のいずれか１項に記載の熱伝導材料形成用組成物。

- [請求項12] 請求項1～11のいずれか1項に記載の熱伝導材料形成用組成物を硬化して得られる、熱伝導材料。
- [請求項13] 請求項12に記載の熱伝導材料からなる、熱伝導シート。
- [請求項14] デバイスと、前記デバイス上に配置された請求項13に記載の熱伝導シートを含む熱伝導層とを有する、熱伝導層付きデバイス。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/002344

<p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08G 59/20(2006.01)i; C08G 59/62(2006.01)i; H01L 23/36(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08K 3/00(2018.01)i FI: C08L63/00 Z; C08K3/00; C08G59/62; C08G59/20; H01L23/36 D According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>																
<p>B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; C08G59/00-59/72; H01L21/54; H01L23/00-23/10; H01L23/16-23/26 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 1971-2020 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)</p>																
<p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category*</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X Y</td> <td>JP 2017-036423 A (AJINOMOTO CO., INC.) 16.02.2017 (2017-02-16) claims, paragraphs [0037], [0039], [0042], [0046]-[0047], examples</td> <td>1-2, 5-14 3-4, 9-10</td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>JP 2015-168782 A (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 28.09.2015 (2015-09-28) claims, paragraphs [0028], [0058]-[0061], [0074], [0078], examples</td> <td>1, 5-9, 11-14 2-4, 10</td> </tr> <tr> <td>X Y</td> <td>JP 2016-089072 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 23.05.2016 (2016-05-23) claims, paragraphs [0019], [0036]-[0037], examples</td> <td>1-8, 11-14 3-4, 9-10</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2-018467 A (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 22.01.1990 (1990-01-22) entire text</td> <td>1-14</td> </tr> </tbody> </table>		Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X Y	JP 2017-036423 A (AJINOMOTO CO., INC.) 16.02.2017 (2017-02-16) claims, paragraphs [0037], [0039], [0042], [0046]-[0047], examples	1-2, 5-14 3-4, 9-10	X A	JP 2015-168782 A (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 28.09.2015 (2015-09-28) claims, paragraphs [0028], [0058]-[0061], [0074], [0078], examples	1, 5-9, 11-14 2-4, 10	X Y	JP 2016-089072 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 23.05.2016 (2016-05-23) claims, paragraphs [0019], [0036]-[0037], examples	1-8, 11-14 3-4, 9-10	A	JP 2-018467 A (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 22.01.1990 (1990-01-22) entire text	1-14
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.														
X Y	JP 2017-036423 A (AJINOMOTO CO., INC.) 16.02.2017 (2017-02-16) claims, paragraphs [0037], [0039], [0042], [0046]-[0047], examples	1-2, 5-14 3-4, 9-10														
X A	JP 2015-168782 A (MITSUBISHI CHEMICAL CORP.) 28.09.2015 (2015-09-28) claims, paragraphs [0028], [0058]-[0061], [0074], [0078], examples	1, 5-9, 11-14 2-4, 10														
X Y	JP 2016-089072 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 23.05.2016 (2016-05-23) claims, paragraphs [0019], [0036]-[0037], examples	1-8, 11-14 3-4, 9-10														
A	JP 2-018467 A (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 22.01.1990 (1990-01-22) entire text	1-14														
<p><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.</p>																
<table border="0"> <tr> <td style="vertical-align: top;"> <p>* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </td> <td style="vertical-align: top;"> <p>"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</p> </td> </tr> </table>		<p>* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p>													
<p>* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p>															
<p>Date of the actual completion of the international search 07 February 2020 (0702.2020)</p>	<p>Date of mailing of the international search report 14 April 2020 (14.04.2020)</p>															
<p>Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan</p>	<p>Authorized officer Telephone No.</p>															

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/002344

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2016-069549 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) 09.05.2016 (2016-05-09) entire text	1-14
A	JP 10-060091 A (YUKA SHELL EPOXY KK) 03.03.1998 (1998-03-03) entire text	1-14
A	JP 7-292073 A (MITSUI TOATSU CHEMICALS, INC.) 07.11.1995 (1995-11-07) entire text	1-14
A	JP 2002-511874 A (CIBA SPECIALTY CHEMICALS HOLDING INC.) 16.04.2002 (2002-04-16) entire text	1-14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/002344

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2017-036423 A	06 Feb. 2017	(Family: none)	
JP 2015-168782 A	28 Sep. 2015	(Family: none)	
JP 2016-089072 A	23 May 2016	(Family: none)	
JP 2-018467 A	22 Jan.1990	EP 342035 A2 claims, page 4, lines 22-35, page 4, lines 39-58 KR 10-1989-0017305 A	
JP 2016-069549 A	09 May 2016	(Family: none)	
JP 10-060091 A	03 Mar. 1998	(Family: none)	
JP 7-292073 A	07 Nov. 1995	(Family: none)	
JP 2002-511874 A	16 Apr. 2002	US 6169158 B1 entire text WO 1999/003851 A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/20(2006.01)i; C08G 59/62(2006.01)i; H01L 23/36(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08K 3/00(2018.01)i FI: C08L63/00 Z; C08K3/00; C08G59/62; C08G59/20; H01L23/36 D		
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）） C08K3/00-13/08;C08L1/00-101/14;C08G59/00-59/72;H01L21/54;H01L23/00-23/10;H01L23/16-23/26 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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 2017-036423 A (味の素株式会社) 16.02.2017 (2017-02-16) 特許請求の範囲, 段落 [0037], [0039], [0042], [0046] - [0047], 実施例	1-2, 5-14 3-4, 9-10
X A	JP 2015-168782 A (三菱化学株式会社) 28.09.2015 (2015-09-28) 特許請求の範囲, 段落 [0028], [0058] - [0061], [0074], [0078], 実施例	1, 5-9, 11-14 2-4, 10
X Y	JP 2016-089072 A (日本化薬株式会社) 23.05.2016 (2016-05-23) 特許請求の範囲, [0019], [0036]-[0037], 実施例	1-8, 11-14 3-4, 9-10
A	JP 2-018467 A (ミネソタ マイニング アンド マニュファクチュアリング カンパニー) 22.01.1990 (1990-01-22) 全文	1-14
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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 07.02.2020	国際調査報告の発送日 14.04.2020	
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） 前田 孝泰 4J 1589 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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	JP 2016-069549 A (新日鉄住金化学株式会社) 09.05.2016 (2016 - 05 - 09) 全文	1-14
A	JP 10-060091 A (油化シエルエポキシ株式会社) 03.03.1998 (1998 - 03 - 03) 全文	1-14
A	JP 7-292073 A (三井東圧化学株式会社) 07.11.1995 (1995 - 11 - 07) 全文	1-14
A	JP 2002-511874 A (バンティコ アクチエンゲゼルシャフト) 16.04.2002 (2002 - 04 - 16) 全文	1-14

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/JP2020/002344

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2017-036423 A	16.02.2017	(ファミリーなし)	
JP 2015-168782 A	28.09.2015	(ファミリーなし)	
JP 2016-089072 A	23.05.2016	(ファミリーなし)	
JP 2-018467 A	22.01.1990	EP 342035 A2 特許請求の範囲, 第4頁第 22行-第35行, 第4頁 第39行-第58行 KR 10-1989-0017305 A	
JP 2016-069549 A	09.05.2016	(ファミリーなし)	
JP 10-060091 A	03.03.1998	(ファミリーなし)	
JP 7-292073 A	07.11.1995	(ファミリーなし)	
JP 2002-511874 A	16.04.2002	US 6169158 B1 全文 WO 1999/003851 A1	