(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
2016 年 6 月 30 日(30.06.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/104772 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 59/24 (2006.01) *C08J 5/18* (2006.01)
C08G 59/62 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2015/086373

(22) 国際出願日: 2015 年 12 月 25 日(25.12.2015)

(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 2014-266106 2014 年 12 月 26 日(26.12.2014) JP

(71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 片木 秀行(KATAGI, Hideyuki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 田中 賢治(TANAKA, Kenji); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 竹澤 由高(TAKEZAWA, Yoshitaka); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 陶 晴昭(SUE, Haruaki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 小杉 慎一(KOSUGI, Shinichi); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人太陽国際特許事務所(TAIYO, NAKAJIMA & KATO); 〒1600022 東京都新宿区新宿４丁目３番１７号 Tokyo (JP).

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

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

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2016/104772 A1

(54) **Title**: EPOXY RESIN, EPOXY RESIN COMPOSITION, INORGANIC-FILLER-CONTAINING EPOXY RESIN COMPOSITION, RESIN SHEET, CURED PRODUCT, AND EPOXY COMPOUND

(54) 発明の名称 : エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物、樹脂シート、硬化物、及びエポキシ化合物

(57) **Abstract**: An epoxy resin obtained by reacting an epoxy resin monomer having a mesogenic skeleton and two glycidyl groups in each molecule, with a divalent phenol compound having two hydroxyl groups as substituents in one benzene ring, said epoxy resin having a number-average molecular weight as measured by gel permeation chromatography between 600 to 2,500 inclusive.

(57) 要約: メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物との反応により得られ、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定における数平均分子量が６００～２５００であるエポキシ樹脂。

明　細　書

発明の名称 ：

エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物、樹脂シート、硬化物、及びエポキシ化合物

技術分野

[0001] 本開示は、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物、樹脂シート、硬化物、及びエポキシ化合物に関する。

背景技術

[0002] 近年の半導体パッケージデバイスは、高密度化及び高集積化により、実使用温度が高温になり、放熱対策が必要となっている。特に、電気自動車、ハイブリッド自動車、産業機器等に使用されるパワーデバイスの分野においては、シリコンに替わり、より高出力化が可能な炭化ケイ素（ＳｉＣ）の適用が盛んに検討されており、耐熱性と高い熱伝導特性とを有する周辺材料が要求される。また、適用箇所によっては高い絶縁性能も必要とされる。

[0003] パワーデバイスを取り巻く周辺材料は、小型化及び軽量化の流れに伴い、これまで使用されてきたセラミック等の無機材料に替わり、有機材料が使用されつつある。有機材料の使用形態としては、有機高分子（樹脂）と無機フィラーとの混合物からなるコンポジット材料が挙げられる。

[0004] 有機材料は無機材料と比較して材料の加工性が高く、軽量化できる等の利点が多いが、耐熱性が低いことが課題である。また、素材としての熱伝導率も無機材料と比べて低く、汎用樹脂で０．２Ｗ／（ｍ・Ｋ）程度である。

[0005] 有機材料の耐熱性を向上する手法として、使用する樹脂の構造に剛直な骨格を導入したり、樹脂の架橋点密度を増やすことにより、硬化後の架橋点間距離を短くし、ガラス転移温度を向上させたりする手法が一般的に知られている。

[0006] 一方、高熱伝導率化する手法として、高い熱伝導率を有するアルミナ、窒化ホウ素に代表される無機フィラーを使用する手法が知られている（例えば

、特許第４８８９１１０号公報参照）。また、メソゲン骨格と称するものに代表される剛直な構造を樹脂の分子内に導入し、分子間スタッキング性を利用し、液晶性又は結晶性を発現させ、フォノン散乱を抑制することにより熱伝導率を高める手法も知られている（例えば、特許第４１１８６９１号公報参照）。前者の手法では、高充填量化によりコンポジット材料の熱伝導率を高めることが可能であるが、絶縁性と両立する上では充填量には上限があり、コンポジット材料の熱伝導率は頭打ちとなる。これに対し、後者の熱伝導率の高い樹脂を使用することにより、コンポジット材料の熱伝導率を飛躍的に高くすることが可能となる。

[0007] しかし、後者の手法の延長線上には樹脂の高融点化があるため、流動性が低下したり被着体との接着性が低下したりするなど、ハンドリング性が低下する課題を生じる。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明の目的は、流動性及び熱伝導性に優れるエポキシ樹脂、該エポキシ樹脂を用いたエポキシ樹脂組成物、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物、樹脂シート、及び硬化物、並びにエポキシ化合物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討した結果、本発明に至った。すなわち、本発明は以下の態様を包含する。

[0010] ＜１＞ メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物との反応により得られ、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定における数平均分子量が６００～２５００であるエポキシ樹脂。

[0011] ＜２＞ 前記２価フェノール化合物がヒドロキノンである前記＜１＞に記載のエポキシ樹脂。

[0012] ＜３＞ 前記エポキシ樹脂モノマーが、ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－

エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートである前記＜１＞又は＜２＞に記載のエポキシ樹脂。

[0013] ＜４＞　前記＜１＞～＜３＞のいずれか１項に記載のエポキシ樹脂と、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマーとを含有し、環球法で測定した軟化点が１００℃以下であるエポキシ樹脂組成物。

[0014] ＜５＞　前記＜１＞～＜３＞のいずれか１項に記載のエポキシ樹脂又は前記＜４＞に記載のエポキシ樹脂組成物と、無機フィラーと、を含有する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

[0015] ＜６＞　硬化物の熱伝導率が７Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上である前記＜５＞に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

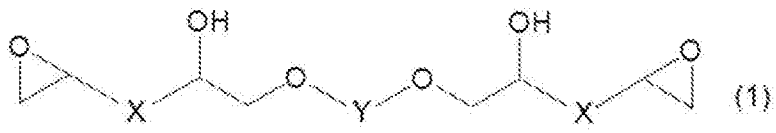
[0016] ＜７＞　前記＜５＞又は＜６＞に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物のシート状成形体である樹脂シート。

[0017] ＜８＞　前記＜５＞若しくは＜６＞に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物又は前記＜７＞に記載の樹脂シートを硬化させた硬化物。

[0018] ＜９＞　ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有する前記＜８＞に記載の硬化物。

[0019] ＜１０＞　下記式（１）で表されるエポキシ化合物。

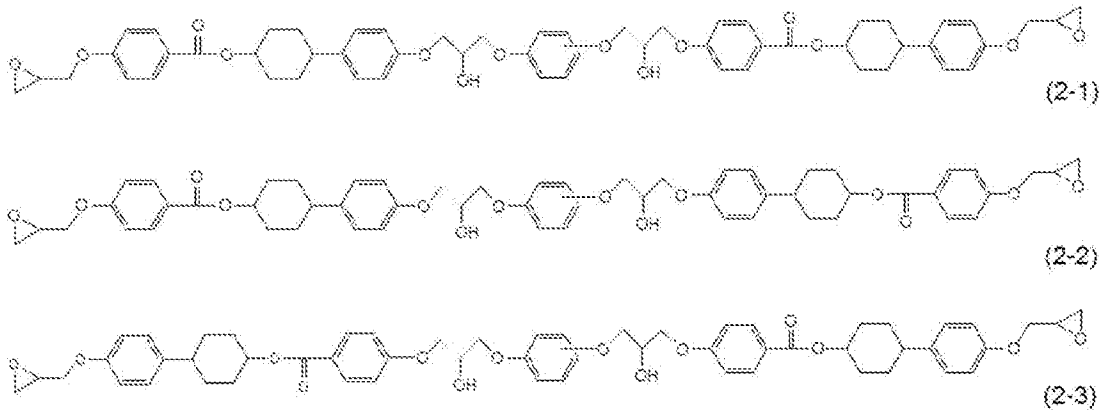
[化1]



［式（１）中、Ｘはそれぞれ独立に、メソゲン骨格を含む２価の基を示し、Ｙは、置換基を有していてもよいフェニレン基を示す。］

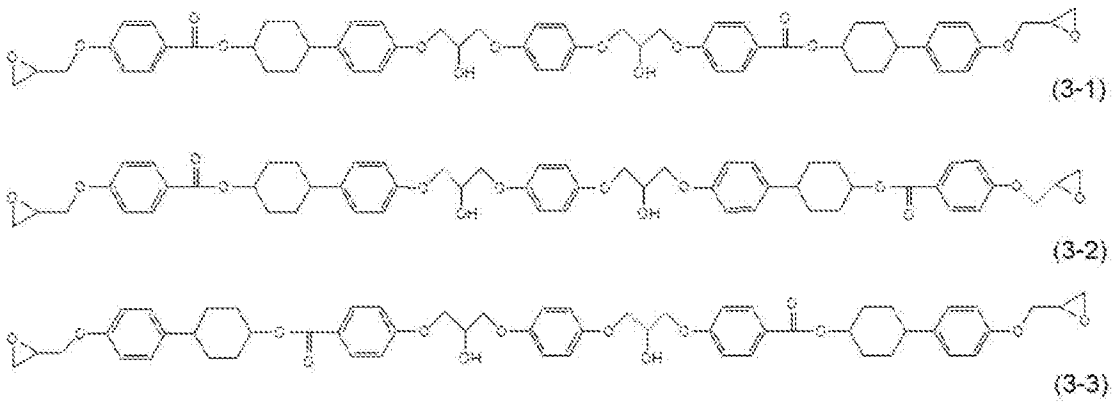
[0020] ＜１１＞　下記式（２－１）～（２－３）の少なくとも１つで表される＜１０＞に記載のエポキシ化合物。

[化2]



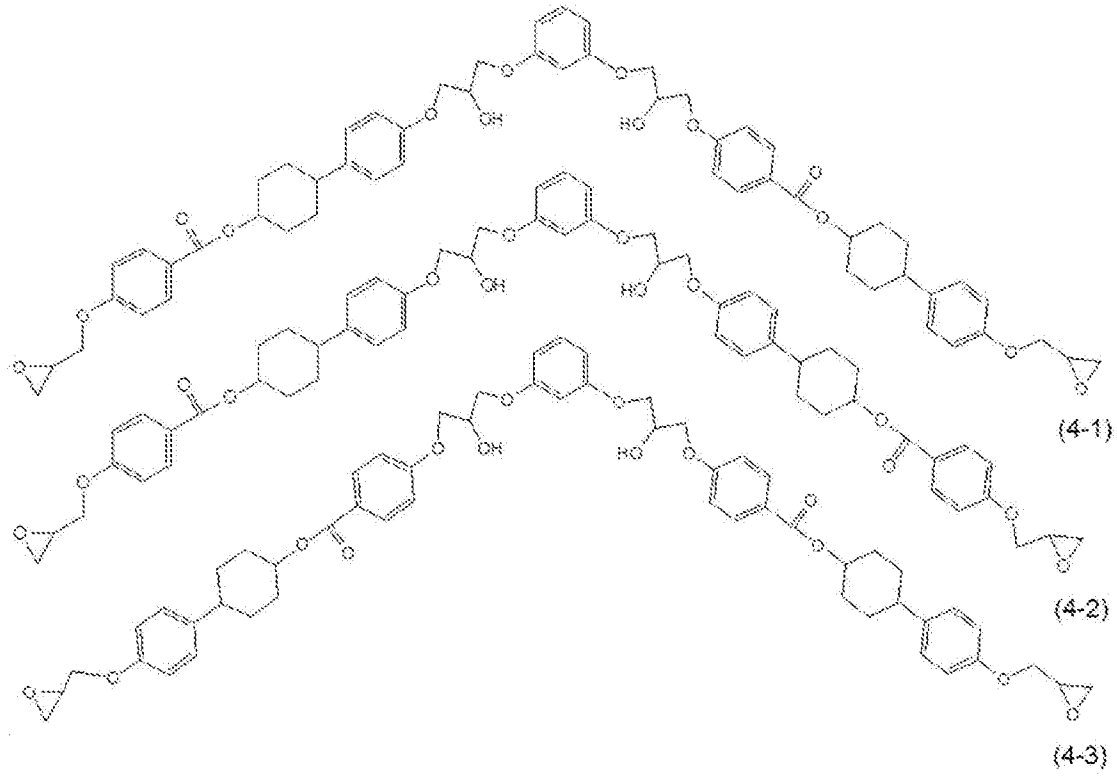
[0021] ＜１２＞　下記式（３－１）～（３－３）の少なくとも１つで表される＜１０＞又は＜１１＞に記載のエポキシ化合物。

[化3]



[0022] ＜１３＞　下記式（４－１）～（４－３）の少なくとも１つで表される＜１０＞又は＜１１＞に記載のエポキシ化合物。

[化4]



[0023] ＜１４＞　前記＜９＞～＜１３＞のいずれか１項に記載のエポキシ化合物と、無機フィラーと、を含有する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

[0024] ＜１５＞　前記＜９＞～＜１３＞のいずれか１項に記載のエポキシ化合物又は前記＜１４＞に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物を硬化させた硬化物。

発明の効果

[0025] 本発明によれば、流動性及び熱伝導性に優れるエポキシ樹脂、該エポキシ樹脂を用いたエポキシ樹脂組成物、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物、樹脂シート、及び硬化物、並びにエポキシ化合物を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0026] 以下、本発明の実施形態を示す。なお、以下の実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明はこの実施形態のみに限定されるものではなく、この主旨を逸脱しない限り、種々の形態を取り得る。

本明細書において「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記

載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。

本明細書中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本明細書中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

また、組成物中の各成分の量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。

[0027] ＜エポキシ樹脂＞

本発明の一実施形態におけるエポキシ樹脂は、メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物との反応により得られ、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定における数平均分子量が６００～２５００である。本実施形態のエポキシ樹脂は、流動性及び熱伝導性に優れるため、例えば、後述の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物及び樹脂シートに好適に用いられる。

[0028] ここで、メソゲン骨格とは、結晶性又は液晶性を発現し易くするような分子構造のことを指す。具体的には、ビフェニル骨格、フェニルベンゾエート骨格、アゾベンゼン骨格、スチルベン骨格、シクロヘキシルベンゼン骨格、それらの誘導体等が挙げられる。分子構造中にメソゲン骨格を有しているエポキシ樹脂モノマーは硬化した際に高次構造を形成し易く、硬化物を作製した場合により高い熱伝導率を達成できる傾向にある。ここで、高次構造とは、その構成要素がミクロな配列をしている状態のことであり、例えば、結晶相及び液晶相が相当する。このような高次構造が存在しているか否かは、偏光顕微鏡での観察によって容易に判断することが可能である。すなわち、クロスニコル状態での観察において、偏光解消による干渉模様が見られる場合は高次構造が存在していると判断できる。

[0029] 本実施形態のエポキシ樹脂の合成には、メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーが用いられる。グリシジル基が１分子内に１個である場合、硬化後の架橋密度が低下するため熱伝導率が低くなる恐れがある。一方、グリシジル基が１分子内に３個以上である場合、ポリマー化する際に反応の制御が困難となり、ゲル化する恐れがある。

[0030] メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーとしては、例えばビフェニル型エポキシ樹脂が代表として挙げられ、市販品としてはＹＸ４０００（三菱化学株式会社製）、ＹＬ６１２１Ｈ（三菱化学株式会社製）等が挙げられる。また、３環型エポキシ樹脂モノマーとして、ターフェニル骨格を有するエポキシ樹脂モノマー、１－（３－メチル－４－オキシラニルメトキシフェニル）－４－（４－オキシラニルメトキシフェニル）－１－シクロヘキセン、１－（３－メチル－４－オキシラニルメトキシフェニル）－４－（４－オキシラニルメトキシフェニル）－ベンゼン（住友化学株式会社製）、ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエート（住友化学株式会社製）等が具体例として挙げられる。これらのエポキシ樹脂モノマーの中でも、熱伝導率を向上させる観点から、ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートを用いることが好ましい。

これらのエポキシ樹脂モノマーは、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。

[0031] 本実施形態のエポキシ樹脂の合成には、バインダとして、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物が用いられる。このような２価フェノール化合物を用いることが、エポキシ樹脂の分子量、熱伝導率、及びガラス転移温度（Ｔｇ）の制御の観点から好ましい。水酸基が１分子内に１個である場合、硬化後の架橋密度が低下するため熱伝導率

が低くなる恐れがある。一方、水酸基が１分子内に３個以上である場合、ポリマー化する際に反応の制御が困難となり、ゲル化する恐れがある。また、２つ以上のベンゼン環を有する２価フェノール化合物を用いた場合、エポキシ樹脂の構造が剛直になるため高熱伝導率化には有利に働くが、軟化点が高くなりハンドリング性が低下する傾向がある（例えば、特許第５０１９２７２号公報参照）。

[0032] なお、エポキシ樹脂モノマーをポリマー化する際のバインダとしては、フェノール化合物以外にアミン化合物も知られている。しかし、アミン化合物をバインダとして用いた場合、エポキシ樹脂に２級アミン又は３級アミンが生成するため、エポキシ樹脂自体の貯蔵安定性、及びエポキシ樹脂を硬化剤と配合した後の樹脂組成物の貯蔵安定性が悪くなってしまう。

[0033] １つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物としては、カテコール、レゾルシノール、ヒドロキノン、及びこれらの誘導体が挙げられる。誘導体としては、ベンゼン環に炭素数１～８のアルキル基等が置換した化合物が挙げられる。これらの２価フェノール化合物の中でも、熱伝導率を向上させる観点から、ヒドロキノンを用いることが好ましい。ヒドロキノンは２つの水酸基がパラ位の位置関係となるように置換されている構造であるため、エポキシ樹脂モノマーと反応させて得られるエポキシ樹脂は直線構造となる。このため、分子のスタッキング性が高く、高次構造を形成し易いと考えられる。

これらの２価フェノール化合物は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。

[0034] 本実施形態のエポキシ樹脂のゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）測定における数平均分子量は６００～２５００であり、流動性及び熱伝導率を両立する観点から８００～２０００であることが好ましく、１０００～１８００であることがより好ましい。エポキシ樹脂の数平均分子量が６００未満であると、結晶性が高くなるため流動性が低下する傾向がある。一方、エポキシ樹脂の数平均分子量が２５００超であると、硬化物の架橋点

密度が低下するため、熱伝導率が低くなる傾向がある。

[0035] なお、本明細書における数平均分子量は、以下の測定条件で測定するものとする。

〔測定条件〕

ポンプ：Ｌ－６０００（株式会社日立製作所製）

カラム：ＴＳＫｇｅｌ（登録商標） Ｇ４０００H_{HR}＋Ｇ３０００H_{HR}＋Ｇ２０００H_{XL}（東ソー株式会社製）

カラム温度：４０℃

溶出溶媒：テトラヒドロフラン（クロマトグラフィー用安定剤不含、和光純薬工業株式会社製）

試料濃度：５ｇ／Ｌ（テトラヒドロフラン可溶分）

注入量：１００μＬ

流速：１．０ｍＬ／分

検出器：示差屈折率計ＲＩ－８０２０（東ソー株式会社製）

分子量較正標準物質：標準ポリスチレン

データ処理装置：ＧＰＣ－８０２０（東ソー株式会社製）

[0036] 本実施形態のエポキシ樹脂としては、１４０℃未満の温度で結晶相から液晶相に転移するものが好ましい。結晶相から液晶相に転移する温度が１４０℃未満であることにより、流動性及び成形性が向上する傾向にある。

上記エポキシ樹脂モノマーであるｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル ４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートは、結晶相から液晶相に転移する温度が１４０℃以上であるが、上記２価フェノール化合物と反応させて本実施形態のエポキシ樹脂とすることで、結晶相から液晶相に転移する温度を１４０℃未満にすることができる。

[0037] なお、結晶相から液晶相に転移する温度は、示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置（例えば、株式会社パーキンエルマー製、Ｐｙｒｉｓ１）を用いて測定することができる。具体的には、エポキシ樹脂の試料３ｍｇ～５ｍｇをアル

ミニウム製のパンに封入し、昇温速度２０℃／分、測定温度範囲２５℃～３５０℃、窒素流量２０±５ｍＬ／分の窒素雰囲気下の条件にて示差走査熱量測定を行い、相転移反応に伴うエネルギー変化（吸熱反応）が起こる温度として測定することができる。

[0038] 本実施形態のエポキシ樹脂は、合成溶媒中に上記エポキシ樹脂モノマー、上記２価フェノール化合物、及び硬化触媒を溶解し、熱をかけながら撹拌して合成することができる。溶媒を使用せず、エポキシ樹脂モノマーを溶融して反応させることでもエポキシ樹脂を合成することは可能であるが、エポキシ樹脂モノマーが溶融する温度まで高温にしなければならない。このため、安全性の観点から合成溶媒を使用した合成法が好ましい。

[0039] 上記合成溶媒としては、上記エポキシ樹脂モノマーと上記２価フェノール化合物との反応が進行するために必要な温度に加温できる溶媒であれば特に制限されない。具体例としては、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、乳酸エチル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、Ｎ－メチルピロリドン等が挙げられる。

[0040] 合成溶媒の量は、反応温度において、上記エポキシ樹脂モノマー、上記２価フェノール化合物、及び硬化触媒を全て溶解できる量が最低必要である。反応前の原料種類、溶媒種類等によって溶解性が異なるが、仕込み固形分濃度を２０質量％～６０質量％とすれば、合成後の樹脂溶液粘度として好ましい範囲となる。

[0041] 上記硬化触媒の種類は特に限定されず、反応速度、反応温度、貯蔵安定性等の観点から適切なものを選択することができる。硬化触媒の具体例としては、イミダゾール化合物、有機リン化合物、第３級アミン、第４級アンモニウム塩等が挙げられる。これらは１種類単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。中でも、耐熱性の観点から、有機ホスフィン化合物；有機ホスフィン化合物に、無水マレイン酸、キノン化合物（１，４－ベンゾキノン、２，５－トルキノン、１，４－ナフトキノン、２，３－ジメチルベンゾキノン、２，６－ジメチルベンゾキノン、２，３－ジメトキシ－５－メチル

－１，４ベンゾキノン、２，３－ジメトキシ－１，４－ベンゾキノン、フェニル－１，４－ベンゾキノン等）、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等のπ結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；及び有機ホスフィン化合物と有機ボロン化合物（テトラフェニルボレート、テトラ－ｐ－トリルボレート、テトラ－ｎ－ブチルボレート等）との錯体；からなる群より選択される少なくとも１つであることが好ましい。

[0042] 有機ホスフィン化合物としては、具体的には、トリフェニルホスフィン、ジフェニル（ｐ－トリル）ホスフィン、トリス（アルキルフェニル）ホスフィン、トリス（アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（アルキルアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルコキシフェニル）ホスフィン、トリアルキルホスフィン、ジアルキルアリールホスフィン、アルキルジアリールホスフィン等が挙げられる。

[0043] 硬化触媒の量は特に制限されない。反応速度及び貯蔵安定性の観点から、上記エポキシ樹脂モノマーと上記２価フェノール化合物との合計質量に対して０．１質量％～１．５質量％であることが好ましく、０．２質量％～１質量％であることがより好ましい。

[0044] 本実施形態のエポキシ樹脂は、少量スケールであればガラス製のフラスコを使用し、大量スケールであればステンレス製の合成釜を使用して合成することができる。具体的な合成方法は、例えば以下の通りである。まず、上記エポキシ樹脂モノマーをフラスコ又は合成釜に投入し、合成溶媒を入れ、オイルバス又は熱媒により反応温度まで加温し、エポキシ樹脂モノマーを溶解する。そこに上記２価フェノール化合物を投入し、合成溶媒中に均一に溶解したことを確認した後に硬化触媒を投入し、反応を開始する。所定時間の後に反応溶液を取り出せば、エポキシ樹脂溶液が得られる。また、フラスコ内又は合成釜内において、加温条件のもと減圧下で合成溶媒を留去したものを

取り出せば、エポキシ樹脂が室温下で固体として得られる。

[0045] 反応温度は、硬化触媒の存在下でエポキシ基とフェノール性水酸基との反応が進行する温度であれば制限されず、例えば１００℃～１８０℃の範囲が好ましく、１２０℃～１７０℃の範囲がより好ましい。反応温度を１００℃以上とすることで、反応が完結するまでの時間をより短くできる傾向にある。一方、反応温度を１８０℃以下とすることで、ゲル化する可能性を低減できる傾向にある。

[0046] 本実施形態のエポキシ樹脂を合成する際に、上記エポキシ樹脂モノマーと上記２価フェノール化合物との当量比を変更して合成することができる。具体的には、上記エポキシ樹脂モノマーのエポキシ基の当量数（Ｅｐ）と上記２価フェノール化合物のフェノール性水酸基の当量数（Ｐｈ）との比率（Ｅｐ／Ｐｈ）を１００／１００～１００／１の範囲として合成することが可能である。エポキシ樹脂の流動性、耐熱性、及び熱伝導率の観点から、Ｅｐ／Ｐｈは１００／５０～１００／５の範囲が好ましい。Ｅｐ／Ｐｈを１００／５以下とすることで、得られるエポキシ樹脂の軟化点が低くなり、流動性を高めることができる傾向にある。一方、Ｅｐ／Ｐｈを１００／５０以上とすることで、架橋点密度の低下を抑え、耐熱性及び熱伝導率を高めることができる傾向にある。

[0047] 本実施形態のエポキシ樹脂は、流動性及び熱伝導性に優れ、後述する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物及び樹脂シートの材料として使用することができる。無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物又は樹脂シートは、電気自動車、ハイブリッド自動車、産業機器等のモーター用又はインバーター用の放熱材、プリント配線板用の放熱材、半導体素子用の封止材等への展開が期待される。

[0048] ＜エポキシ樹脂組成物＞

本発明の一実施形態におけるエポキシ樹脂組成物は、上述したエポキシ樹脂と、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマーとを含有し、環球法で測定した軟化点が１００℃以下である。軟化点が１００℃以下であることによ

り、エポキシ樹脂組成物の流動性が確保される。本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、後述する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物とは異なり、無機フィラーを含有しない。

[0049] 本明細書における軟化点は、以下のようにして測定するものとする。まず、加熱溶融したエポキシ樹脂組成物を金属製治具に流し込み、室温（２５℃）まで冷却し、金属製治具をエポキシ樹脂組成物で充填する。次いで、エポキシ樹脂組成物で充填した金属製治具を室温下で測定器のオイルバスに取り付け、環球をエポキシ樹脂組成物上に乗せる。オイルバスを昇温し、環球がエポキシ樹脂組成物に沈み込む温度を軟化点として読み取る。

[0050] エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂モノマーが有するメソゲン骨格は、本実施形態のエポキシ樹脂が有するメソゲン骨格と同じであることが、硬化物が液晶性又は結晶性を発現し、高次構造を形成する観点、及び高熱伝導率化する観点から好ましい。エポキシ樹脂モノマーが有するメソゲン骨格とエポキシ樹脂が有するメソゲン骨格とが異なる場合、分子間のスタッキングが損なわれ、高次構造を形成し難くなることがある。

[0051] エポキシ樹脂組成物中における本実施形態のエポキシ樹脂とメソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマーとの含有率は、環球法で測定した軟化点が１００℃以下である限り、特に限定されない。エポキシ樹脂組成物中における本実施形態のエポキシ樹脂の含有率は、１質量％～３０質量％であることが好ましく、５質量％～２０質量％であることがより好ましい。また、エポキシ樹脂組成物中におけるメソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマーの含有率は、７０質量％～９９質量％であることが好ましく、８０質量％～９５質量％であることがより好ましい。

[0052] なお、本実施形態のエポキシ樹脂を合成した際に得られる反応後の溶液から合成溶媒を留去して得られる固体には、本実施形態のエポキシ樹脂と共に未反応のエポキシ樹脂モノマーが含まれている。したがって、合成溶媒の留去後の固体を本実施形態のエポキシ樹脂組成物として用いることができる。

[0053] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物としては、１４０℃未満の温度で結晶相

から液晶相に転移するものが好ましい。結晶相から液晶相に転移する温度が１４０℃未満であることにより、流動性及び成形性が向上する傾向にある。

[0054] ＜無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物＞

本発明の一実施形態における無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上述したエポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物と、無機フィラーと、を含有する。本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、必要に応じてその他の成分をさらに含有していてもよい。以下、本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物を構成する各成分について説明する。

[0055] （エポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上述したエポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物を含有する。エポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物を含有することにより、流動性及び熱伝導性を高めることができる。

[0056] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中におけるエポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物の含有率は特に制限されない。流動性及び熱伝導性の観点から、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中におけるエポキシ樹脂又はエポキシ樹脂組成物の含有率は、３質量％～２０質量％であることが好ましく、５質量％～１０質量％であることがより好ましい。

[0057] （無機フィラー）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、無機フィラーの少なくとも１種類を含有する。無機フィラーを含有することにより、高熱伝導性を達成することができる。無機フィラーは絶縁性であっても導電性であってもよいが、絶縁性であることが好ましい。絶縁性の無機フィラーとして、具体的には、窒化ホウ素、アルミナ、シリカ、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ケイ素、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム等の粒子が挙げられる。中でも、流動性、熱伝導性、及び電気絶縁性の観点から、酸化マグネシウム及び酸化アルミニウムから選択される少なくとも１種類の粒子であることが好ましい。また、流動性を妨げない範囲で、窒化ホウ素、アルミナ、シリカ、窒化アルミニウム等の粒子を含有してもよい。

[0058] 上記無機フィラーは、横軸に粒子径を、縦軸に頻度をとった粒度分布曲線を描いた場合に単一のピークを有していてもよく、複数のピークを有していてもよい。粒度分布曲線が複数のピークを有する無機フィラーを用いることで、無機フィラーの充填性が向上し、硬化物の熱伝導性が向上する。

[0059] 上記無機フィラーが粒度分布曲線を描いたときに単一のピークを有する場合、無機フィラーの重量累積粒度分布の小粒径側からの累積５０％に対応する粒子径である平均粒子径（Ｄ５０）は、熱伝導性の観点から、０．１μｍ～１００μｍであることが好ましく、０．１μｍ～７０μｍであることがより好ましい。また、粒度分布曲線が複数のピークを有する場合は、例えば、異なる平均粒子径を有する２種類以上の無機フィラーを組み合わせて構成できる。

[0060] 本明細書において、無機フィラーの平均粒子径はレーザー回折法を用いて測定され、重量累積粒度分布曲線を小粒径側から描いた場合に、重量累積が５０％となる粒子径に対応する。レーザー回折法を用いた粒度分布測定は、レーザー回折散乱粒度分布測定装置（例えば、ベックマン・コールター株式会社製、ＬＳ２３０）を用いて行うことができる。

[0061] また、無機フィラーの比表面積の測定法としては、主にＢＥＴ法が適用される。ＢＥＴ法とは、窒素（N_2）、アルゴン（Ａｒ）、クリプトン（Ｋｒ）等の不活性気体分子を固体粒子に吸着させ、吸着した気体分子の量から固体粒子の比表面積を測定する気体吸着法である。比表面積の測定は、比表面積細孔分布測定装置（例えば、ベックマン・コールター株式会社製、ＳＡ３１００）を用いて行うことができる。

[0062] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中における無機フィラーの含有率は特に制限されない。熱伝導性及び成形性の観点から、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の全体積を１００体積％とした場合に、無機フィラーの含有率は６０体積％～９０体積％であることが好ましく、７０体積％～８５体積％であることがより好ましい。無機フィラーの含有率が６０体積％以上であることで、熱伝導性が向上する傾向にある。一方、無機フィラーの含有率が

９０体積％以下であることで、成形性が向上する傾向にある。

[0063] なお、本明細書における無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中の無機フィラーの含有率（体積％）は、次式により求めた値とする。

無機フィラーの含有率（体積％）＝｛（Ｅｗ／Ｅｄ）／（（Ａｗ／Ａｄ）＋（Ｂｗ／Ｂｄ）＋（Ｃｗ／Ｃｄ）＋（Ｄｗ／Ｄｄ）＋（Ｅｗ／Ｅｄ）＋（Ｆｗ／Ｆｄ））｝×１００

[0064] ここで、各変数は以下の通りである。

Ａｗ：エポキシ樹脂の質量組成比（質量％）

Ｂｗ：フェノール硬化剤（任意成分）の質量組成比（質量％）

Ｃｗ：シランカップリング剤（任意成分）の質量組成比（質量％）

Ｄｗ：硬化促進剤（任意成分）の質量組成比（質量％）

Ｅｗ：無機フィラーの質量組成比（質量％）

Ｆｗ：その他の成分（任意成分）の質量組成比（質量％）

Ａｄ：エポキシ樹脂の比重

Ｂｄ：フェノール硬化剤（任意成分）の比重

Ｃｄ：シランカップリング剤（任意成分）の比重

Ｄｄ：硬化促進剤（任意成分）の比重

Ｅｄ：無機フィラーの比重

Ｆｄ：その他の成分（任意成分）の比重

[0065] （フェノール硬化剤）

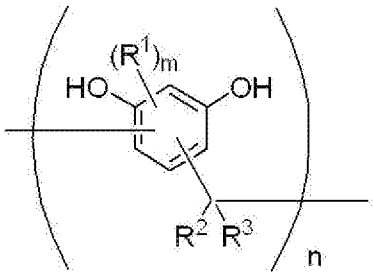
本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、フェノール硬化剤を含有していてもよい。フェノール硬化剤としては、通常用いられるものを特に制限なく用いることができ、市販の低分子フェノール化合物、及びそれらをノボラック化したフェノール樹脂を用いることができる。低分子フェノール化合物としては、フェノール、ｏ－クレゾール、ｍ－クレゾール、ｐ－クレゾール等の単官能の化合物；カテコール、レゾルシノール、ヒドロキノン等の２官能の化合物；１，２，３－トリヒドロキシベンゼン、１，２，４－トリヒドロキシベンゼン、１，３，５－トリヒドロキシベンゼン等の３官

能の化合物；などが挙げられる。また、これら低分子フェノール化合物をメチレン鎖等で連結してノボラック化したフェノールノボラック樹脂を硬化剤として用いることもできる。

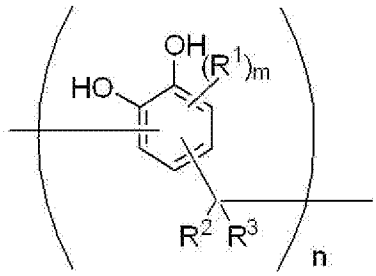
[0066] 上記フェノール硬化剤としては、熱伝導性の観点から、カテコール、レゾルシノール、ヒドロキノン等の２官能のフェノール化合物、又はこれらをメチレン鎖で連結したフェノールノボラック樹脂であることが好ましく、耐熱性の観点から、これら低分子の２官能のフェノール化合物をメチレン鎖で連結したフェノールノボラック樹脂であることがより好ましい。

[0067] 上記フェノールノボラック樹脂として、具体的には、クレゾールノボラック樹脂、カテコールノボラック樹脂、レゾルシノールノボラック樹脂、ヒドロキノンノボラック樹脂等の１種類のフェノール化合物をノボラック化した樹脂；カテコールレゾルシノールノボラック樹脂、レゾルシノールヒドロキノンノボラック樹脂等の２種類又はそれ以上のフェノール化合物をノボラック化した樹脂；などを挙げることができる。中でも、上記フェノールノボラック樹脂が、下記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造単位を有する化合物を含むことが好ましい。

[0068] [化5]



(I-1)



(I-2)

[0069] 上記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）において、Ｒ１はそれぞれ独立に、アルキル基、芳香族基、又はアラルキル基を示す。Ｒ１で示されるアルキル基、芳香族基、及びアラルキル基は、さらに置換基を有していてもよい。該置換基としては、アルキル基、アリール基、ハロゲン原子、水酸基等を挙げることができる。ｍはそれぞれ独立に、０～２の整数を示し、ｍが２の場合、２

つのR^1は同一であっても異なっていてもよい。ｍはそれぞれ独立に、０又は１であることが好ましく、０であることがより好ましい。また、ｎはそれぞれ独立に、１～７の整数を示す。

[0070] 上記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）において、R^2及びR^3はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、芳香族基、又はアラルキル基を示す。R^2及びR^3で示されるアルキル基、芳香族基、及びアラルキル基は、さらに置換基を有していてもよい。該置換基としては、アルキル基、アリール基、ハロゲン原子、水酸基等を挙げることができる。

[0071] 上記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）中のR^2及びR^3としては、保存安定性及び熱伝導性の観点から、水素原子、アルキル基、又は芳香族基であることが好ましく、水素原子、炭素数１～４のアルキル基、又は炭素数６～１２の芳香族基であることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

[0072] 上記一般式（Ｉ－１）で表される構造単位を有する化合物は、レゾルシノール以外のフェノール化合物に由来する部分構造の少なくとも１種類をさらに含んでいてもよい。上記一般式（Ｉ－１）におけるレゾルシノール以外のフェノール化合物としては、例えば、フェノール、クレゾール、カテコール、ヒドロキノン、１，２，３－トリヒドロキシベンゼン、１，２，４－トリヒドロキシベンゼン、１，３，５－トリヒドロキシベンゼン等を挙げることができる。本実施形態においては、これらに由来する部分構造を１種類単独で含んでいてもよく、２種類以上を組み合わせて含んでいてもよい。

また、上記一般式（Ｉ－２）で表されるカテコールに由来する構造単位を有する化合物においても同様に、カテコール以外のフェノール化合物に由来する部分構造の少なくとも１種類を含んでいてもよい。

[0073] ここで、フェノール化合物に由来する部分構造とは、フェノール化合物のベンゼン環部分から１個又は２個の水素原子を取り除いて構成される１価又は２価の基を意味する。なお、水素原子が取り除かれる位置は特に限定されない。

[0074] 上記一般式（Ｉ－１）で表される構造単位を有する化合物において、レゾルシノール以外のフェノール化合物に由来する部分構造としては、熱伝導性及び接着性の観点から、フェノール、クレゾール、カテコール、ヒドロキノン、１，２，３－トリヒドロキシベンゼン、１，２，４－トリヒドロキシベンゼン、及び１，３，５－トリヒドロキシベンゼンから選ばれる少なくとも１種類に由来する部分構造であることが好ましく、カテコール及びヒドロキノンから選ばれる少なくとも１種類に由来する部分構造であることがより好ましい。

[0075] また、上記一般式（Ｉ－１）で表される構造単位を有する化合物において、レゾルシノールに由来する部分構造の含有比率については特に制限はない。弾性率の観点から、上記一般式（Ｉ－１）で表される構造単位を有する化合物の全質量に対するレゾルシノールに由来する部分構造の含有比率は５５質量％以上であることが好ましい。硬化物のガラス転移温度（Ｔｇ）及び線膨張率の観点から、上記一般式（Ｉ－１）で表される構造単位を有する化合物の全質量に対するレゾルシノールに由来する部分構造の含有比率は６０質量％以上であることがより好ましく、８０質量％以上であることがさらに好ましく、熱伝導性の観点から、９０質量％以上であることが特に好ましい。

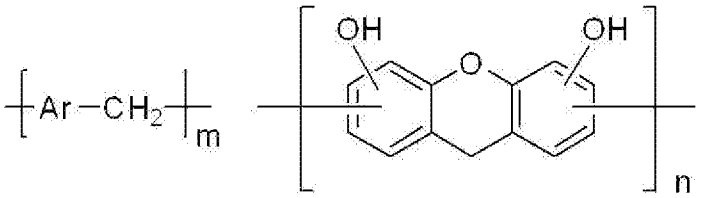
[0076] 上記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造単位を有する化合物の分子量は特に制限されない。流動性の観点から、数平均分子量（Ｍｎ）として２０００以下であることが好ましく、１５００以下であることがより好ましく、３５０～１５００であることがさらに好ましい。また、重量平均分子量（Ｍｗ）としては２０００以下であることが好ましく、１５００以下であることがより好ましく、４００～１５００であることがさらに好ましい。これらＭｎ及びＭｗは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた通常の方法により測定される。

[0077] 上記一般式（Ｉ－１）及び（Ｉ－２）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造単位を有する化合物の水酸基当量は特に制限されない

。耐熱性に関与する架橋密度の観点から、水酸基当量は平均値で５０ｇ／ｅｑ～１５０ｇ／ｅｑであることが好ましく、５０ｇ／ｅｑ～１２０ｇ／ｅｑであることがより好ましく、５５ｇ／ｅｑ～１２０ｇ／ｅｑであることがさらに好ましい。

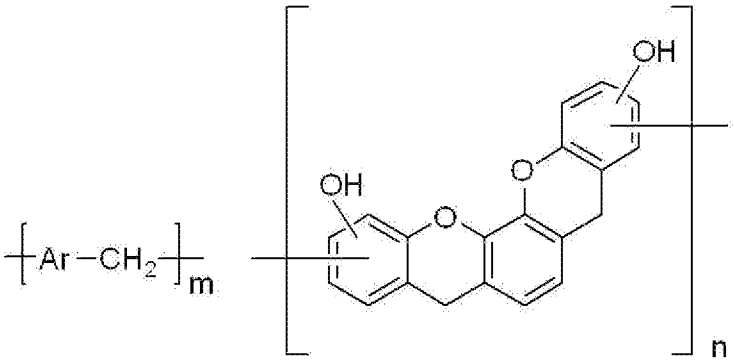
[0078] また、上記フェノールノボラック樹脂は、下記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物を含むことも好ましい。

[0079] [化6]



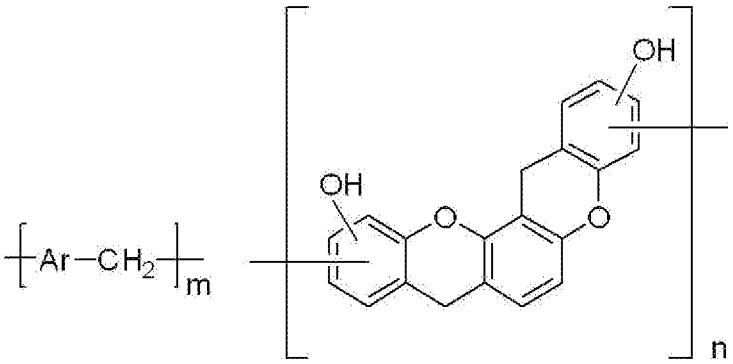
(II-1)

[0080] [化7]



(II-2)

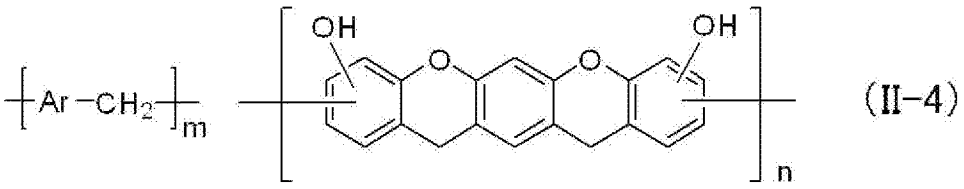
[0081] [化8]



(II-3)

[0082]

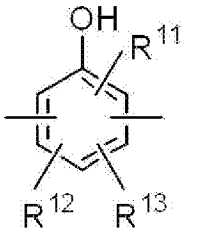
[化9]



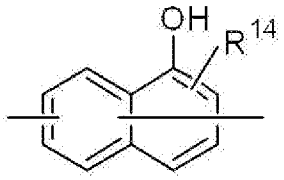
(II-4)

[0083] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）中、ｍ及びｎはそれぞれ独立に、正の整数を示し、ｍ又はｎが付されたそれぞれの構造単位の繰り返し数を意味する。また、Ａｒはそれぞれ独立に、下記一般式（ＩＩ－ａ）及び（ＩＩ－ｂ）のいずれか１つで表される基を示す。

[0084] [化10]



(II-a)



(II-b)

[0085] 上記一般式（ＩＩ－ａ）及び（ＩＩ－ｂ）中、R^{11}及びR^{14}はそれぞれ独立に、水素原子又は水酸基を示す。R^{12}及びR^{13}はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数１～８のアルキル基を示す。

[0086] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物は、２価のフェノール化合物をノボラック化する製造方法によって副生成的に生成可能なものである。

[0087] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造は、上記フェノールノボラック樹脂の主鎖骨格として含まれていてもよく、又は上記フェノールノボラック樹脂の側鎖の一部として含まれていてもよい。さらに、上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）のいずれか１つで表される構造を構成するそれぞれの構造単位は、ランダムに含まれていてもよいし、規則的に含まれていてもよいし、ブロック状に含まれていてもよい。

また、上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）において、水酸基の置換位置は芳香族環上であれば特に制限されない。

[0088] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）のそれぞれについて、複数存在するＡｒは全て同一の原子団であってもよいし、２種類以上の原子団を含んでいてもよい。なお、Ａｒは上記一般式（ＩＩ－ａ）及び（ＩＩ－ｂ）のいずれか１つで表される基を示す。

[0089] 上記一般式（ＩＩ－ａ）及び（ＩＩ－ｂ）におけるR^{11}及びR^{14}はそれぞれ独立に、水素原子又は水酸基を示し、熱伝導性の観点から水酸基であることが好ましい。また、R^{11}及びR^{14}の置換位置は特に制限されない。

[0090] また、上記一般式（ＩＩ－ａ）におけるR^{12}及びR^{13}はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数１～８のアルキル基を示す。R^{12}及びR^{13}における炭素数１～８のアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基等が挙げられる。また、上記一般式（ＩＩ－ａ）におけるR^{12}及びR^{13}の置換位置は特に制限されない。

[0091] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）におけるＡｒは、より優れた熱伝導性を達成する観点から、ジヒドロキシベンゼンに由来する基（上記一般式（ＩＩ－ａ）においてR^{11}が水酸基であって、R^{12}及びR^{13}が水素原子である基）、及びジヒドロキシナフタレンに由来する基（上記一般式（ＩＩ－ｂ）においてR^{14}が水酸基である基）からなる群より選ばれる少なくとも１種類であることが好ましい。

[0092] ここで、「ジヒドロキシベンゼンに由来する基」とは、ジヒドロキシベンゼンの芳香環部分から水素原子を２つ取り除いて構成される２価の基を意味し、水素原子が取り除かれる位置は特に制限されない。「ジヒドロキシナフタレンに由来する基」についても同様の意味である。

[0093] また、本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の生産性及び流動性の観点からは、Ａｒはジヒドロキシベンゼンに由来する基であることがより好ましく、１，２－ジヒドロキシベンゼン（カテコール）に由来する基及び１，３－ジヒドロキシベンゼン（レゾルシノール）に由来する基からなる群より選ばれる少なくとも１種類であることがより好ましい。さらに、熱

伝導性を特に高める観点から、Ａｒとして少なくともレゾルシノールに由来する基を含むことが好ましい。また、熱伝導性を特に高める観点から、繰り返し数がｎで示される構造単位は、レゾルシノールに由来する基を含んでいることが好ましい。レゾルシノールに由来する基を含む構造単位の含有率は、弾性率の観点から、上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物の総重量中において５５質量％以上であることが好ましい。硬化物のガラス転移温度（Ｔｇ）及び線膨張率の観点から、上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物の総重量に対するレゾルシノールに由来する基を含む構造単位の含有率は、６０質量％以上であることがより好ましく、８０質量％以上であることがさらに好ましく、熱伝導性の観点から、９０質量％以上であることが特に好ましい。

[0094] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）におけるｍ及びｎについては、流動性の観点からｍ／ｎ＝２０／１～１／５であることが好ましく、２０／１～５／１であることがより好ましく、２０／１～１０／１であることがさらに好ましい。また、（ｍ＋ｎ）は、流動性の観点から２０以下であることが好ましく、１５以下であることがより好ましく、１０以下であることがさらに好ましい。なお、（ｍ＋ｎ）の下限値は特に制限されない。

[0095] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物は、特にＡｒが置換又は非置換のジヒドロキシベンゼン及び置換又は非置換のジヒドロキシナフタレンの少なくともいずれか１種類である場合、これらを単純にノボラック化した樹脂等と比較して、その合成が容易であり、軟化点の低い硬化剤が得られる傾向にある。したがって、このような樹脂を含む樹脂組成物の製造や取り扱いも容易になる等の利点がある。

[0096] なお、上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物は、電界脱離イオン化質量分析法（ＦＤ－ＭＳ）によって、そのフラグメント成分として上記構造が含ま

れていることを容易に特定することができる。

[0097] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物の分子量は特に制限されない。流動性の観点から、数平均分子量（Ｍｎ）として２０００以下であることが好ましく、１５００以下であることがより好ましく、３５０～１５００であることがさらに好ましい。また、重量平均分子量（Ｍｗ）としては２０００以下であることが好ましく、１５００以下であることがより好ましく、４００～１５００であることがさらに好ましい。これらＭｎ及びＭｗは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた通常の方法により測定される。

[0098] 上記一般式（ＩＩ－１）～（ＩＩ－４）からなる群より選択される少なくとも１つで表される構造を有する化合物の水酸基当量は特に制限されない。耐熱性に関与する架橋密度の観点から、水酸基当量は平均値で５０ｇ／ｅｑ～１５０ｇ／ｅｑであることが好ましく、５０ｇ／ｅｑ～１２０ｇ／ｅｑであることがより好ましく、５５ｇ／ｅｑ～１２０ｇ／ｅｑであることがさらに好ましい。

[0099] 上記フェノール硬化剤は、上記フェノールノボラック樹脂を構成するフェノール化合物であるモノマーを含んでいてもよい。フェノールノボラック樹脂を構成するフェノール化合物であるモノマーの含有比率（以下、「モノマー含有比率」ともいう。）としては特に制限されない。熱伝導性及び成形性の観点から、モノマー含有比率は５質量％～８０質量％であることが好ましく、１５質量％～６０質量％であることがより好ましく、２０質量％～５０質量％であることがさらに好ましい。モノマー含有比率が８０質量％以下であることで、硬化反応の際に架橋に寄与しないモノマーが少なくなり、架橋する高分子量体が多くなるため、より高密度な高次構造が形成され、熱伝導性が向上する。また、モノマー含有比率が５質量％以上であることで、成形の際に流動し易いため、無機フィラーとの密着性がより向上し、より優れた熱伝導性及び耐熱性が達成できる。

[0100] 本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物がフェノール硬化剤を含有する場合、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中におけるフェノール硬化剤の含有率は特に制限されない。フェノール硬化剤におけるフェノール性水酸基の活性水素の当量数（フェノール性水酸基の当量数）と、上記エポキシ樹脂又は上記エポキシ樹脂組成物におけるエポキシ基の当量数との比（フェノール性水酸基の当量数／エポキシ基の当量数）が０．５～２となることが好ましく、０．８～１．２となることがより好ましい。

[0101]（硬化促進剤）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物がフェノール硬化剤を含有する場合、必要に応じて硬化促進剤を併用しても構わない。硬化促進剤を併用することで、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物をさらに十分に硬化させることができる。硬化促進剤の種類や配合量は特に限定されず、反応速度、反応温度、保管性等の観点から適切なものを選択することができる。硬化促進剤の具体例としては、イミダゾール化合物、有機リン化合物、第３級アミン、第４級アンモニウム塩等が挙げられる。これらは１種類単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。中でも、耐熱性の観点から、有機ホスフィン化合物；有機ホスフィン化合物に無水マレイン酸、キノン化合物（１，４－ベンゾキノン、２，５－トルキノン、１，４－ナフトキノン、２，３－ジメチルベンゾキノン、２，６－ジメチルベンゾキノン、２，３－ジメトキシ－５－メチル－１，４ベンゾキノン、２，３－ジメトキシ－１，４－ベンゾキノン、フェニル－１，４－ベンゾキノン等）、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等のπ結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；及び有機ホスフィン化合物と有機ボロン化合物（テトラフェニルボレート、テトラ－ｐ－トリルボレート、テトラ－ｎ－ブチルボレート等）との錯体；からなる群より選択される少なくとも１つであることが好ましい。

[0102] 有機ホスフィン化合物としては、具体的には、トリフェニルホスフィン、ジフェニル（ｐ－トリル）ホスフィン、トリス（アルキルフェニル）ホスフ

ィン、トリス（アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（アルキルアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルコキシフェニル）ホスフィン、トリアルキルホスフィン、ジアルキルアリールホスフィン、アルキルジアリールホスフィン等が挙げられる。

[0103] 本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物が硬化促進剤を含有する場合、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中における硬化促進剤の含有率は特に制限されない。流動性及び成形性の観点から、硬化促進剤の含有率は、上記エポキシ樹脂又は上記エポキシ樹脂組成物と上記フェノール硬化剤との合計質量に対して０．１質量％～１．５質量％であることが好ましく、０．２質量％～１質量％であることがより好ましい。

[0104] （シランカップリング剤）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、シランカップリング剤を含有していてもよい。シランカップリング剤を含有すると、無機フィラーの表面とその周りを取り囲むエポキシ樹脂との間で相互作用することにより流動性及び熱伝導性が向上する傾向にあり、さらには水分の浸入を妨げることにより絶縁信頼性が向上する傾向にある。中でも、フェニル基を含有するシランカップリング剤は、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂と相互作用しやすいため、より優れた熱伝導性が期待できる。

[0105] フェニル基を含有するシランカップリング剤の種類としては特に限定されず、市販のものを使用することができる。フェニル基を含有するシランカップリング剤の具体例としては、３－フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、３－フェニルアミノプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－メチルアニリノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－メチルアニリノプロピルトリエトキシシラン、３－フェニルイミノプロピルトリメトキシシラン、３－フェニルイミノプロピルトリエトキシシラン、フェニルトリメトシキシラン、フェニル

トリエトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、トリフェニルメトキシシラン、トリフェニルエトキシシラン等が挙げられる。これらシランカップリング剤は１種類単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。

[0106] シランカップリング剤の使用量は、上記無機フィラー全体の表面積に対する被覆率（以下、シランカップリング剤の被覆率と記す。）が０．４～０．８となるように設定することが好ましい。この被覆率は次式により算出される。

シランカップリング剤の被覆率＝｛シランカップリング剤の最小被覆面積（m^2／ｇ）×シランカップリング剤の使用量（ｇ）｝／｛無機フィラーの比表面積（m^2／ｇ）×無機フィラーの使用量（ｇ）｝

また、上式のシランカップリング剤の最小被覆面積は次式により算出される。

シランカップリング剤の最小被覆面積（m^2／ｇ）＝{アボガドロ定数（６．０２×10^{23}）（mol^{-1}）×シランカップリング剤１分子当たりの被覆面積（１３×10^{-20}）（m^2）}／シランカップリング剤の分子量（ｇ／ｍｏｌ）

[0107] 上式により求められるシランカップリング剤の被覆率は、無機フィラー表面をシランカップリング剤が全て覆い尽くす場合に１となるが、この場合、無機フィラーの表面にシランカップリング剤と反応するだけの水酸基等の極性基がない場合があるために、無機フィラーと反応しない未反応のシランカップリング剤が生じる場合がある。そのため、シランカップリング剤の被覆率が０．８を超える場合では、無機フィラーと結合しないシランカップリング剤が無機フィラーとエポキシ樹脂との結合やエポキシ樹脂間の架橋を阻害し、熱伝導率を低下させる恐れがある。また、シランカップリング剤の被覆率が０．４未満では、成形後にボイド等の成形不良が発生しやすい傾向にある。したがって、シランカップリング剤の被覆率は０．４～０．８が好ましく、０．５～０．７がより好ましい。

[0108] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物へのシランカップリング剤の添加方法としては特に制限はない。具体的な添加方法としては、エポキシ樹脂、無機フィラー等の他の材料と混合する際に添加するインテグラル法；少量のエポキシ樹脂に一定量のシランカップリング剤を混合した後、無機フィラー等の他の材料と混合するマスターバッチ法；エポキシ樹脂等の他の材料と混合する前に、無機フィラーと混合して予め無機フィラーの表面にシランカップリング剤を処理する前処理法；等が挙げられる。また、前処理法には、シランカップリング剤の原液又は溶液を無機フィラーとともに高速撹拌により均一に分散させて処理する乾式法と、シランカップリング剤の希薄溶液でスラリー化したり、直接浸漬したりすることで無機フィラー表面に処理を施す湿式法とがある。

[0109] （その他の成分）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて離型剤を含有していてもよい。離型剤としては、酸化型又は非酸化型のポリオレフィン、カルナバワックス、モンタン酸エステル、モンタン酸、ステアリン酸等が挙げられる。これらの離型剤は１種単独で用いても、２種以上を併用してもよい。

また、本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて、シリコーンオイル、シリコーンゴム粉末等の応力緩和剤；グラスファイバー等の補強材；などを含有していてもよい。

[0110] （無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の調製方法）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の調製方法としては、各種成分を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いてもよい。一般的な手法として、所定の配合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって溶融混練した後、冷却、粉砕する方法を挙げることができる。例えば、上述した成分の所定量を均一に撹拌、混合し、予め７０℃～１４０℃に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練、冷却し、粉砕するなどの方法で無機フィラー含有エ

ポキシ樹脂組成物である成形材を得ることができる。成形条件に合うような寸法及び質量で高熱伝導樹脂組成物をタブレット化すると使いやすい。

[0111] （無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の熱伝導率）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、硬化物の熱伝導率が７Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上であることが好ましい。

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の硬化方法は特に制限されない。例えば、１００℃～２５０℃で１時間～１０時間、好ましくは１３０℃～２３０℃で１時間～８時間加熱することにより、硬化物を得ることができる。また、後述するように、本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、トランスファー成形法、圧縮成形法等によって硬化することもできる。

[0112] 硬化物の熱伝導率は、レーザーフラッシュ法により測定した硬化物の熱拡散率と、硬化物の比熱及び比重との積から求めることができる。熱拡散率の測定は、熱拡散率測定装置（例えば、ＮＥＴＺＳＣＨ社製、ＬＦＡ４４７）を用いて行うことができる。

[0113] ＜樹脂シート＞

本発明の一実施形態における樹脂シートは、上述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物のシート状成形体であり、必要に応じて基材をさらに含んで構成される。この樹脂シートは、上述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂を溶解できる有機溶剤を無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物に添加して調製した塗工液を、基材上に塗布して塗布層を形成し、加熱乾燥によって有機溶剤を除去することで製造することができる。

[0114] 基材の種類は特に制限されない。基材の種類としては、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルム、アルミ箔、銅箔等が挙げられる。基材の厚みに特に制限はなく、例えば２５μｍ～１００μｍとすることができる。

[0115] 基材上への塗工液の塗布は、公知の方法により実施することができる。具体的には、コンマコート、ダイコート、リップコート、グラビアコート等の方法が挙げられる。

[0116] 基材上に形成される無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物のシート状成形体（以下、樹脂層ともいう。）の厚みは特に制限されず、目的に応じて適宜選択することができる。例えば、樹脂層の厚みは５０μｍ～５００μｍであることが好ましく、１００μｍ～３００μｍであることがより好ましい。

[0117] 本実施形態の樹脂シートは、例えば、接着シートとして用いることができる。一般的な使用法では、樹脂シートは基材を含んで構成され、樹脂層を被着体に貼り付けた後に基材が除去される。

[0118] ＜硬化物＞

本発明の一実施形態における硬化物は、上述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物又は樹脂シートを硬化させたものである。

[0119] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の硬化方法は特に制限されない。例えば、１００℃～２５０℃で１時間～１０時間、好ましくは１３０℃～２３０℃で１時間～８時間加熱することにより、硬化物を得ることができる。

[0120] また、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、トランスファー成形法、圧縮成形法等によって硬化することもできる。例えばトランスファー成形では、金型温度１４０℃～１８０℃、成形圧力１０ＭＰａ～２５ＭＰａで３０秒間～６００秒間加熱することにより、硬化物を得ることができる。必要に応じて、金型から外した硬化物を１６０℃～２００℃で２時間～８時間さらに加熱し、後硬化してもよい。

[0121] 樹脂シートの硬化方法は特に制限されないが、加熱及び加圧処理であることが好ましい。例えば、樹脂シートを１ＭＰａ～２０ＭＰａに加圧しながら、１００℃～２５０℃で１時間～１０時間、好ましくは１ＭＰａ～１５ＭＰａに加圧しながら、１３０℃～２３０℃で１時間～８時間加熱することにより、硬化物を得ることができる。必要に応じて、加圧硬化処理を行った後に、１６０℃～２００℃で２時間～８時間さらに加熱し、後硬化してもよい。

[0122] 本実施形態の硬化物は、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有することが好ましい。このような回折ピークを有する硬化物は樹脂の高次構造（スメクチック相）が形

成されており、熱伝導性に優れる。

[0123] なお、本明細書におけるＣｕＫα線を用いたＸ線回折測定の詳細は以下の通りである。

〔測定条件〕

使用装置：薄膜構造評価用Ｘ線回折装置ＡＴＸ－Ｇ（株式会社リガク製）

Ｘ線種類：ＣｕＫα

走査モード：２θ／ω

出力：５０ｋＶ、３００ｍＡ

Ｓ１スリット：幅０．２ｍｍ、高さ：１０ｍｍ

Ｓ２スリット：幅０．２ｍｍ、高さ：１０ｍｍ

ＲＳスリット：幅０．２ｍｍ、高さ：１０ｍｍ

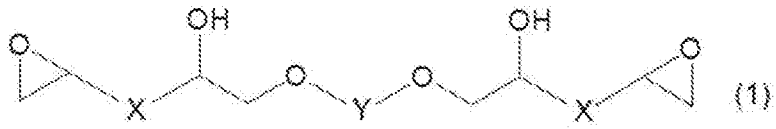
測定範囲：２θ＝２．０°～４．５°

サンプリング幅：０．０１°

[0124] ＜エポキシ化合物＞

本発明の一実施形態におけるエポキシ化合物は、下記式（１）で表される。

[0125] [化11]



(1)

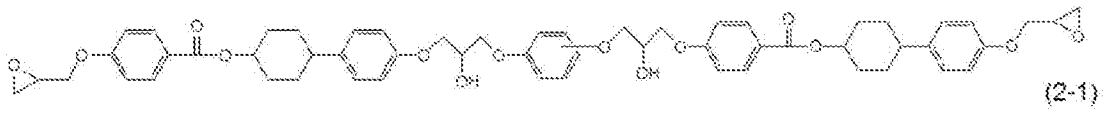
[0126] 上記式（１）中、Ｘはそれぞれ独立に、メソゲン骨格を含む２価の基を示し、Ｙは、置換基を有していてもよいフェニレン基を示す。Ｙが有していてもよい置換基としては、炭素数１～８のアルキル基等が挙げられる。

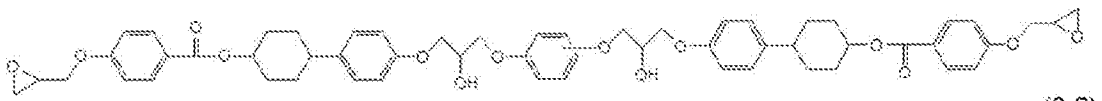
[0127] 上記式（１）で表されるエポキシ化合物は、例えば、メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有する上記エポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する上記２価フェノール化合物とを反応させることにより得ることができる。この場合、上記式（１）中のＸは、上記エポキシ樹脂モノマーが有する２個のグリシジル基由

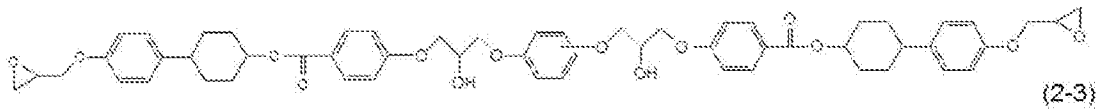
来のエポキシ基を除いた部分構造に対応する。また、上記式（１）中のＹは、上記２価フェノール化合物が有する２個の水酸基を除いた部分構造に対応する。

[0128] 上記式（１）中のＸは、熱伝導率を向上させる観点から、４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートが有する２個のグリシジル基由来のエポキシ基を除いた部分構造を示すことが好ましく、ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートが有する２個のグリシジル基由来のエポキシ基を除いた部分構造を示すことがより好ましい。また、上記式（１）中のＹは、カテコール、レゾルシノール、又はヒドロキノンが有する２個の水酸基を除いた部分構造を示すことが好ましい。すなわち、本実施形態のエポキシ化合物は、下記式（２－１）～（２－３）の少なくとも１つで表される化合物であることが好ましく、下記式（２－ａ）～（２－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物であることがより好ましい。

[0129] [化12]

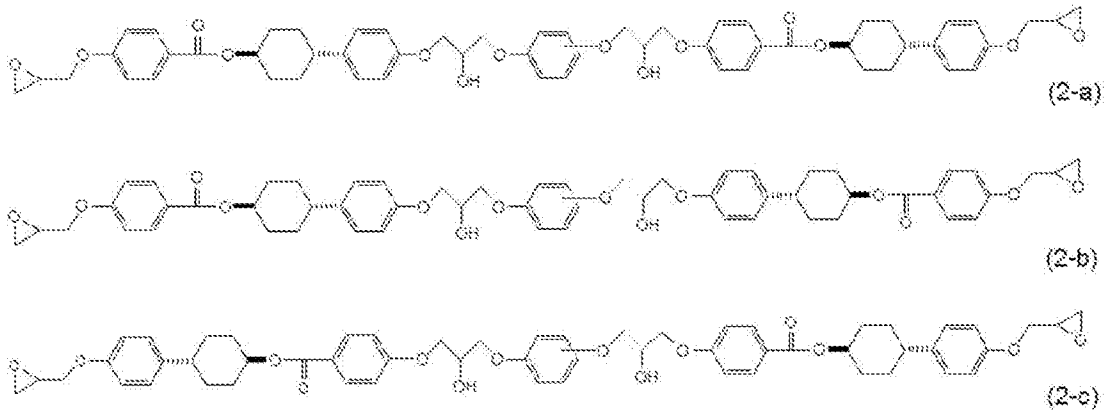

(2-1)


(2-2)


(2-3)

[0130]

[化13]



(2-a)

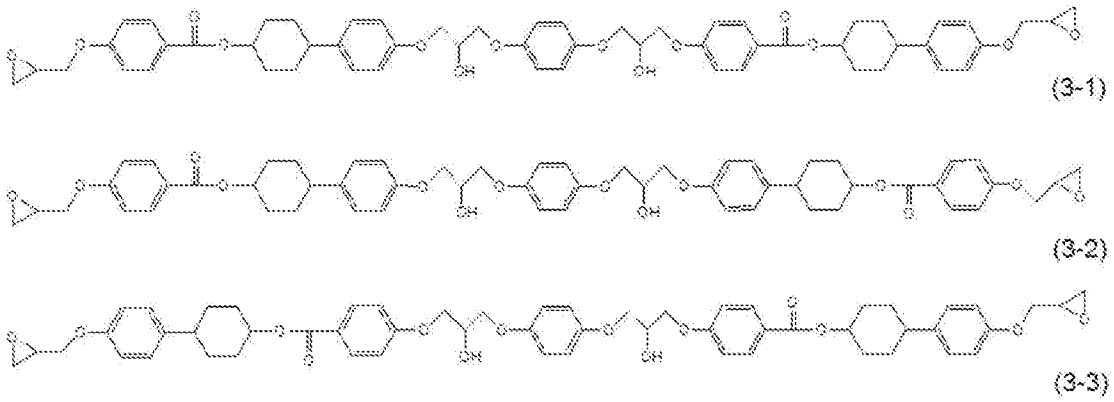
(2-b)

(2-c)

[0131] 上記式（２－１）～（２－３）及び上記式（２－ａ）～（２－ｃ）で表される各エポキシ化合物には、上記式（１）中のＹにおけるベンゼン環上の置換位置が異なる３種類の異性体が存在する。

[0132] 例えば、上記式（１）中のＹがヒドロキノンに由来する部分構造である場合、上記式（２－１）～（２－３）及び上記式（２－ａ）～（２－ｃ）で表されるエポキシ化合物は、それぞれ下記式（３－１）～（３－３）及び下記式（３－ａ）～（３－ｃ）で表される。

[0133] [化14]



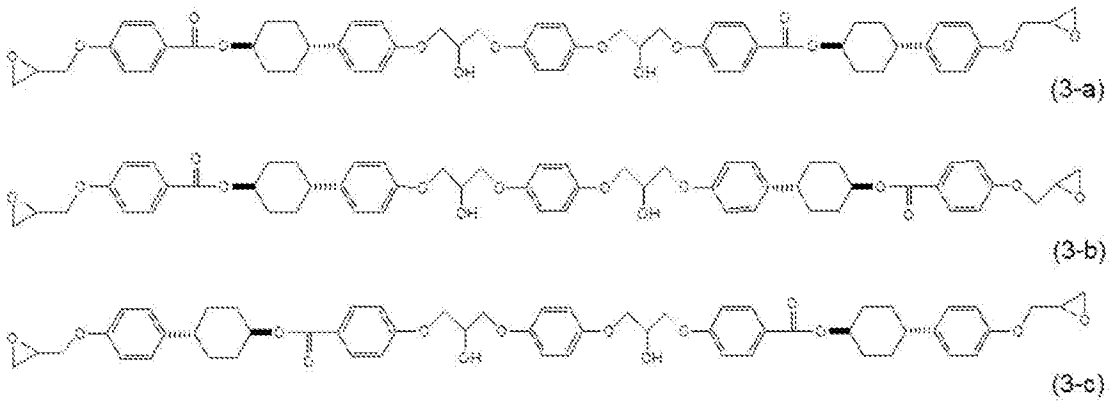
(3-1)

(3-2)

(3-3)

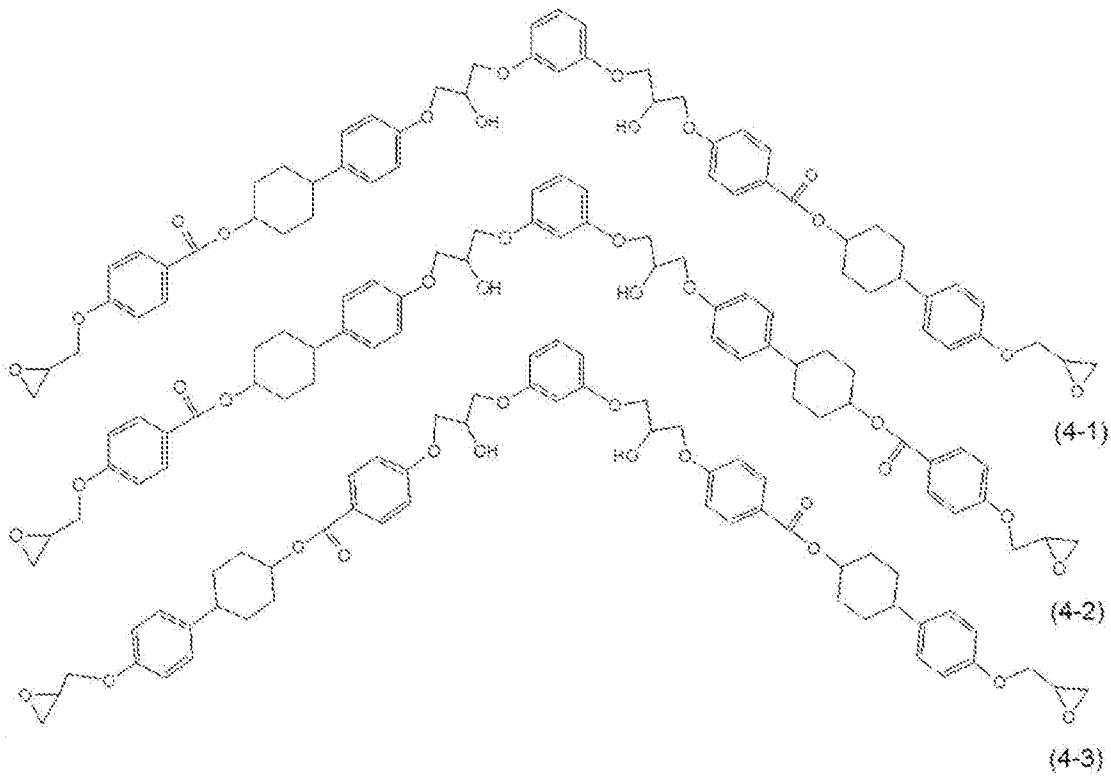
[0134]

[化15]



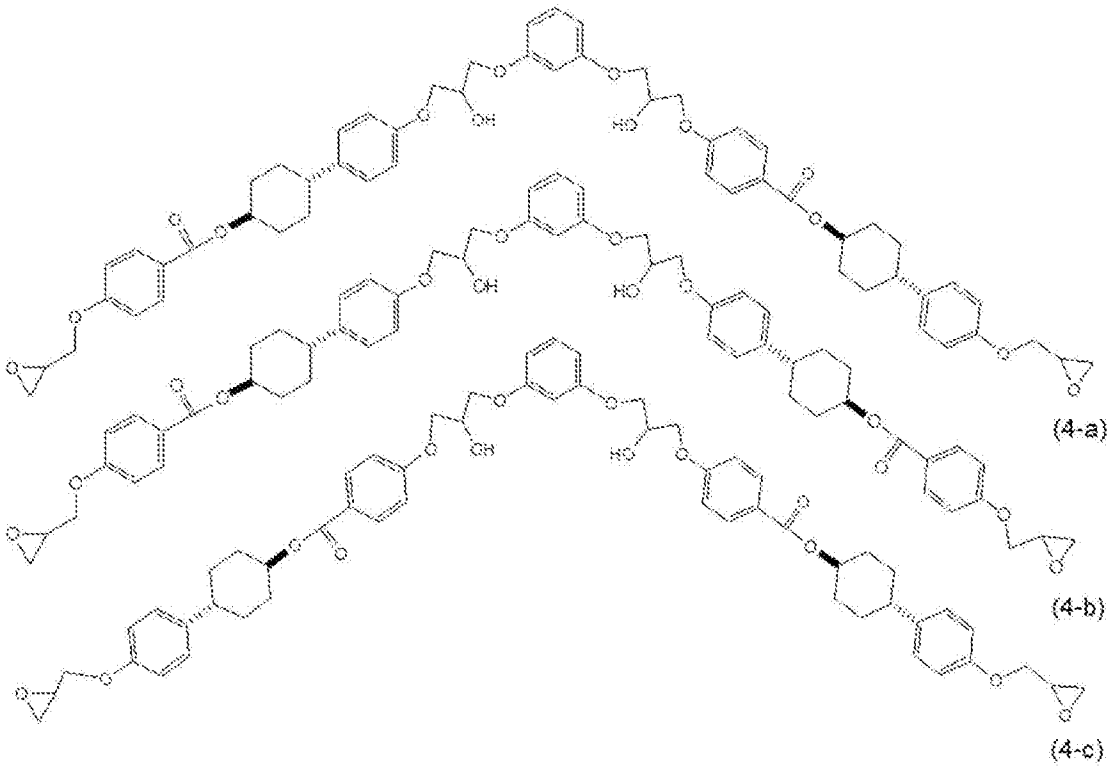
[0135] また、上記式（１）中のＹがレゾルシノールに由来する部分構造である場合、上記式（２－１）～（２－３）及び上記式（２－ａ）～（２－ｃ）で表されるエポキシ化合物は、それぞれ下記式（４－１）～（４－３）及び下記式（４－ａ）～（４－ｃ）で表される。

[0136] [化16]



[0137]

[化17]



[0138] その中でも、本実施形態のエポキシ化合物としては、上記式（３－１）～（３－３）の少なくとも１つで表される化合物であることが好ましく、上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物であることがより好ましい。上記式（３－１）～（３－３）及び上記式（３－ａ）～（３－ｃ）で表される各エポキシ化合物は、直線構造であり分子のスタッキング性が高く、高次構造を形成し易いため、熱伝導率を向上させ易い傾向にある。

[0139] ＜無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物＞

本発明の他の実施形態における無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上述した式（１）で表されるエポキシ化合物と、無機フィラーと、を含有する。以下、本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物を構成する各成分について説明する。

[0140] （エポキシ化合物）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上記式（１）で表

されるエポキシ化合物を含有する。上記式（１）で表されるエポキシ化合物を含有することにより、流動性及び熱伝導性を高めることができる。

[0141] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中における上記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有率は特に制限されない。流動性及び熱伝導性の観点から、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中における上記式（１）で表されるエポキシ化合物の含有率は、１質量％～５０質量％であることが好ましく、５質量％～３０質量％であることがより好ましい。

[0142] 本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上記式（１）で表されるエポキシ化合物のほかに、メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーを含有していてもよく、該エポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物との反応により得られるエポキシ樹脂を含有していてもよい。

[0143]（無機フィラー）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、無機フィラーの少なくとも１種類を含有する。無機フィラーとしては、上述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物で例示したものが挙げられる。

[0144] 無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物中における無機フィラーの含有率は特に制限されない。熱伝導性の観点から、無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の全体積を１００体積％とした場合に、無機フィラーの含有率は６０体積％～９０体積％であることが好ましく、７０体積％～８５体積％であることがより好ましい。

[0145]（その他の成分）

本実施形態の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物は、上述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物と同様に、フェノール硬化剤、硬化促進剤、シランカップリング剤、離型剤等の他の成分をさらに含有していてもよい。

[0146]＜硬化物＞

本発明の他の実施形態における硬化物は、上述したエポキシ化合物又は上

述した無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物を硬化させたものである。

エポキシ化合物又は無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物の硬化方法は特に制限されない。例えば、１００℃～２５０℃で１時間～１０時間、好ましくは１３０℃～２３０℃で１時間～８時間加熱することにより、硬化物を得ることができる。

実施例

[0147] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、特に断りのない限り、「部」及び「％」は質量基準である。

[0148] 以下に、エポキシ樹脂の合成に用いた材料及びその略称を示す。

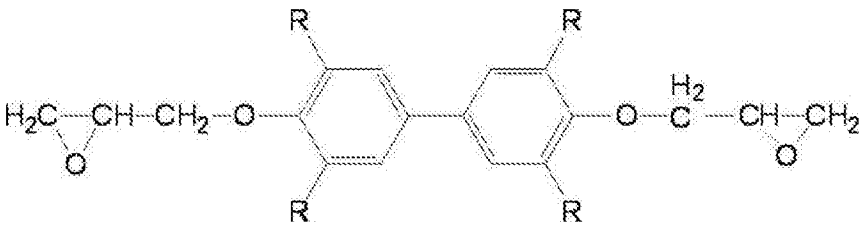
・エポキシ樹脂モノマー１

製品名：ＭＥ２１（ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエート、住友化学株式会社製、特許第５４７１９７５号公報参照、エポキシ当量：２１２ｇ／ｅｑ）

・エポキシ樹脂モノマー２

製品名：ＹＬ６１２１Ｈ（下記式中、Ｒが水素原子である化合物とＲがメチル基である化合物とが約１：１の質量比で混合された混合物、三菱化学株式会社製、エポキシ当量：１７２ｇ／ｅｑ）

[0149] [化18]



[0150] ・フェノール化合物１

化合物名：ヒドロキノン（水酸基当量：５５ｇ／ｅｑ）

・フェノール化合物２

化合物名：レゾルシノール（水酸基当量：５５ｇ／ｅｑ）

・合成溶媒１

シクロヘキサノン（沸点：１５６℃）

・硬化触媒１

トリフェニルホスフィン（北興化学工業株式会社製、分子量：２６２）

[0151] ＜実施例１＞

［エポキシ樹脂の合成］

５００ｍＬの三口フラスコに、エポキシ樹脂モノマー１（ＭＥ２１）を５０ｇ（０．１１８ｍｏｌ）量り取り、そこに合成溶媒１（シクロヘキサノン）を８０ｇ添加した。三口フラスコに冷却管及び窒素導入管を設置し、溶媒に漬かるように撹拌羽を取り付けた。この三口フラスコを１６０℃のオイルバスに浸漬し、撹拌を開始した。数分後にエポキシ樹脂モノマー１が溶解し、透明な溶液になったことを確認した後に、フェノール化合物１（ヒドロキノン）を０．９１ｇ（０．００８３ｍｏｌ）フラスコに添加し、さらに硬化触媒１（トリフェニルホスフィン）を０．５ｇ添加し、１６０℃のオイルバス温度で加熱を継続した。５時間加熱を継続した後に、反応溶液からシクロヘキサノンを減圧留去した残渣を室温まで冷却することにより、エポキシ樹脂１を得た。なお、このエポキシ樹脂１には、合成溶媒の一部と未反応のエポキシ樹脂モノマーとが含まれている。

[0152] エポキシ樹脂１の固形分量を加熱減量法により測定したところ、９６．９％であった。なお、固形分量は、エポキシ樹脂１をアルミ製のカップに１．０ｇ～１．１ｇ量り取り、１８０℃の温度に設定した乾燥機内に３０分間放置した後の計測量と、加熱前の計測量とに基づき、次式により算出した。

固形分量（％）＝（３０分間放置した後の計測量／加熱前の計測量）×１００

[0153] また、エポキシ樹脂１の数平均分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定したところ、合成により新たに生成したポリマー成分の数平均分子量は１２１０、未反応のエポキシ樹脂モノマーを含む範囲の数平均分子量は４９４であった。

また、エポキシ樹脂１のエポキシ当量を過塩素酸滴定法により測定したところ、２４１ｇ／ｅｑであった。

また、エポキシ樹脂１の軟化点を環球法により測定したところ、９０℃～１００℃であった。

また、エポキシ樹脂１の結晶相から液晶相に転移する温度を示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置を用いて測定したところ、１３８℃であった。なお、エポキシ樹脂１の結晶相から液晶相に転移する温度は、示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置（株式会社パーキンエルマー製、Ｐｙｒｉｓ１）を用いて測定した。具体的には、エポキシ樹脂の試料３ｍｇ～５ｍｇをアルミニウム製のパンに封入し、昇温速度２０℃／分、測定温度範囲２５℃～３５０℃、窒素流量２０±５ｍＬ／分の窒素雰囲気下の条件にて示差走査熱量測定を行い、相転移反応に伴うエネルギー変化（吸熱反応）が起こる温度として測定した。

[0154] なお、エポキシ樹脂１をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた面積換算により分析した結果、上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物が含まれていることが確認された。上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物の合計の含有率は、エポキシ樹脂１の全量に対して８．７％であった。

[0155] ［成形材の調製及び成形］

以下の成分を混練温度６０℃～９０℃、混練時間１０分間の条件でロール混練した後、冷却、粉砕することにより、高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。なお、成形材中の無機フィラーの含有率は７８体積％であった。

[0156] （エポキシ樹脂）

エポキシ樹脂１・・・２９．２５ｇ

（無機フィラー）

酸化マグネシウムフィラー（パイロキスマ３３５０、協和化学工業株式会社製、平均粒子径：５０μｍ、ＢＥＴ比表面積：０．１m^2／ｇ）・・・３２０．３０ｇ

酸化マグネシウムフィラー（パイロキスマ３３２０、協和化学工業株式会社製、平均粒子径：２０μｍ、ＢＥＴ比表面積：０．２m^2／ｇ）・・・９１．５０ｇ

酸化マグネシウムフィラー（スターマグＳＬ、神島化学工業株式会社製、平均粒子径：８μｍ、ＢＥＴ比表面積：１m^2／ｇ）・・・４５．７５ｇ

（フェノール硬化剤）

フェノールノボラック硬化剤（Ａ－４ＳＭ、日立化成株式会社製）・・・７．９０ｇ

（硬化促進剤）

トリフェニルホスフィン（北興化学工業株式会社製）・・・０．１５ｇ

（シランカップリング剤）

ジフェニルジメトキシシラン（ＫＢＭ－２０２ＳＳ、信越化学工業株式会社製、分子量：２４４）・・・０．１５ｇ

（離型剤）

モンタン酸エステル（リコワックスＥ、クラリアントジャパン株式会社製）・・・５．００ｇ

[0157] ＥＭＭＩ－１－６６に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、調製した成形材をトランスファー成形機により、金型温度１８０℃、成形圧力２２．５ＭＰａ、硬化時間３００秒間の条件で成形して流動距離を求めたところ、流動距離は５０ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、金型温度１４０℃、成形圧力２２．５ＭＰａ、硬化時間３００秒間の条件でトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

アルキメデス法により測定した硬化物の比重は３．００、示差走査熱量（ＤＳＣ）測定により求めた硬化物のガラス転移温度は１８０℃であった。

硬化物の熱拡散率を熱拡散率測定装置（ＮＥＴＺＳＣＨ社製、ＬＦＡ４４７）を用いてレーザーフラッシュ法により測定した。得られた熱拡散率と、

別途測定した硬化物の比熱及び比重との積から硬化物の熱伝導率を求めた。その結果、硬化物の熱伝導率は１１．６Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、スメクチック相を形成していることが確認され、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有していた。

[0158] ＜実施例２＞

［エポキシ樹脂の合成］

フェノール化合物１（ヒドロキノン）の添加量を１．３ｇ（０．０１１８ｍｏｌ）に変更した以外は、実施例１と同様にしてエポキシ樹脂２を得た。なお、このエポキシ樹脂２には、合成溶媒の一部と未反応のエポキシ樹脂モノマーとが含まれている。

エポキシ樹脂２の固形分量を加熱減量法により測定したところ、９６．３％であった。

また、エポキシ樹脂２の数平均分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定したところ、合成により新たに生成したポリマー成分の数平均分子量は１３１５、未反応のエポキシ樹脂モノマーを含む範囲の数平均分子量は５３１であった。

また、エポキシ樹脂２のエポキシ当量を過塩素酸滴定法により測定したところ、２５６ｇ／ｅｑであった。

また、エポキシ樹脂２の軟化点を環球法により測定したところ、７５℃～８０℃であった。

また、エポキシ樹脂２の結晶相から液晶相に転移する温度を示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置を用いて測定したところ、１３６℃であった。

[0159] なお、エポキシ樹脂２をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた面積換算により分析した結果、上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物が含まれていることが確認された。上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物の合計の含有率は、エポキシ樹脂２の全量に対して１２．３％であった。

[0160] ［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１の代わりにエポキシ樹脂２を用いた。エポキシ樹脂２の添加量を２９．５５ｇ、フェノール硬化剤の添加量を７．６０ｇとした以外は、実施例１と同様にして高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は５８ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めたところ、比重３．００、ガラス転移温度１８２℃、熱伝導率１１．６Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、スメクチック相を形成していることが確認され、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有していた。

[0161] ＜実施例３＞

［エポキシ樹脂の合成］

フェノール化合物１（ヒドロキノン）の添加量を１．９５ｇ（０．０１７６ｍｏｌ）に変更した以外は、実施例１と同様にしてエポキシ樹脂３を得た。なお、このエポキシ樹脂３には、合成溶媒の一部と未反応のエポキシ樹脂モノマーとが含まれている。

エポキシ樹脂３の固形分量を加熱減量法により測定したところ、９７．１％であった。

また、エポキシ樹脂３の数平均分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定したところ、合成により新たに生成したポリマー成分の数平均分子量は１５２０、未反応のエポキシ樹脂モノマーを含む範囲の数平均分子量は５８３であった。

また、エポキシ樹脂３のエポキシ当量を過塩素酸滴定法により測定したと

ころ、２６３ｇ／ｅｑであった。

また、エポキシ樹脂３の軟化点を環球法により測定したところ、３０℃～３５℃であった。

また、エポキシ樹脂３の結晶相から液晶相に転移する温度を示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置を用いて測定したところ、１２８℃であった。

[0162] なお、エポキシ樹脂３をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた面積換算により分析した結果、上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物が含まれていることが確認された。上記式（３－ａ）～（３－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物の合計の含有率は、エポキシ樹脂３の全量に対して１８．２％であった。

[0163] ［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１の代わりにエポキシ樹脂３を用いた。エポキシ樹脂３の添加量を２９．９０ｇ、フェノール硬化剤の添加量を７．２５ｇとした以外は、実施例１と同様にして高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は６６ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めたところ、比重３．００、ガラス転移温度１８０℃、熱伝導率１１．５Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、スメクチック相を形成していることが確認され、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有していた。

[0164] ＜実施例４＞

［エポキシ樹脂の合成］

フェノール化合物１（ヒドロキノン）を０．９１ｇ（０．００８３ｍｏｌ

）使用する代わりにフェノール化合物２（レゾルシノール）を１．３ｇ（０．０１１８ｍｏｌ）使用した以外は、実施例１と同様にしてエポキシ樹脂４を得た。なお、このエポキシ樹脂４には、合成溶媒の一部と未反応のエポキシ樹脂モノマーとが含まれている。

エポキシ樹脂４の固形分量を加熱減量法により測定したところ、９６．４％であった。

また、エポキシ樹脂４の数平均分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定したところ、合成により新たに生成したポリマー成分の数平均分子量は１３０３、未反応のエポキシ樹脂モノマーを含む範囲の数平均分子量は５３６であった。

また、エポキシ樹脂４のエポキシ当量を過塩素酸滴定法により測定したところ、２５６ｇ／ｅｑであった。

また、エポキシ樹脂４の軟化点を環球法により測定したところ、７０℃～７５℃であった。

また、エポキシ樹脂４の結晶相から液晶相に転移する温度を示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置を用いて測定したところ、１３５℃であった。

[0165] なお、エポキシ樹脂４をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いた面積換算により分析した結果、上記式（４－ａ）～（４－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物が含まれていることが確認された。上記式（４－ａ）～（４－ｃ）の少なくとも１つで表される化合物の合計の含有率は、エポキシ樹脂４の全量に対して１２．３％であった。

[0166] ［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１の代わりにエポキシ樹脂４を用いた。エポキシ樹脂４の添加量を２９．５５ｇ、フェノール硬化剤の添加量を７．６０ｇとした以外は、実施例１と同様にして高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は６６ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成

形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めたところ、比重３．００、ガラス転移温度１７０℃、熱伝導率１０．５Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、スメクチック相を形成していることが確認され、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有していた。

[0167] ＜実施例５＞

［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１の代わりに、エポキシ樹脂２とトリフェニルメタン型エポキシ樹脂（ＥＰＰＮ－５０２Ｈ、日本化薬株式会社製）とを用いた。エポキシ樹脂２の添加量を１７．１１ｇ、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（ＥＰＰＮ－５０２Ｈ、日本化薬株式会社製）の添加量を１１．３６ｇ、フェノール硬化剤の添加量を８．６８ｇとした以外は、実施例１と同様にして高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は６３ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めたところ、比重３．００、ガラス転移温度１８５℃、熱伝導率１０．３Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、ネマチック相を形成していることが確認された。

[0168] ＜実施例６＞

［エポキシ樹脂の合成］

エポキシ樹脂モノマー１（ＭＥ２１）を５０ｇ（０．１１８ｍｏｌ）使用する代わりにエポキシ樹脂モノマー２（ＹＬ６１２１Ｈ）を４０．６ｇ（０．１１８ｍｏｌ）使用し、フェノール化合物１（ヒドロキノン）の添加量を１．３ｇ（０．０１１８ｍｏｌ）に変更した以外は、実施例１と同様にしてエポキシ樹脂６を得た。なお、このエポキシ樹脂６には、合成溶媒の一部と未反応のエポキシ樹脂モノマーとが含まれている。

エポキシ樹脂６の固形分量を加熱減量法により測定したところ、９７．２％であった。

また、エポキシ樹脂６の数平均分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定したところ、合成により新たに生成したポリマー成分の数平均分子量は１１０２、未反応のエポキシ樹脂モノマーを含む範囲の数平均分子量は４９６であった。

また、エポキシ樹脂６のエポキシ当量を過塩素酸滴定法により測定したところ、１９６ｇ／ｅｑであった。

また、エポキシ樹脂６の軟化点を環球法により測定したところ、３０℃以下であった。

また、エポキシ樹脂６の結晶相から液晶相に転移する温度を示差走査熱量（ＤＳＣ）測定装置を用いて測定したところ、結晶性の低下が顕著なため、融解に由来する明確な吸熱ピークが確認されなかった。

[0169] ［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１の代わりにエポキシ樹脂６を用いた以外は、実施例１と同様にして高熱伝導樹脂組成物である成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は８０ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めた

ところ、比重３．００、ガラス転移温度１５５℃、熱伝導率９．８Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、ネマチック相を形成していることが確認された。

[0170] ＜比較例１＞

［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１を２９．２５ｇ、フェノール硬化剤を７．９０ｇ使用する代わりにエポキシ樹脂モノマー１（ＭＥ２１）を２８．４５ｇ、フェノール硬化剤を８．７０ｇ使用した以外は、実施例１と同様にして成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができなかった。

[0171] ＜比較例２＞

［成形材の調製及び成形］

エポキシ樹脂１を２９．２５ｇ、フェノール硬化剤を７．９０ｇ使用する代わりにエポキシ樹脂モノマー２（ＹＬ６１２１Ｈ）を２６．８０ｇ、フェノール硬化剤を１０．３５ｇ使用した以外は、実施例１と同様にして成形材を調製した。

調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてスパイラルフローの流動距離を求めたところ、流動距離は７２ｃｍであった。

また、調製した成形材を用いて、実施例１と同様にしてトランスファー成形を行ったところ、金型形状の硬化物を得ることができた。さらに、トランスファー成形後の硬化物を１８０℃で４時間加熱し、後硬化を行った。

実施例１と同様にして硬化物の比重、ガラス転移温度、熱伝導率を求めたところ、比重３．００、ガラス転移温度１６０℃、熱伝導率１０．３Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

また、ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により硬化物を分析したところ、ネマチック相を形成していることが確認された。

[0172] エポキシ樹脂を合成するための配合組成及び合成条件、並びにエポキシ樹脂及び成形材の特性を以下の表１及び表２に纏める。表１及び表２中、［ポリマー合成配合］の欄の数値は各成分の配合量（ｇ）を示し、「－」は当該成分が使用されていないことを意味する。また、［ポリマー特性］及び［成形材特性］の欄における「－」は、当該項目が存在しない又は当該項目を測定していないことを意味する。なお、比較例１、２ではエポキシ樹脂を合成していないが、参考のため、使用したエポキシ樹脂モノマーについての数値を記載した。

[0173] [表1]

項目			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1
ポリマー合成配合	ｴﾎﾟｷｼ樹脂ﾓﾉﾏｰ1	ME21	50	50	50	50	実施例2のｴﾎﾟｷｼ樹脂2とﾄﾘﾌｪﾆﾙﾒﾀﾝ型ｴﾎﾟｷｼ樹脂との混合	100
	ｴﾎﾟｷｼ樹脂ﾓﾉﾏｰ2	YL6121H	－	－	－	－		－
	ﾌｪﾉｰﾙ化合物1	ﾋﾄﾞﾛｷﾉﾝ	0.91	1.3	1.95	－		－
	ﾌｪﾉｰﾙ化合物2	ﾚｿﾞﾙｼﾉｰﾙ	－	－	－	1.3		－
	合成溶媒	ｼｸﾛﾍｷｻﾉﾝ	80	80	80	80		－
	硬化触媒	ﾄﾘﾌｪﾆﾙﾎｽﾌｨﾝ	0.5	0.5	0.5	0.5		－
合成条件	合成温度[℃]		160	160	160	160		－
	合成時間[hour]		5	5	5	5		－
ポリマー特性	固形分量[%]		96.9	96.3	97.1	96.4		100
	ｴﾎﾟｷｼ当量[g/eq]		241	256	263	256		212
	数平均分子量(生成物)		1210	1315	1520	1303		－
	数平均分子量(含ﾓﾉﾏｰ)		494	531	583	536		432
	軟化点[℃]		90-100	75-80	30-35	70-75		146（融点）
成形材特性	ｽﾊﾟｲﾗﾙﾌﾛｰ[cm]		50	58	66	66	63	－
	比重		3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	－
	ｶﾞﾗｽ転移温度[℃]		180	182	180	170	185	－
	熱伝導率[W/(m･K)]		11.6	11.6	11.5	10.5	10.3	－
	X線回折※		Sm	Sm	Sm	Sm	N	－

※Sm：ｽﾒｸﾁｯｸ相を形成、N：ﾈﾏﾁｯｸ相を形成

[0174]

[表2]

項目			実施例6	比較例2
ポリマー合成配合	エポキシ樹脂モノマー1	ME21	−	−
	エポキシ樹脂モノマー2	YL6121H	40.6	100
	フェノール化合物1	ヒドロキノン	1.3	−
	フェノール化合物2	レゾルシノール	−	−
	合成溶媒	シクロヘキサノン	80	−
	硬化触媒	トリフェニルホスフィン	0.5	−
合成条件	合成温度[℃]		160	−
	合成時間[hour]		5	−
ポリマー特性	固形分量[%]		97.2	100
	エポキシ当量[g/eq]		196	172
	数平均分子量(生成物)		1102	−
	数平均分子量(含モノマー)		496	354
	軟化点[℃]		≦30	105 (融点)
成形材特性	スパイラルフロー[cm]		80	72
	比重		3.00	3.00
	ガラス転移温度[℃]		155	160
	熱伝導率[W/(m・K)]		9.8	10.3
	X線回折※		N	N

※N:ネマチック相を形成

[0175] 表１に示す通り、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマー１を用いた比較例１では成形可能な成形材を得ることができなかったが、エポキシ樹脂モノマー１と同一のメソゲン骨格を有するエポキシ樹脂を用いた実施例１～４では、流動性が付与される結果、成形可能な成形材を得ることができた。特に、エポキシ樹脂の合成にヒドロキノンを用いた実施例１～３は、硬化物の熱伝導率が非常に高いものであった。

なお、エポキシ樹脂を合成する際のエポキシ樹脂モノマーのエポキシ基の当量数（Ｅｐ）とフェノール化合物のフェノール性水酸基の当量数（Ｐｈ）との比率（Ｅｐ／Ｐｈ）が大きい（すなわち、フェノール変性量が小さい）と、成形性が低下する傾向にある。一方、Ｅｐ／Ｐｈが小さい（すなわち、フェノール変性量が大きい）と、成形性は向上するがガラス転移温度が低下する傾向にある。このようにガラス転移温度が低下するのは、エポキシ樹脂を合成する際にＥｐ／Ｐｈが小さいと分子量が大きくなり、硬化物における架橋点間距離が長くなるためである。

[0176] また、表２に示す通り、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマー２を用いた比較例２よりも、同一のメソゲン骨格を有するエポキシ樹脂を用いた実施例６の方が、流動性が向上し、且つ、熱伝導率は同程度であった。

[0177] ２０１４年１２月２６日に出願された日本出願２０１４－２６６１０６の開示はその全体が参照により本明細書に取り込まれる。

本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書中に参照により取り込まれる。

請求の範囲

[請求項1] メソゲン骨格を有し、且つ、１分子内に２個のグリシジル基を有するエポキシ樹脂モノマーと、１つのベンゼン環に２個の水酸基を置換基として有する２価フェノール化合物との反応により得られ、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定における数平均分子量が６００～２５００であるエポキシ樹脂。

[請求項2] 前記２価フェノール化合物がヒドロキノンである請求項１に記載のエポキシ樹脂。

[請求項3] 前記エポキシ樹脂モノマーが、ｔｒａｎｓ－４－｛４－（２，３－エポキシプロポキシ）フェニル｝シクロヘキシル　４－（２，３－エポキシプロポキシ）ベンゾエートである請求項１又は請求項２に記載のエポキシ樹脂。

[請求項4] 請求項１～請求項３のいずれか１項に記載のエポキシ樹脂と、メソゲン骨格を有するエポキシ樹脂モノマーとを含有し、環球法で測定した軟化点が１００℃以下であるエポキシ樹脂組成物。

[請求項5] 請求項１～請求項３のいずれか１項に記載のエポキシ樹脂又は請求項４に記載のエポキシ樹脂組成物と、無機フィラーと、を含有する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

[請求項6] 硬化物の熱伝導率が７Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上である請求項５に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

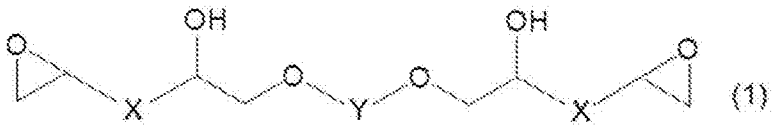
[請求項7] 請求項５又は請求項６に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物のシート状成形体である樹脂シート。

[請求項8] 請求項５若しくは請求項６に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物又は請求項７に記載の樹脂シートを硬化させた硬化物。

[請求項9] ＣｕＫα線を用いたＸ線回折法により、回折角２θ＝３．０°～３．５°の範囲に回折ピークを有する請求項８に記載の硬化物。

[請求項10] 下記式（１）で表されるエポキシ化合物。

[化1]

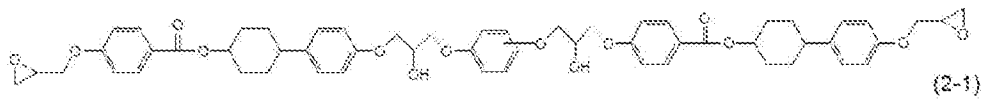


(1)

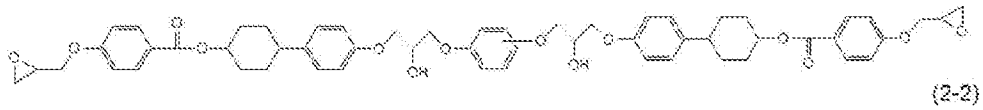
［式（１）中、Ｘはそれぞれ独立に、メソゲン骨格を含む２価の基を示し、Ｙは、置換基を有していてもよいフェニレン基を示す。］

[請求項11] 下記式（２－１）～（２－３）の少なくとも１つで表される請求項１０に記載のエポキシ化合物。

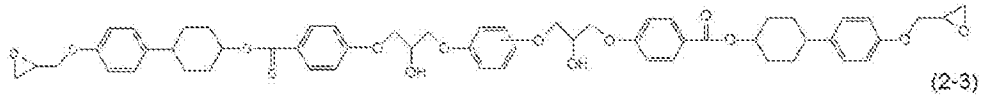
[化2]



(2-1)



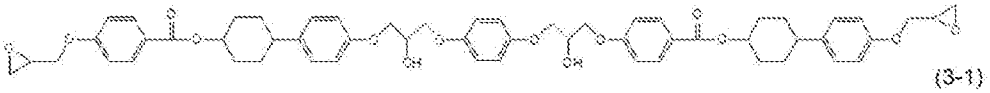
(2-2)



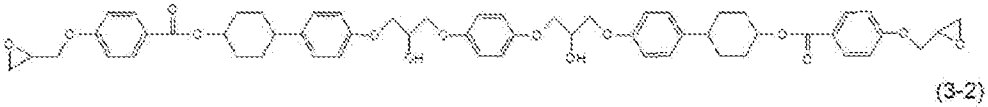
(2-3)

[請求項12] 下記式（３－１）～（３－３）の少なくとも１つで表される請求項１０又は請求項１１に記載のエポキシ化合物。

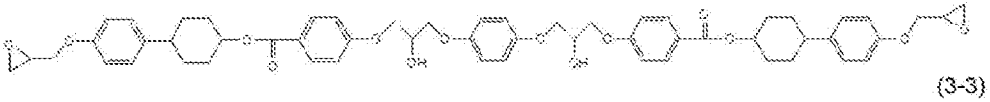
[化3]



(3-1)



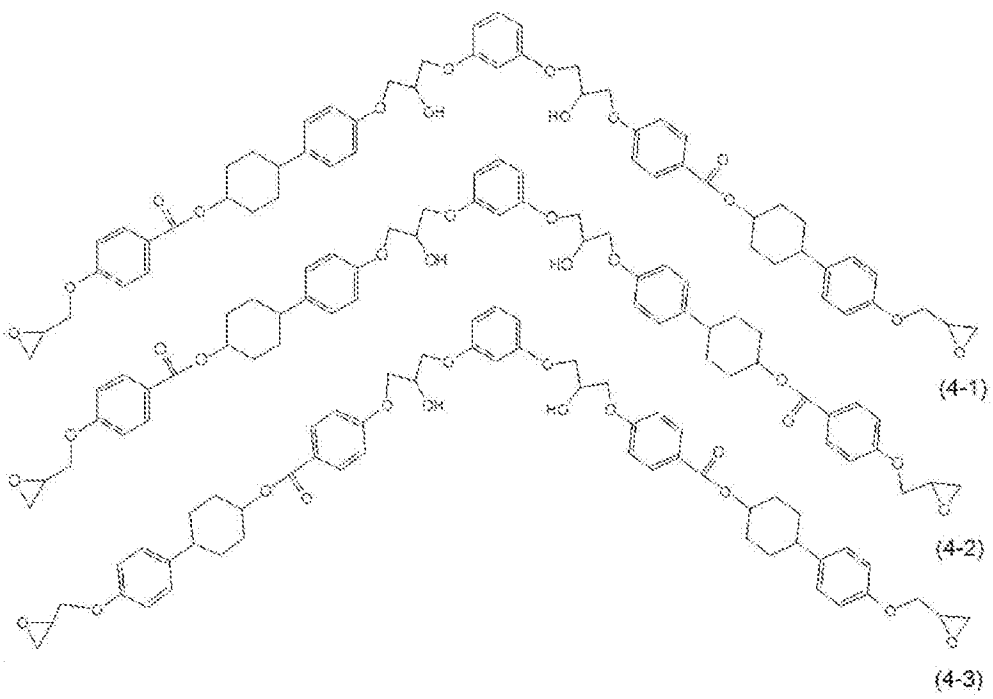
(3-2)



(3-3)

[請求項13] 下記式（４－１）～（４－３）の少なくとも１つで表される請求項１０又は請求項１１に記載のエポキシ化合物。

[化4]



[請求項14] 請求項９～請求項１３のいずれか１項に記載のエポキシ化合物と、無機フィラーと、を含有する無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物。

[請求項15] 請求項９～請求項１３のいずれか１項に記載のエポキシ化合物又は請求項１４に記載の無機フィラー含有エポキシ樹脂組成物を硬化させた硬化物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2015/086373

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G59/24(2006.01)i, *C08G59/62*(2006.01)i, *C08J5/18*(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08G59/00-59/72, C08J5/18

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2013-227451 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 07 November 2013 (07.11.2013), claims 1, 2, 9, 10; paragraphs [0008], [0065], [0072], [0073], [0091], [0101], [0107], [0142], [0151], [0230] to [0274], [0282]; examples (Family: none)	1-15 3,4,7,11-13

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
10 March 2016 (10.03.16)	22 March 2016 (22.03.16)

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2015/086373

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2013-234313 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 21 November 2013 (21.11.2013), claims 1, 14, 15; paragraphs [0012], [0041], [0058], [0108], [0112], [0113], [0144], [0249] to [0303], [0310], [0311]; examples & WO 2013/065159 A1 & WO 2013/065758 A1 & WO 2013/065759 A1 & TW 201333064 A & TW 201333089 A & CN 103906785 A & CN 103917605 A & CN 104024332 A & KR 10-2014-0087012 A & KR 10-2014-0087015 A & KR 10-2014-0099870 A	1-15 3,4,7,11-13
X Y	JP 2012-233206 A (Nippon Steel & Sumikin Chemical Co., Ltd.), 29 November 2012 (29.11.2012), claims 1, 2, 4, 7, 8; paragraphs [0010], [0016], [0029], [0030], [0037], [0041], [0059] to [0061], [0065]; examples (Family: none)	1,2,5,6, 8-10,14,15 3,4,7,11-13
A	JP 5471975 B2 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 16 April 2014 (16.04.2014), entire text & JP 2011-74366 A & US 2012/0149807 A1 entire text & WO 2011/027802 A1 & EP 2474539 A1 & TW 201124377 A & CN 102482242 A & KR 10-2012-0060875 A	1-15
A	JP 2011-098952 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 19 May 2011 (19.05.2011), entire text & WO 2011/043204 A1 & TW 201129550 A	1-15
A	JP 2010-241797 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 28 October 2010 (28.10.2010), entire text & WO 2010/107038 A1 & TW 201100395 A	1-15
A	JP 4619770 B2 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 26 January 2011 (26.01.2011), entire text & JP 2005-206814 A & US 2007/0184280 A1 entire text & WO 2005/061473 A1 & EP 1698625 A1 & KR 10-2006-0124657 A & CN 1898223 A & TW 200530325 A & KR 10-1131408 B1	1-15
A	JP 4118691 B2 (Hitachi, Ltd.), 16 July 2008 (16.07.2008), entire text & US 2004/147709 A1 entire text & US 2006/276568 A1 & WO 2002/094905 A1	1-15

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１５／０８６３７３

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G59/24(2006.01)i, C08G59/62(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G59/00-59/72, C08J5/18

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	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６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 2013-227451 A (日立化成株式会社) 2013.11.07, [請求項１]、[請求項２]、[請求項９]、[請求項１０]、[０００８]、[００６５]、[００７２]、[００７３]、[００９１]、[０１０１]、[０１０７]、[０１４２]、[０１５１]、[０２３０] ～ [０２７４]、[０２８２]、実施例（ファミリーなし）	1-15 3,4,7,11-13
X Y	JP 2013-234313 A (日立化成株式会社) 2013.11.21, [請求項１]、[請求項１４]、[請求項１５]、[００１２]、[００４１]、[００５８]、[０１０８]、[０１１２]、[０１１３]、[０１４４]、[０２４９]	1-15 3,4,7,11-13

☑ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１０．０３．２０１６	２２．０３．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官（権限のある職員）		
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	藤井　勲	４Ｊ	５８１３
	電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７		

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
	～［0303］、［0310］、［0311］、実施例 & WO 2013/065159 A1 & WO 2013/065758 A1 & WO 2013/065759 A1 & TW 201333064 A & TW 201333089 A & CN 103906785 A & CN 103917605 A & CN 104024332 A & KR 10-2014-0087012 A & KR 10-2014-0087015 A & KR 10-2014-0099870 A	
X Y	JP 2012-233206 A（新日鉄住金化学株式会社）2012.11.29,［請求項1］、［請求項2］、［請求項4］、［請求項7］、［請求項8］、［0010］、［0016］、［0029］、［0030］、［0037］、［0041］、［0059］～［0061］、［0065］、実施例（ファミリーなし）	1,2,5,6,8-10,14,15 3,4,7,11-13
A	JP 5471975 B2（住友化学株式会社）2014.04.16, 全文 & JP 2011-74366 A & US 2012/0149807 A1, 全文 & WO 2011/027802 A1 & EP 2474539 A1 & TW 201124377 A & CN 102482242 A & KR 10-2012-0060875 A	1-15
A	JP 2011-098952 A（住友化学株式会社）2011.05.19, 全文 & WO 2011/043204 A1 & TW 201129550 A	1-15
A	JP 2010-241797 A（住友化学株式会社）2010.10.28, 全文 & WO 2010/107038 A1 & TW 201100395 A	1-15
A	JP 4619770 B2（住友化学株式会社）2011.01.26, 全文 & JP 2005-206814 A & US 2007/0184280 A1, 全文 & WO 2005/061473 A1 & EP 1698625 A1 & KR 10-2006-0124657 A & CN 1898223 A & TW 200530325 A & KR 10-1131408 B1	1-15
A	JP 4118691 B2（株式会社日立製作所）2008.07.16, 全文 & US 2004/147709 A1, 全文 & US 2006/276568 A1, & WO 2002/094905 A1	1-15