

(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
2022年3月17日(17.03.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/054874 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 59/62 (2006.01) C08J 5/12 (2006.01)
H01L 23/36 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
H01L 23/373 (2006.01) C09K 5/14 (2006.01)
C08L 33/14 (2006.01) C08K 3/22 (2006.01)
C08L 61/34 (2006.01) C08K 3/38 (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/033173

(22) 国際出願日: 2021年9月9日(09.09.2021)

(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 2020-152880 2020年9月11日(11.09.2020) 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). 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). 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). 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: 伊東 秀明, 外 (ITO HIDEAKI et al.); 〒1010032 東京都千代田区岩本町2丁目3番3号 ザイマックス岩本町ビル6階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, 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,

(54) Title: CURABLE RESIN COMPOSITION, THERMALLY CONDUCTIVE MATERIAL, THERMALLY CONDUCTIVE SHEET, AND DEVICE WITH THERMALLY CONDUCTIVE LAYER

(54) 発明の名称: 硬化性樹脂組成物、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 curable resin composition capable of giving a thermally conductive material having excellent peel strength. Also provided are a thermally conductive material, a thermally conductive sheet, and a device with a thermally conductive layer, which each relate to the curable resin composition. A curable resin composition according to the present invention includes a phenol compound, a first epoxy compound, a second epoxy compound, and an inorganic substance. The curable resin composition meets at least one among the requirements below: the phenol compound includes a phenol compound having a triazine skeleton; and the first epoxy compound includes an epoxy compound having a triazine skeleton. The second epoxy compound is an acrylic resin having an epoxy group in a side chain thereof.

(57) 要約: 本発明は、ピール強度に優れた熱伝導材料を与え得る硬化性組成物を提供する。上記硬化性樹脂組成物に関する熱伝導材料、熱伝導シート、及び、熱伝導層付きデバイスを提供する。本発明の硬化性樹脂組成物は、フェノール化合物、第1のエポキシ化合物、第2のエポキシ化合物、及び、無機物を含む、硬化性樹脂組成物であって、上記フェノール化合物がトリアジン骨格を有するフェノール化合物を含むこと、及び、上記第1のエポキシ化合物がトリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含むこと、の少なくとも一方の要件を満たし、上記第2のエポキシ化合物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である。

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)）

明 細 書

発明の名称：

硬化性樹脂組成物、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、硬化性樹脂組成物、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、(メタ)アクリル系モノマーとグリシジルメタクリレートとの共重合体等である所定の(メタ)アクリル系共重合体と、熱伝導性フィラーと、を含有する絶縁性熱伝導シートが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2008-277759号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ところで、熱伝導材料は、熱を移動させる対象物(被着材)と強固に接着できることも求められており、熱伝導材料の被着材に対する、ピール(剥離)強度が十分に高くなることも求められている。

本発明者らは、特許文献1に記載された絶縁性熱伝導シートについて検討したところ、形成された絶縁性熱伝導シートの被着材に対するピール強度について改善の余地があることが確認された。

[0005] そこで、本発明は、ピール強度に優れた熱伝導材料を与え得る硬化性樹脂組成物を提供することを課題とする。

また、本発明は、上記硬化性樹脂組成物に関する熱伝導材料、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も課題とする。

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、第1のエポキシ化合物、第2のエポキシ化合物、及び、無機物を含む、硬化性樹脂組成物であって、

上記フェノール化合物がトリアジン骨格を有するフェノール化合物を含むこと、及び、上記第1のエポキシ化合物がトリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含むこと、の少なくとも一方の要件を満たし、

上記第2のエポキシ化合物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である、硬化性樹脂組成物。

[2]

上記無機物が、窒化ホウ素を含む、[1]に記載の硬化性樹脂組成物。

[3]

上記無機物が、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上である凝集状窒化ホウ素を含む、[1]又は[2]に記載の硬化性樹脂組成物。

[4]

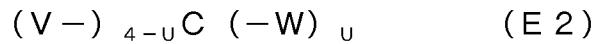
上記無機物が、無機酸化物を含む、[1]～[3]のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

[5]

上記無機物が、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物である無機物Xと、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 未満の無機物である無機物Yとの両方を含む、[1]～[4]のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

[6]

上記第1のエポキシ化合物が、ポリヒドロキシベンゼン型エポキシ化合物、ビフェニル骨格を有するエポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、フェノキシ樹脂、及び、一般式(E2)で表されるエポキシ化合物からなる群から選択される1種以上のエポキシ化合物を含む、〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。



一般式(E2)中、Cは、炭素原子を表す。

Uは、3又は4の整数を表す。

Vは、エポキシ基を有さない置換基又は水素原子を表す。

Wは、エポキシ含有基を表す。

上記エポキシ含有基は、エポキシ基そのものである基、又は、エポキシ基を一部分に含む一価の基である。

一般式(E2)中に複数存在するWは、それぞれ同一でも異なってもよい。

〔7〕

更に、硬化促進剤を含む、〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物。

〔8〕

〔1〕～〔7〕のいずれかに記載の硬化性樹脂組成物を硬化して得られる、熱伝導材料。

〔9〕

〔8〕に記載の熱伝導材料からなる、熱伝導シート。

〔10〕

デバイスと、上記デバイス上に配置された〔9〕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、ピール強度に優れた熱伝導材料を与え得る硬化性樹脂組

成物を提供できる。

また、本発明によれば、上記硬化性樹脂組成物に関する熱伝導材料、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、本発明の硬化性樹脂組成物、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。

[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。「(メタ)アクリル」との記載は、「アクリル及びメタクリル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、 $\text{*}-\text{C}(\text{O})-\text{O}-\text{C}(\text{O})-\text{*}$ 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、置換又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。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(置換基を有してもよいアルキル基)を意味する。

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

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。置換基の数としては、例えば、1個、又は、2個以上が挙げられる。置換基としては、例えば、水素原子を除く1価の非金属原子団が挙げられ、以下の置換基群Yから選択される基が好ましい。

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（ $-SO_3H$ ）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（ $-SO_2NH SO_2$ （*alkyl*））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（ $-SO_2NH SO_2$ （*aryl*））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（ $-CONH SO_2$ （*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（ $-CONH SO_2$ （*aryl*））及びその共役塩基基、アルコキシシリル基（ $-Si(Oalkyl)_3$ ）、アリーロキシシリル基（ $-Si(Oaryl)_3$ ）、ヒドロキシシリル基（ $-Si(OH)_3$ ）及びその共役塩基基、ホスホノ基（ $-PO_3H_2$ ）及びその共役塩基基、ジアルキルホスホノ基（ $-PO_3(alkyl)_2$ ）、ジアリールホスホノ基（ $-PO_3(aryl)_2$ ）、

アルキルアリールホスホノ基 ($-\text{PO}_3(\text{alkyl})(\text{aryl})$)、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、アリール基、アルケニル基、アルキニル基、及びアルキル基。また、上述の各基は、可能な場合、更に置換基（例えば、上述の各基のうちの1以上の基）を有してもよい。例えば、置換基を有してもよいアリール基も、置換基群Yから選択可能な基として含まれる。

置換基群Yから選択される基が炭素原子を有する場合、上記基が有する炭素数としては、例えば、1～20である。

置換基群Yから選択される基が有する水素原子以外の原子の数としては、例えば、1～30である。

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。例えば、アルキル基（又は、アルコキシ基のように、アルキル基を部分構造として含む基におけるアルキル基部分）は、環状のアルキル基（シクロアルキル基）でもよく、部分構造として1以上の環状構造を有するアルキル基でもよい。

[0014] [組成物]

本発明の硬化性樹脂組成物（以下、単に「組成物」とも言う）は、フェノール化合物、第1のエポキシ化合物、第2のエポキシ化合物、及び、無機物を含む、硬化性樹脂組成物であって、

上記フェノール化合物がトリアジン骨格を有するフェノール化合物を含むこと、及び、上記第1のエポキシ化合物がトリアジン骨格を有するエポキシ

化合物を含むこと、の少なくとも一方の要件を満たし、

上記第2のエポキシ化合物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である、硬化性樹脂組成物である。

[0015] 本発明の組成物が、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、本発明者らは以下のように推測している。

すなわち、本発明の組成物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である第2のエポキシ化合物を含んでいる。このような第2のエポキシ化合物は、被着材に対して良好な密着性を示す。更に、本発明の組成物は、第2のエポキシ化合物に加えて、トリアジン骨格を有する化合物であるフェノール化合物及び／又は上記第1のエポキシ化合物、も含む。これらのトリアジン骨格を有する化合物は、第2のエポキシ化合物と適度に相溶性が異なり、第2のエポキシ化合物は塗膜の界面側（空気界面側及び／又は基材界面側）に多く偏析しやすい。そのため、偏析した第2のエポキシ化合物により、組成物から熱伝導材料が形成された際の、熱伝導材料と被着材との密着性が向上する。更に、第2のエポキシ化合物とは別の第1のエポキシ化合物が存在することで、組成物から形成される熱伝導材料自体の強度も十分で、熱伝導材料自体の破断も起こりにくくなっている。その結果として、本発明の組成物を用いて形成された熱伝導材料のピール強度が良好になった、と推測している。

以下、本発明の組成物を用いて形成される熱伝導材料のピール強度が優れることを、本発明の効果が優れるともいう。

[0016] 以下、組成物に含まれる成分について詳述する。

[0017] [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。

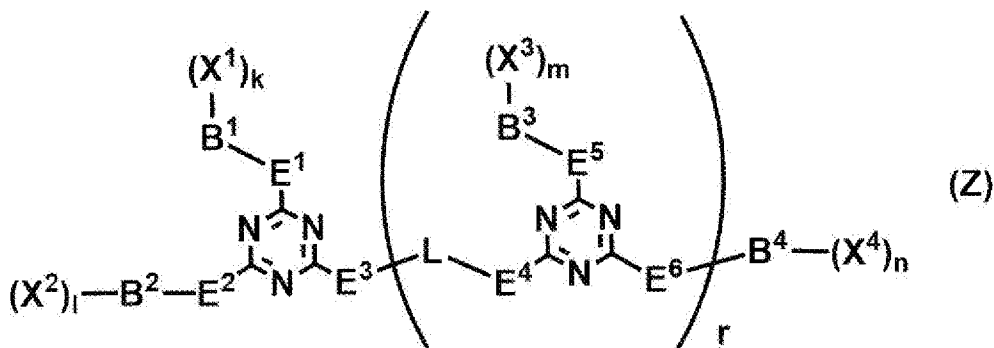
フェノール化合物は、芳香環基に直接結合する水酸基を1以上（好ましくは2以上、より好ましくは2～10）有する化合物である。

中でも、フェノール化合物は、トリアジン骨格を有することが好ましい。

フェノール化合物が「トリアジン骨格を有する」とは、化合物中に 1 個以上（例えば 1 ～ 5 個）のトリアジン環基を有することを意味する。

[0018] フェノール化合物は、一般式（Z）で表される化合物が好ましい。

[0019] [化1]



[0020] 上記一般式（Z）中、同一の符号で表される基が複数存在する場合、特段の断りがない限り、複数存在する同一の符号で表される基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0021] 一般式（Z）中、E¹～E⁶は、それぞれ独立に、単結合、－NH－、又は、－NR－を表す。

Rは、置換基を表す。Rの表す置換基としては、例えば、炭素数 1 ～ 5 の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。

E¹～E⁶は、それぞれ独立に、－NH－、又は、－NR－が好ましく、－NH－がより好ましい。

[0022] 一般式（Z）中、B¹は、単結合又は k + 1 価の有機基を表す。

B²は、単結合又は l + 1 価の有機基を表す。

B³は、単結合又は m + 1 価の有機基を表す。

B⁴は、単結合又は n + 1 価の有機基を表す。

上記 k + 1 価の有機基、l + 1 価の有機基、m + 1 価の有機基、及び、n + 1 価の有機基における k、l、m、及び、n の値は、一般式（Z）中に明示される、k、l、m、及び、n の値と一致する。

なお、r が 2 以上であって、複数存在する m の値が異なる場合、B³で表される m + 1 価の有機基における m の値は、その B³が結合する X³の数を示す

mの値と同一である。

[0023] B¹～B⁴が表す有機基としては、例えば、炭素数1～20のヘテロ原子を有していてもよい炭化水素基からj個の水素原子を除いた基等が挙げられる。なお、j個とは、k+1個、l+1個、m+1個、又は、n+1個のことをいう。

ここで、j個の水素原子を除く前の炭化水素基としては、例えば、置換基を有していてもよい炭素数1～20の脂肪族炭化水素基、置換基を有していてもよい炭素数3～20の脂肪族環基、及び、置換基を有していてもよい炭素数3～20の芳香環基からなる群から選択される1以上の基が挙げられる。また、上記1以上の基に対して、更に、-O-、-S-、-CO-、-NR^N-（R^Nは水素原子又は置換基）、及び、-SO₂-からなる群から選択される2価の連結基の1以上を組み合わせる基でもよい。

炭素数1～20の脂肪族炭化水素基としては、例えば、メタン、エタン、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、及び、ヘプタン等が挙げられる。

炭素数3～20の脂肪族環基としては、例えば、シクロヘキサン環基、シクロヘプタン環基、ノルボルナン環基、及び、アダマンタン環基等が挙げられる。

炭素数3～20の芳香環基としては、例えば、炭素数6～20の芳香族炭化水素基、及び、炭素数3～20の芳香族複素環基等が挙げられる。

炭素数6～20の芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環等が挙げられ、炭素数3～20の芳香族複素環基としては、例えば、フラン環、ピロール環、チオフェン環、ピリジン環、チアゾール環、カルバゾール環、インドール環、及び、ベンゾチアゾール環等が挙げられる。

[0024] 一般式(Z)中、k、l、m、及び、nは、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。ただし、k、l、r×m、及び、nの合計は2以上であり、2～12の整数であることが好ましく、4～8の整数であることがより好ましい。

なお、「 $r \times m$ 」における m の値は、複数存在し得る m の平均値である。

k 、 l 、 m 、及び、 n は、それぞれ独立に、 $0 \sim 5$ が好ましく、 $1 \sim 2$ がより好ましい。

例えば、 k が 1 以上（例えば $1 \sim 2$ ）であるのが好ましく、 l が 1 以上（例えば $1 \sim 2$ ）であるのが好ましく、 m が 1 以上（例えば $1 \sim 2$ ）であるのが好ましく、 n が 1 以上（例えば $1 \sim 2$ ）であるのが好ましい。

なお、 k が 0 の場合、 B^1 は X^1 を有さない。 l が 0 の場合、 B^2 は X^2 を有さない。 m が 0 の場合、 B^3 は X^3 を有さない。 n が 0 の場合、 B^4 は X^4 を有さない。

また、 B^1 が単結合の場合、 k は 1 である。 B^2 が単結合の場合、 l は 1 である。 B^3 が単結合の場合、 m は 1 である。 B^4 が単結合の場合、 n は 1 である。

[0025] L は、2価の有機基を表す。

有機基としては、例えば、置換基を有していてもよい芳香環基、置換基を有していてもよい脂肪族炭化水素基、置換基を有していてもよい脂肪族環基、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R^N)-$ 、 $-CO-$ 、及び、これらを組み合わせた基が挙げられる。

R^N は、置換基を表す。 R^N の表す置換基としては、例えば、炭素数 $1 \sim 5$ の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基等が挙げられる。

また、芳香環基、脂肪族炭化水素基、及び、脂肪族環基が有していてもよい置換基としては、例えば、炭素数 $1 \sim 5$ の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基等が挙げられる。

[0026] 芳香環基としては、例えば、炭素数 $6 \sim 20$ の芳香族炭化水素基、及び、炭素数 $3 \sim 20$ の芳香族複素環基が挙げられる。

炭素数 $6 \sim 20$ の芳香族炭化水素基としては、例えば、ベンゼン環等の単環式芳香環基；ナフタレン環、及び、アントラセン環等の多環式芳香環基；等が挙げられ、炭素数 $3 \sim 20$ の芳香族複素環基としては、例えば、フラン環、ピロール環、チオフェン環、ピリジン環、及び、チアゾール環等の単環

式芳香環基；ベンゾチアゾール環、カルバゾール環、及び、インドール環等の多環式芳香環基；等が挙げられる。

なお、Lとしての芳香環基は、上記例示から2個の水素原子を除いた基が挙げられる。

[0027] 脂肪族炭化水素基としては、例えば、炭素数1～12のアルキレン基等が挙げられ、具体的には、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、メチルヘキシレン基、及び、ヘプチレン基等が挙げられる。

[0028] 脂肪族環基としては、例えば、シクロヘキサン環基、シクロヘプタン環基、ノルボルナン環基、及び、アダマンタン環基等が挙げられる。

なお、Lとしての脂肪族環基は、上記例示から2個の水素原子を除いた基が挙げられる。

[0029] 置換基を有していてもよい芳香環基、置換基を有していてもよい脂肪族炭化水素基、置換基を有していてもよい脂肪族環基、又は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N R^N-$ 若しくは $-C O-$ を組み合わせた基としては、これらの2つ以上の組み合わせからなる2価の連結基だけでなく、同種の基（例えば、芳香環基）を単結合を介して2つ以上組み合わせた2価の連結基であってもよい。

[0030] 本発明においては、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点から、Lの両末端が炭素原子であることが好ましい。末端の炭素原子は環状構造の一部でもよい。

また、本発明においては、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる点から、上記一般式（P2）中のLが、置換基を有していてもよい2価の芳香環基、置換基を有していてもよい2価の脂肪族環基、及び、炭素数2以上の分岐を有していてもよいアルキレン基からなる群から選択される少なくとも1種を有する2価の有機基であることが好ましく、熱伝導性がより優れるとの理由から置換基を有していてもよい2価の芳香環基を有する2価の有機基がより好ましい。

[0031] 一般式（Z）中、 r は0以上の整数である。

r は0～20の整数であることが好ましく、0～10の整数であることがより好ましい。

[0032] 一般式(Z)中、 $X^1 \sim X^4$ は、それぞれ独立に、フェノール性水酸基を有する芳香環基を表す。

「フェノール性水酸基を有する芳香環基」は、芳香環に直接結合する水酸基(フェノール性水酸基)を1個以上(例えば1～4個)有する芳香環基であればよい。上記芳香環基は上記水酸基以外の置換基を有していてもよく、有していなくてもよい。上記芳香環基は、単環でも多環でもよく、環員原子としてヘテロ原子を有していてもよい。上記芳香環基の環員原子の数は5～15が好ましく、6～10がより好ましく、6が更に好ましい。

上記芳香環基は、ベンゼン環基が好ましい。

上記芳香環基が上記水酸基以外に有し得る置換基としては、炭素数1～6の置換基が好ましく、炭素数1～6の炭化水素基がより好ましく、炭素数1～6の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基が更に好ましい。

[0033] 一般式(Z)中、 k 個存在する X^1 、 l 個存在する X^2 、 $r \times m$ 個存在する X^3 、及び、 n 個存在する X^4 のうちの少なくとも1個は、フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位に配置された置換基とを有する芳香環基であることも好ましい。上記置換基は、上記フェノール性水酸基のオルト位の一方だけに存在してもよいし、両方に存在してもよい。

なお、「 $r \times m$ 」における m の値は、複数存在し得る m の平均値である。

また、「オルト位に配置された置換基」は、炭素数1～6の置換基が好ましく、炭素数1～6の炭化水素基がより好ましく、炭素数1～6の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基が更に好ましい。

言い換えると、 $(k + l + r \times m + n)$ 個存在する $X^1 \sim X^4$ のいずれかで表される「フェノール性水酸基を有する芳香環基」のうち、少なくとも1個(好ましくは30%以上、より好ましくは50%以上、更に好ましくは65%以上。好ましくは100%以下、より好ましくは90%以下、更に好ましくは80%以下)が「フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位

に配置された置換基とを有する芳香環基」を表してもよい。

[0034] $X^1 \sim X^4$ で表されるフェノール性水酸基を有する芳香環基において、「フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位に配置された置換基とを有する芳香環基」以外の芳香環基は、水酸基（フェノール性水酸基）以外の置換基を有してもよく有してなくてもよい。

「フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位に配置された置換基とを有する芳香環基」以外の芳香環基は、例えば、ヒドロキシフェニル基が挙げられる。

$(k + l + r \times m + n)$ 個存在する $X^1 \sim X^4$ のいずれかで表される「フェノール性水酸基を有する芳香環基」のうち、少なくとも 1 個（例えば 1 ～ 2 個）が「フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位に配置された置換基とを有する芳香環基」以外の芳香環基であることも好ましい。

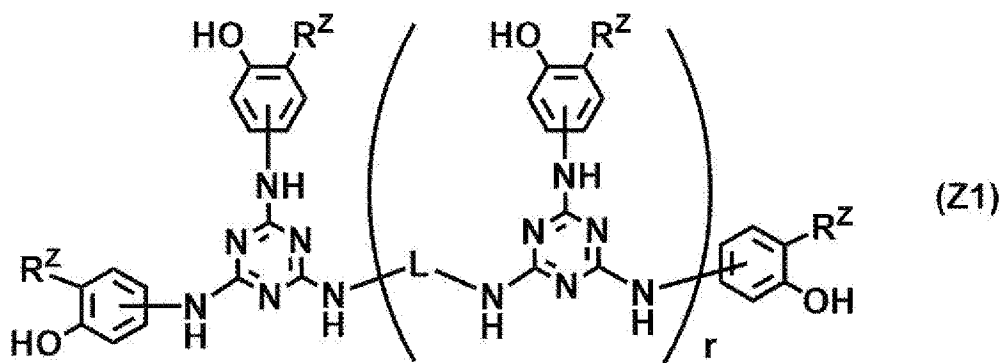
$X^1 \sim X^4$ で表されるフェノール性水酸基を有する芳香環基において、「フェノール性水酸基とフェノール性水酸基のオルト位に配置された置換基とを有する芳香環基」以外の芳香環基も存在していることで、化合物全体としての対称性が崩れ、化合物の融点が低下し、組成物から形成される半硬化膜の取り扱い性が向上すると考えられている。

[0035] フェノール化合物は、一般式（Z 1）で表される化合物であることも好ましい。

フェノール化合物は、一般式（Z 1）で表される化合物を含むことが好ましく、フェノール化合物が一般式（Z 1）で表される化合物そのものであってもよい。一般式（Z 1）で表される化合物の含有量は、フェノール化合物の全質量に対して、10 ～ 100 質量%が好ましく、25 ～ 100 質量%がより好ましく、50 ～ 100 質量%が更に好ましい。

[0036]

[化2]



[0037] 一般式 (Z 1) 中、 r は 0 以上の整数を表す。 r は 0 ～ 20 の整数であることが好ましく、0 ～ 10 の整数であることがより好ましい。

L は、2 価の有機基を表す。一般式 (Z 1) における L で表される 2 価の有機基は、例えば、一般式 (Z 1) における L で表される 2 価の有機基と同様である。

R^Z は、水素原子又は置換基を表す。

R^Z で表される置換基は、炭素数 1 ～ 6 の置換基であることが好ましく、炭素数 1 ～ 6 の炭化水素基であることがより好ましく、炭素数 1 ～ 6 の直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基であることが更に好ましい。

一般式 (Z 1) 中に $(3 + r)$ 個存在する R^Z の少なくとも 1 個 (好ましくは 30% 以上、より好ましくは 50% 以上、更に好ましくは 65% 以上。好ましくは 90% 以下、より好ましくは 80% 以下) は置換基を表してもよい。

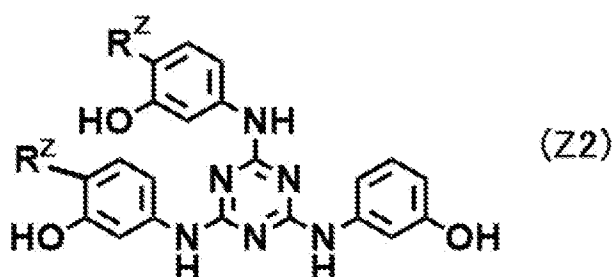
一般式 (Z 1) 中に $(3 + r)$ 個存在する R^Z の少なくとも 1 個 (例えば 1 ～ 2 個) は水素原子を表してもよい。

一般式 (Z 1) 中における R^Z (好ましくは置換基である R^Z) 及び OH が結合したベンゼン環基において、上記 R^Z (好ましくは置換基である R^Z) は、上記ベンゼン環基が結合する NH に対するパラ位に存在していることも好ましい。

[0038] フェノール化合物は、一般式 (Z 2) で表される化合物であることも好ましい。

フェノール化合物は、一般式（Z2）で表される化合物を含むことが好ましく、フェノール化合物が一般式（Z2）で表される化合物そのものであってもよい。一般式（Z2）で表される化合物の含有量は、フェノール化合物の全質量に対して、10～100質量%が好ましく、25～100質量%がより好ましく、50～100質量%が更に好ましい。

[0039] [化3]



[0040] 一般式（Z2）中、 R^Z は、水素原子又は置換基を表す。

2個存在する R^Z の少なくとも一方は置換基を表すことも好ましく、両方が置換基を表すことも好ましい。

R^Z で表される置換基は、炭素数1～6の置換基であることが好ましく、炭素数1～6の炭化水素基であることがより好ましく、炭素数1～6のアルキル基であることが更に好ましい。

上記アルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。上記アルキル基は無置換であることも好ましい。

一般式（Z2）中の2個の R^Z は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0041] その他にもフェノール化合物としては、例えば、ベンゼンジオール若しくはベンゼントリオール等のベンゼンポリオール、ビ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。

[0042] フェノール化合物の分子量は、225～2000が好ましく、225～1000がより好ましい。

なお、上記分子量に分子量分布がある場合、上記分子量は重量平均分子量である。

[0043] フェノール化合物の水酸基含有量は、2.0mmol/g以上が好ましく、4.0mmol/g以上がより好ましい。上限値は、25.0mmol/g以下が好ましく、10.0mmol/g以下がより好ましい。

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、フェノール化合物は、水酸基以外にも、エポキシ化合物（第1のエポキシ化合物及び第2のエポキシ化合物）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し、有していなくてもよい。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）の下限値は、2.0mmol/g以上が好ましく、4.0mmol/g以上がより好ましい。上限値は、25.0mmol/g以下が好ましく、10.0mmol/g以下がより好ましい。

[0044] なお、本発明の組成物は、フェノール化合物以外にも、エポキシ化合物（第1のエポキシ化合物及び第2のエポキシ化合物）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。

ただし、本発明の組成物において、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。

[0045] [第1のエポキシ化合物]

本発明の組成物は第1のエポキシ化合物を含む。

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（オキシランニル基）を有する化合物であって、後述する第2のエポキシ化合物には該当しない化合物である。

上記エポキシ基は、オキシラン環から1以上の水素原子（好ましくは1の水素原子）を除いてなる基である。上記エポキシ基は、可能な場合、更に置換基（直鎖状又は分岐鎖状の炭素数1～5のアルキル基等）を有していてもよい。

[0046] 第1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、2～1000がより好ましく、2～40が更に好ましい。

[0047] 第1のエポキシ化合物の分子量は、150以上が好ましく、300以上がより好ましい。上記分子量の上限に制限はなく、例えば100000以下が好ましく、10000以下がより好ましい。

なお、上記分子量に分子量分布がある場合、上記分子量は重量平均分子量である。

本明細書において、数平均分子量及び重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（GPC）によるポリスチレン換算で求めた重量平均分子量である。

[0048] 第1のエポキシ化合物のエポキシ基含有量は、2.0～20.0mmol/gが好ましく、5.0～15.0mmol/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。

第1のエポキシ化合物は、芳香環基（好ましくは芳香族炭化水素環基）を有するのも好ましい。

[0049] 第1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、第1のエポキシ化合物は、液晶化合物であってよい。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。

第1のエポキシ化合物（液晶性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

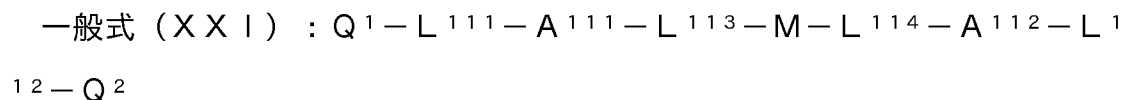
び、少なくとも部分的に円盤状構造を含む化合物（円盤状化合物）が挙げられる。

以下、棒状化合物及び円盤状化合物について詳述する。

[0050] （棒状化合物）

棒状化合物である第1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。



[0051] 一般式（XXI）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。

[0052] 一般式（XXI）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、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 、 $-NR^{112}-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-CO-NR^{112}-$ 、 $-NR^{112}-CO-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CH_2-O-$ 、 $-O-CH_2-$ 、 $-O-CO-NR^{112}-$ 、 $-NR^{112}-C$

O—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。

[0053] 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価の連結基は置換基を有していてもよいし、有していてもよい。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。

[0054] 一般式(X X I)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(X X I I)で表される基が好ましい。

一般式(X X I I) : $-(W^1-L^{115})_n-W^2-$

[0055] 一般式(X X I I)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。

[0056] W^1 及び W^2 としては、例えば、1,4-シクロヘキセンジイル、1,4-シクロヘキサジイル、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 のアルコキシカルボニル基（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。

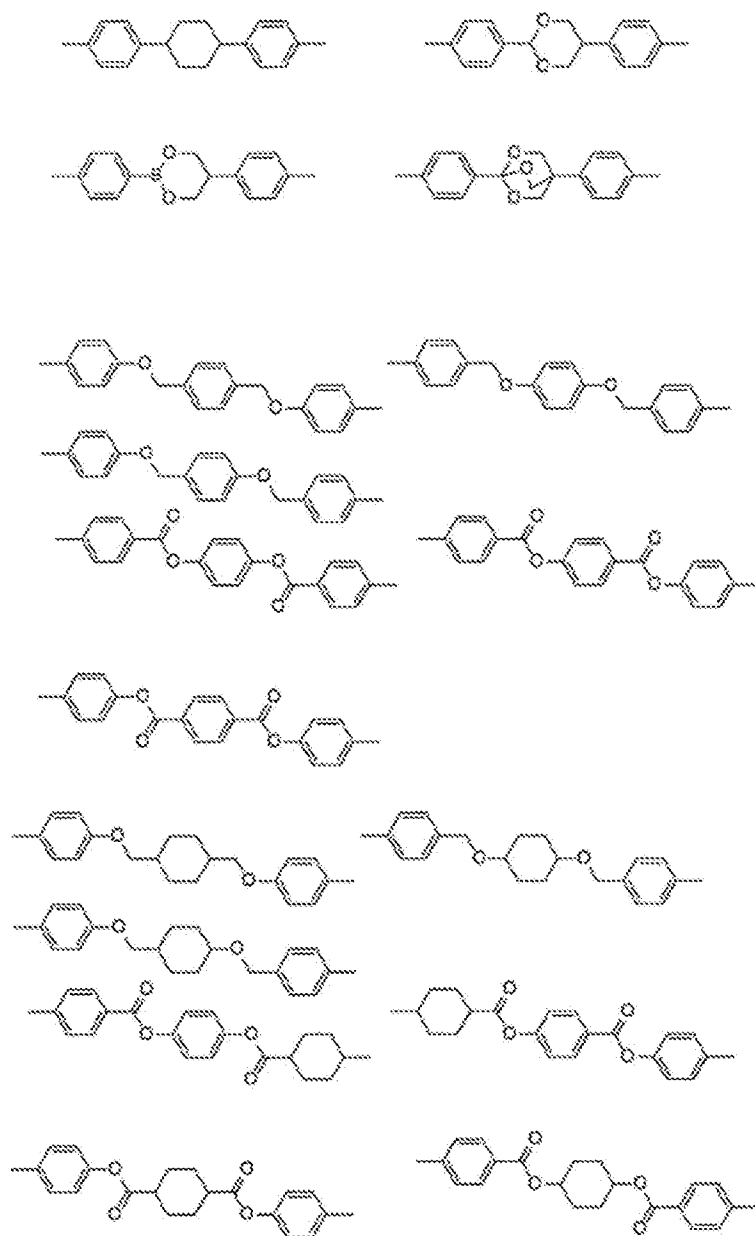
W^1 が複数存在する場合、複数存在する W^1 は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0057] 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 $L^{111} \sim L^{114}$ 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。

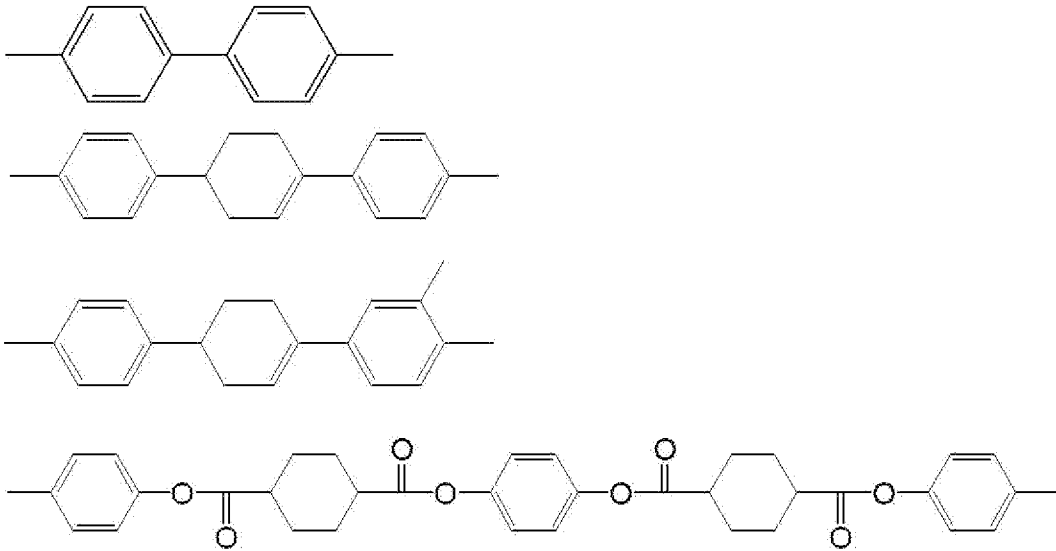
[0058] 上記一般式 (XXII) で表されるメソゲン基の基本骨格で好ましい骨格を、以下に例示する。上記メソゲン基は、これらの骨格に置換基が置換していてもよい。

[0059] [化4]



[0060]

[化5]



[0061] 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。

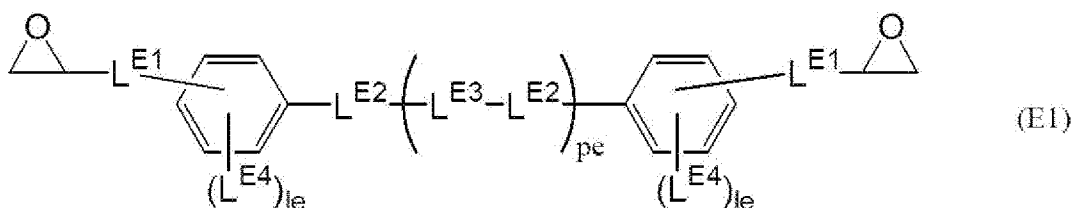
なお、一般式 (X X I) で表される化合物は、特表平 11-513019 号公報 (WO 97/00600) に記載の方法を参照して合成できる。

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。

[0062] また、一般式 (X X I) で表される化合物において、「 $Q^1-L^{111}-$ 」及び「 $-L^{112}-Q^2$ 」の一方又は両方が、ジグリシジルアミノ基に置き換わった化合物も好ましい。

[0063] 中でも、棒状化合物は、一般式 (E 1) で表される化合物であるのが好ましい。

[0064] [化6]



[0065] 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。

[0066] 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。

[0067] 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員環の芳香環基又は5員環若しくは6員環の非芳香環基、又は、これらの環からなる多環基を表す。

L^{E3} で表される芳香環基及び非芳香環基の例としては、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。

[0068] 一般式(E1)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。

[0069] 一般式(E1)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 $(L^{E4})_{l_e}$ 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。

[0070] 一般式(E1)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。

[0071] また、一般式(E1)で表される化合物において、2個存在する「エポキ

シ基—L^{E1}—」の一方又は両方が、ジグリシジルアミノアルキレン基（好ましくはジグリシジルアミノメチレン基）に置き換わった化合物も好ましい。

[0072] 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、第1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、この場合の第1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。

[0073] （円盤状化合物）

円盤状化合物である第1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2007-002220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。

[0074] 第1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（一次元的）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。

[0075] 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。

[0076] 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号公報に記載のトリフェニレン構造、並びに、特開2007-002220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等が挙げられる。

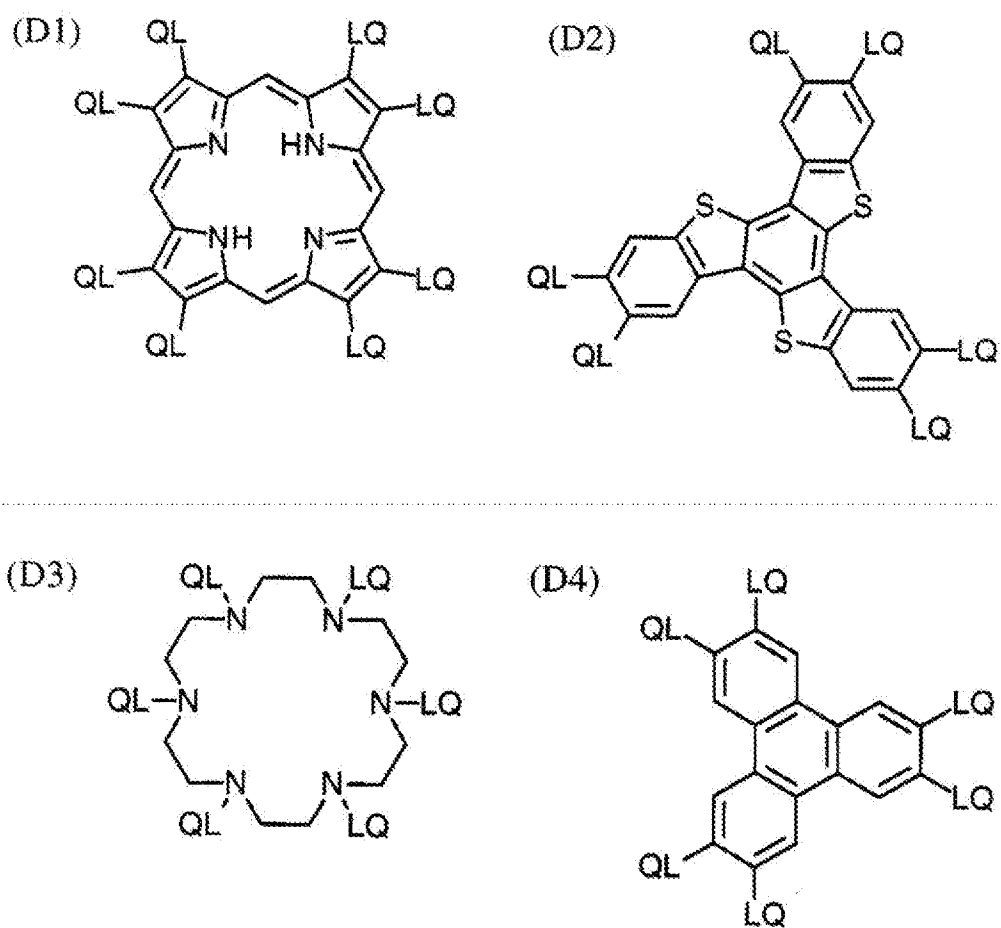
[0077] 円盤状化合物としては、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、以下に示す式(D1)～(D16)のいずれかで表される化合物が好ましい。

まず、式(D1)～(D15)について説明し、その後、式(D16)について説明する。

なお、以下の式中、「-LQ」は「-L-Q」を表し、「QL-」は「Q-L-」を表す。

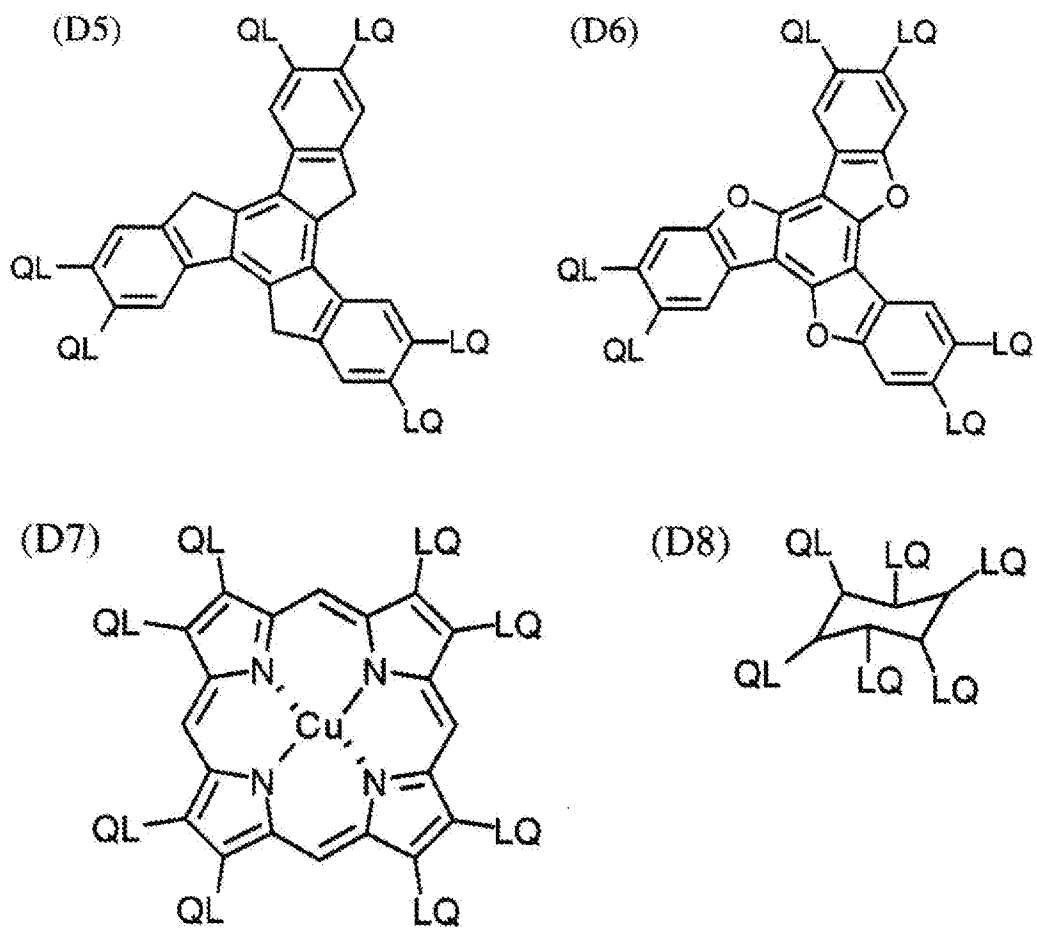
[0078]

[化7]



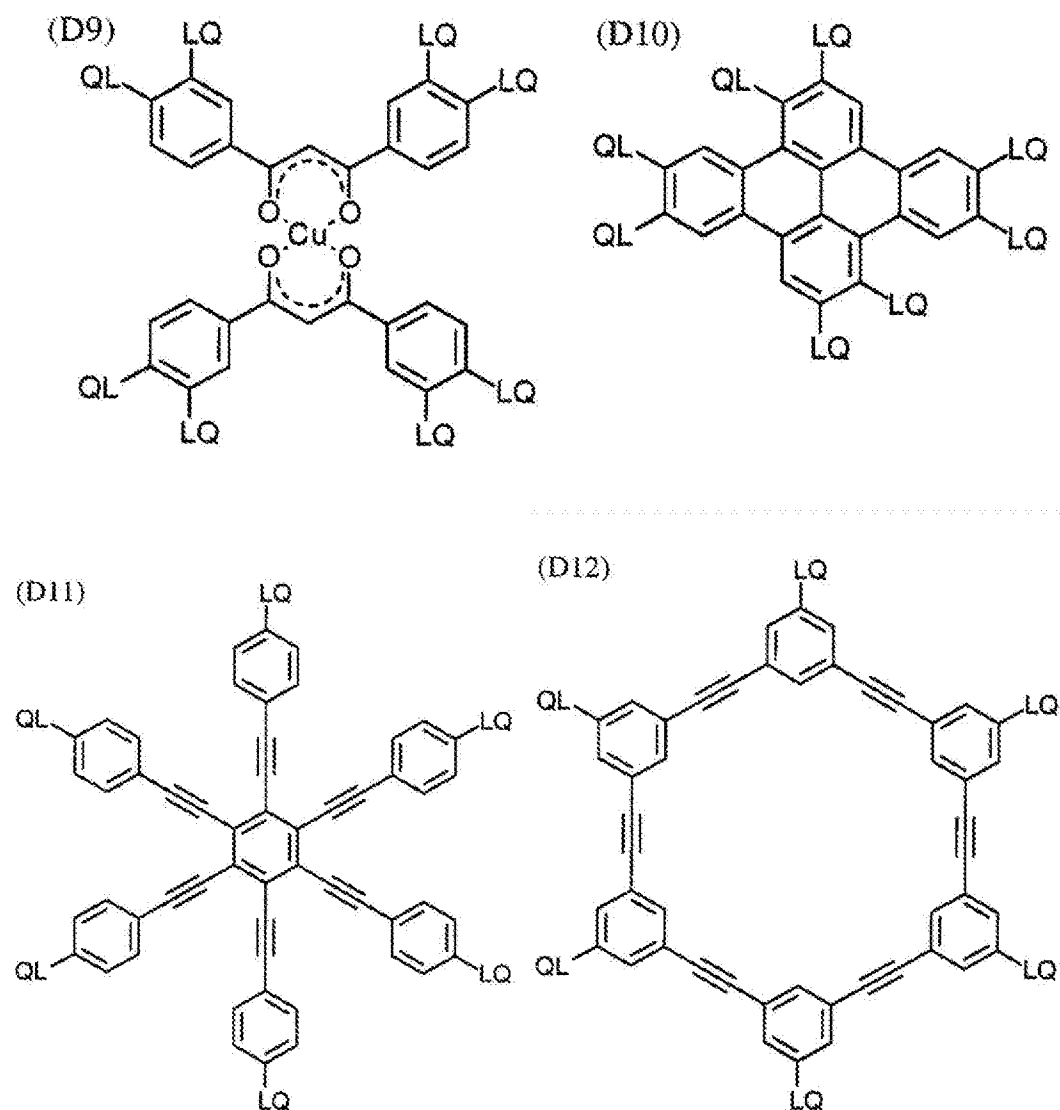
[0079]

[化8]



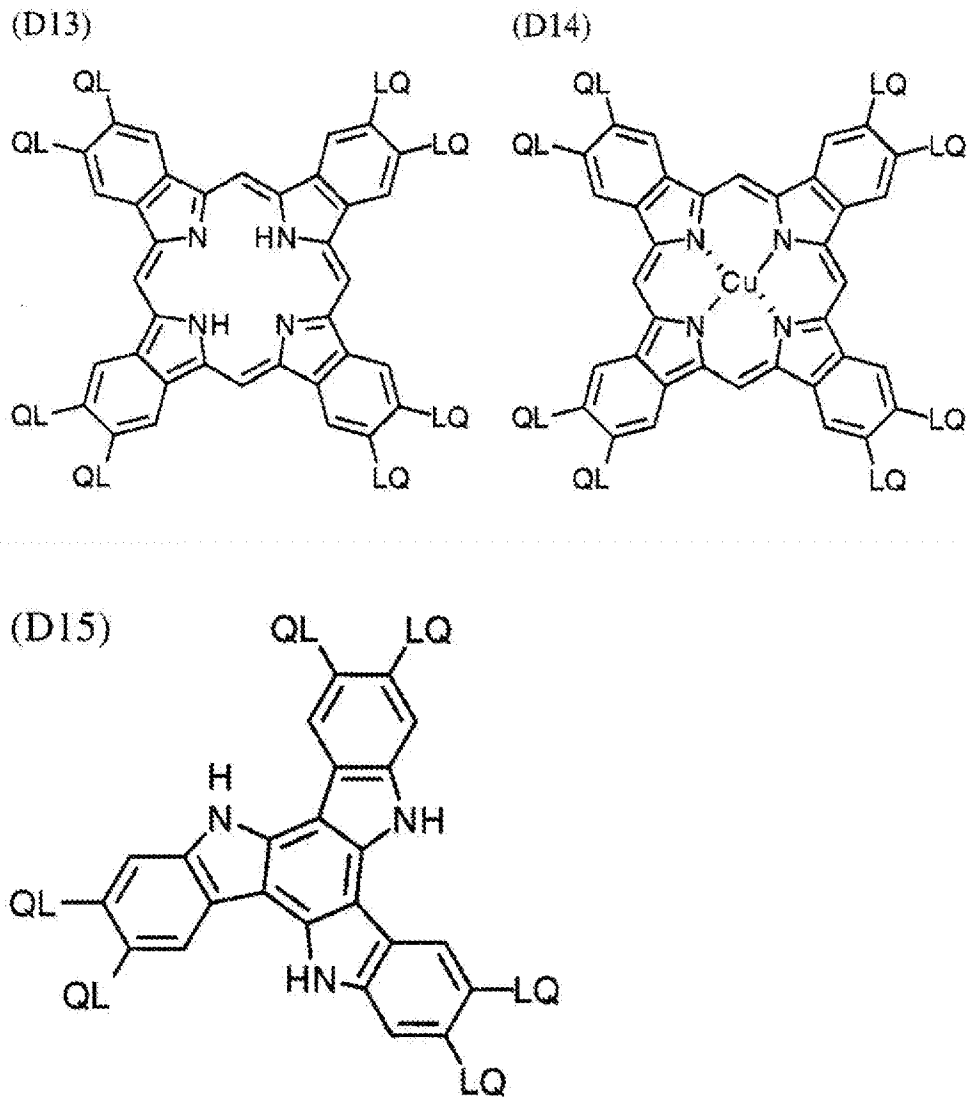
[0080]

[化9]



[0081]

[化10]



[0082] 式(D1)～(D15)中、Lは2価の連結基を表す。

熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、Lは、それぞれ独立に、アルキレン基、アルケニレン基、アリーレン基、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、及び、これらの組み合わせからなる群より選ばれる基であるのが好ましく、アルキレン基、アルケニレン基、アリーレン基、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-O-$ 、及び、 $-S-$ からなる群より選ばれる基を2個以上組み合わせた基であるのがより好ましい。

上記アルキレン基の炭素数は、1～12が好ましい。上記アルケニレン基

の炭素数は、2～12が好ましい。上記アリーレン基の炭素数は、10以下が好ましい。

アルキレン基、アルケニレン基、及び、アリーレン基は、置換基（好ましくは、アルキル基、ハロゲン原子、シアノ、アルコキシ基、及び、アシルオキシ基等）を有していてもよい。

[0083] Lの例を以下に示す。以下の例では、左側の結合手が式(D1)～(D15)のいずれかで表される化合物の中心構造（以下、単に「中心環」ともいう）の側に結合し、右側の結合手がQに結合する。

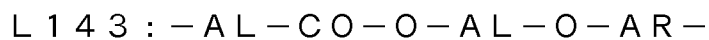
ALはアルキレン基又はアルケニレン基を意味し、ARはアリーレン基を意味する。

ALで表されるアルキレン基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよく、炭素数は例えば1～12である。ALで表されるアルケニレン基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよく、炭素数は例えば2～12である。ARで表されるアリーレン基は、単環でも多環でもよく、環員原子数は6～12が好ましい。

[0084] L101: $-AL-CO-O-AL-$
L102: $-AL-CO-O-AL-O-$
L103: $-AL-CO-O-AL-O-AL-$
L104: $-AL-CO-O-AL-O-CO-$
L105: $-CO-AR-O-AL-$
L106: $-CO-AR-O-AL-O-$
L107: $-CO-AR-O-AL-O-CO-$
L108: $-CO-NH-AL-$
L109: $-NH-AL-O-$
L110: $-NH-AL-O-CO-$
L111: $-O-AL-$
L112: $-O-AL-O-$
L113: $-O-AL-O-CO-$

[0085] L114: $-O-AL-O-CO-NH-AL-$

L 1 1 5 : - O - A L - S - A L -
L 1 1 6 : - O - C O - A L - A R - O - A L - O - C O -
L 1 1 7 : - O - C O - A R - O - A L - C O -
L 1 1 8 : - O - C O - A R - O - A L - O - C O -
L 1 1 9 : - O - C O - A R - O - A L - O - A L - O - C O -
L 1 2 0 : - O - C O - A R - O - A L - O - A L - O - A L - O - C O -
L 1 2 1 : - S - A L -
L 1 2 2 : - S - A L - O -
L 1 2 3 : - S - A L - O - C O -
L 1 2 4 : - S - A L - S - A L -
L 1 2 5 : - S - A R - A L -
L 1 2 6 : - O - C O - A L -
L 1 2 7 : - O - C O - A L - O -
L 1 2 8 : - O - C O - A R - O - A L -
L 1 2 9 : - O - C O -
L 1 3 0 : - O - C O - A R - O - A L - O - C O - A L - S - A R -
L 1 3 1 : - O - C O - A L - S - A R -
L 1 3 2 : - O - C O - A R - O - A L - O - C O - A L - S - A L -
L 1 3 3 : - O - C O - A L - S - A R -
L 1 3 4 : - O - A L - S - A R -
L 1 3 5 : - A L - C O - O - A L - O - C O - A L - S - A R -
L 1 3 6 : - A L - C O - O - A L - O - C O - A L - S - A L -
L 1 3 7 : - O - A L - O - A R -
L 1 3 8 : - O - A L - O - C O - A R -
L 1 3 9 : - O - A L - N H - A R -
L 1 4 0 : - O - C O - A L - O - A R -
L 1 4 1 : - O - C O - A R - O - A L - O - A R -
L 1 4 2 : - A L - C O - O - A R -



[0086] 式(D1)～(D15)中、Qは、それぞれ独立に、水素原子又は置換基を表す。

置換基としては、上述した置換基群Yで例示される基が挙げられる。より具体的には、置換基としては、上記反応性官能基、ハロゲン原子、イソシアネート基、シアノ基、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、チオイソシアネート基、アルデヒド基、及び、スルホ基が挙げられる。

ただし、Qがエポキシ基以外の基である場合、Qはエポキシ基に対して安定であるのが好ましい。

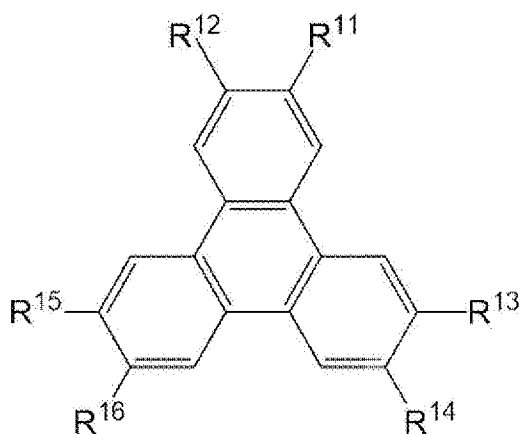
なお、式(D1)～(D15)中、1つ以上（好ましくは2つ以上）のQは、エポキシ基を表す。中でも、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、すべてのQがエポキシ基を表すのが好ましい。

なお、式(D1)～(D15)で表される化合物は、エポキシ基の安定性の点からは、 $-NH-$ を有さないのが好ましい。

[0087] 式(D1)～(D15)で表される化合物の中でも、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、式(D4)で表される化合物が好ましい。言い換えると、円盤状化合物の中心環はトリフェニレン環であるのが好ましい。

式(D4)で表される化合物としては、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、式(X1)で表される化合物が好ましい。

[0088] [化11]



式(X1)

[0089] 式 (X I) 中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、及び、 R^{16} は、それぞれ独立に、 $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ 、又は、 $*-X^{12}-L^{12}-Y^{12}$ を表す。

なお、 $*$ はトリフェニレン環との結合位置を表す。

R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、及び、 R^{16} のうち、2個以上は、 $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ であり、3個以上が $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ であるのが好ましい。

中でも、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、 R^{11} 及び R^{12} のいずれか1個以上、 R^{13} 及び R^{14} のいずれか1個以上、並びに、 R^{15} 及び R^{16} のいずれか1個以上が、 $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ であるのが好ましい。

R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、及び、 R^{16} が、全て、 $*-X^{11}-L^{11}-P^{11}$ であるのがより好ましい。加えて、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、及び、 R^{16} が、全て同一であるのが更に好ましい。

[0090] X^{11} は、それぞれ独立に、単結合、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-O-CO-NH-$ 、 $-O-CO-S-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-CO-NH-$ 、 $-CO-S-$ 、 $-NH-CO-$ 、 $-NH-CO-O-$ 、 $-NH-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-S-$ 、 $-S-$ 、 $-S-CO-$ 、 $-S-CO-O-$ 、 $-S-CO-NH-$ 、又は、 $-S-CO-S-$ を表す。

中でも、 X^{11} は、それぞれ独立に、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-O-CO-NH-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-$ 、又は、 $-NH-CO-O-$ が好ましく、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-NH-$ 、又は、 $-CO-NH-$ がより好ましく、 $-O-CO-$ 又は $-CO-O-$ が更に好ましい。

[0091] L^{11} は、それぞれ独立に、単結合又は2価の連結基を表す。

2価の連結基の例としては、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、アルキレン基（炭素数は、1～10が好ましく、1～8がより好ましく、1～7が更に好ましい。）、アリーレン基（炭素数は、6～20が好ましく、6～14がより好ましく、6～10が更に好ましい。）、又

は、これらの組み合わせからなる基が挙げられる。

上記アルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、及び、ヘプチレン基が挙げられる。

上記アリーレン基としては、1, 4-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、1, 4-ナフチレン基、1, 5-ナフチレン基、及び、アントラセニレン基が挙げられ、1, 4-フェニレン基が好ましい。

[0092] 上記アルキレン基及び上記アリーレン基はそれぞれ置換基を有していてもよい。置換基の数は、1～3が好ましく、1がより好ましい。置換基の置換位置は特に制限されない。置換基としては、ハロゲン原子又は炭素数1～3のアルキル基が好ましく、メチル基がより好ましい。

上記アルキレン基及び上記アリーレン基は無置換であるのも好ましい。中でも、アルキレン基は無置換であるのが好ましい。

[0093] $-X^{11}-L^{11}-$ の例として、上述のLの例であるL101～L143が挙げられる。

[0094] P^{11} は、エポキシ基を表す。上記エポキシ基は置換基を有していてもよく、有していなくてもよい。

[0095] X^{12} は、 X^{11} と同様であり、好適な条件も同様である。

L^{12} は、 L^{11} と同様であり、好適な条件も同様である。

$-X^{12}-L^{12}-$ の例として、上述のLの例であるL101～L143が挙げられる。

[0096] Y^{12} は、水素原子、炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル基、又は、炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル基において1個又は2個以上のメチレン基が $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-CO-$ 、又は $-CO-O-$ で置換された基を表す。

Y^{12} が、炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル基、又は、炭素数1～20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル

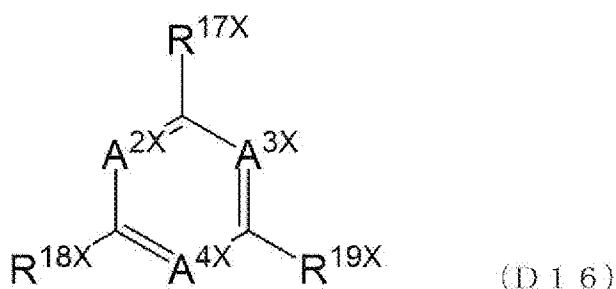
基において1個又は2個以上のメチレン基が $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-CO-$ 、又は $-CO-O-$ で置換された基の場合、 Y^{12} に含まれる水素原子の1個以上がハロゲン原子で置換されていてもよい。

[0097] 式(X1)で表される化合物の具体例については、特開平7-281028号公報の段落番号0028~0036、特開平7-306317号公報、特開2005-156822号公報の段落番号0016~0018、特開2006-301614号公報の段落番号0067~0072、及び、液晶便覧(平成12年丸善株式会社発刊)330頁~333頁に記載の化合物において、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。

[0098] 式(X1)で表される化合物は、特開平7-306317号公報、特開平7-281028号公報、特開2005-156822号公報、及び、特開2006-301614号公報に記載の方法に準じて合成できる。

[0099] また、熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、円盤状化合物として、式(D16)で表される化合物も好ましい。

[0100] [化12]



[0101] 式(D16)中、 A^{2X} 、 A^{3X} 、及び、 A^{4X} は、それぞれ独立に、 $-CH=$ 又は $-N=$ を表す。中でも、 A^{2X} 、 A^{3X} 、及び、 A^{4X} が、いずれも $-CH=$ であること、又は、いずれも $-N=$ であることが好ましい。つまり、 A^{2X} 、 A^{3X} 、及び、 A^{4X} を含む6員環が、ベンゼン環であること、又は、トリアジン環であることが好ましい。

R^{17X} 、 R^{18X} 、及び、 R^{19X} は、それぞれ独立に、 $*-X^{211X}- (Z^{21X}$

$-X^{212X})_{n21X}-L^{21X}-Q$ を表す。 $*$ は、中心環との結合位置を表す。

X^{211X} 及び X^{212X} は、それぞれ独立に、単結合、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-O-CO-NH-$ 、 $-O-CO-S-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-CO-NH-$ 、 $-CO-S-$ 、 $-NH-CO-$ 、 $-NH-CO-O-$ 、 $-NH-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-S-$ 、 $-S-$ 、 $-S-CO-$ 、 $-S-CO-O-$ 、 $-S-CO-NH-$ 、又は、 $-S-CO-S-$ を表す。

Z^{21X} は、それぞれ独立に、5員環若しくは6員環の芳香環基、又は、5員環若しくは6員環の非芳香環基を表す。

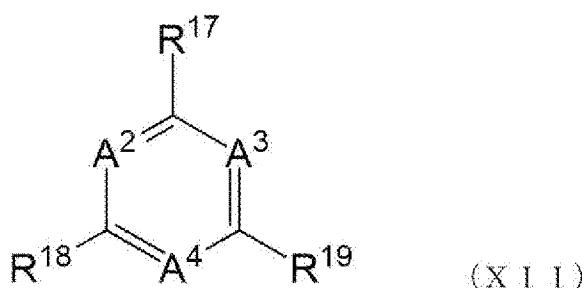
L^{21X} は、単結合又は2価の連結基を表す。

Q は、式(D1)～(D15)における Q と同義であり、好ましい条件も同様である。式(D16)中、複数存在する Q のうち、少なくとも1つ（好ましくは全部）の Q は、エポキシ基を表す。

$n21X$ は、0～3の整数を表す。 $n21X$ が2以上の場合、複数存在する($Z^{21X}-X^{212X}$)は、同一でも異なってもよい。

[0102] 式(D16)で表される化合物としては、式(X11)で表される化合物が好ましい。

[0103] [化13]



[0104] 式(X11)中、 A^2 、 A^3 、及び、 A^4 は、それぞれ独立に、 $-CH=$ 又は $-N=$ を表す。中でも、 A^2 、 A^3 、及び、 A^4 が、いずれも $-CH=$ であること、又は、いずれも $-N=$ であることが好ましい。つまり、 A^2 、 A^3 、及び、 A^4 を含む6員環が、ベンゼン環であること、又は、トリアジン環であることが好ましい。

[0105] R^{17} 、 R^{18} 、及び、 R^{19} は、それぞれ独立に、 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$ 、又は、 $*-X^{221}-(Z^{22}-X^{222})_{n22}-Y^{22}$ を表す。 $*$ は中心環との結合位置を表す。

R^{17} 、 R^{18} 、及び、 R^{19} のうち2個以上は、 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$ である。熱伝導材料の熱伝導性がより優れる観点から、 R^{17} 、 R^{18} 、及び、 R^{19} は全てが、 $*-X^{211}-(Z^{21}-X^{212})_{n21}-L^{21}-P^{21}$ であるのが好ましい。

加えて、 R^{17} 、 R^{18} 、及び、 R^{19} が、全て同一であるのが好ましい。

[0106] X^{211} 、 X^{212} 、 X^{221} 、及び、 X^{222} は、それぞれ独立に、単結合、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-NH-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-O-CO-O-$ 、 $-O-CO-NH-$ 、 $-O-CO-S-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-CO-NH-$ 、 $-CO-S-$ 、 $-NH-CO-$ 、 $-NH-CO-O-$ 、 $-NH-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-S-$ 、 $-S-$ 、 $-S-CO-$ 、 $-S-CO-O-$ 、 $-S-CO-NH-$ 、又は、 $-S-CO-S-$ を表す。

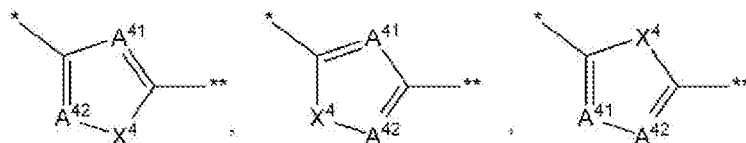
中でも、 X^{211} 、 X^{212} 、 X^{221} 、及び、 X^{222} としては、それぞれ独立に、単結合、 $-NH-$ 、 $-O-$ 、 $-CO-O-$ 、又は、 $-O-CO-$ が好ましい。

[0107] Z^{21} 及び Z^{22} は、それぞれ独立に、5員環若しくは6員環の芳香環基、又は、5員環若しくは6員環の非芳香環基を表し、例えば、ベンゼン環基（1，4-フェニレン基及び1，3-フェニレン基等）、並びに、芳香族複素環基が挙げられる。

[0108] 上記芳香環基及び上記非芳香環基は、置換基を有していてもよい。置換基を有する場合、置換基の数は、1～4が好ましく、1又は2がより好ましく、1が更に好ましい。置換基の置換位置は、特に制限されない。置換基としては、ハロゲン原子又はメチル基が好ましい。上記芳香環基及び上記非芳香環基は無置換であるのも好ましい。また、置換基として、更に「 $-X^{212}-L^{21}-P^{21}$ 」で表される基を有していてもよい。

[0109] 芳香族複素環基としては、例えば、以下の芳香族複素環基が挙げられる。

[化14]



[0110] 式中、*は X^{211} 又は X^{221} に結合する部位を表す。**は X^{212} 又は X^{222} に結合する部位を表す。 A^{41} 及び A^{42} は、それぞれ独立に、メチン基又は窒素原子を表す。 X^4 は、酸素原子、硫黄原子、又は、イミノ基を表す。

A^{41} 及び A^{42} は、少なくとも一方が窒素原子であるのが好ましく、両方が窒素原子であるのがより好ましい。また、 X^4 は、酸素原子であるのが好ましい。

[0111] 後述する n_{21} 及び n_{22} が2以上の場合、複数存在する($Z^{21}-X^{212}$)及び($Z^{22}-X^{222}$)は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0112] L^{21} は、それぞれ独立に、単結合又は2価の連結基を表し、上述した式(X1)における L^{11} と同義である。 L^{21} としては、 $-O-$ 、 $-O-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、アルキレン基(炭素数は、1~10が好ましく、1~8がより好ましく、1~7が更に好ましい。)、アリーレン基(炭素数は、6~20が好ましく、6~14がより好ましく、6~10が更に好ましい。)、又は、これらの組み合わせからなる基が好ましい。

[0113] 後述する n_{22} が1以上の場合において、 $-X^{212}-L^{21}-$ の例としては、上述の式(D1)~(D15)におけるLの例である $L_{101} \sim L_{143}$ が同様に挙げられる。ただしこの場合、 $L_{101} \sim L_{143}$ における左側の結合手が化合物の中心構造(以下、単に「中心環」ともいう)の側に結合し、右側の結合手が P^{21} に結合する。

[0114] P^{21} は、エポキシ基を表す。上記エポキシ基は置換基を有していてもよく、有していなくてもよい。

[0115] Y^{22} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル基、又は、炭素数1~20の直鎖状、分岐鎖状、若しくは、環状のアルキル基において1個又は2個以上のメチレン基がー

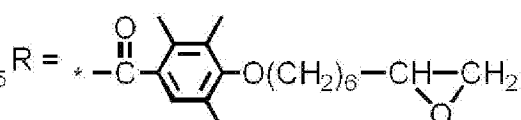
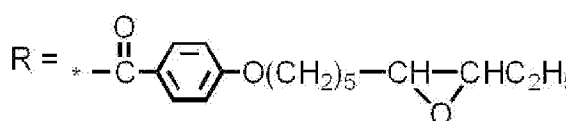
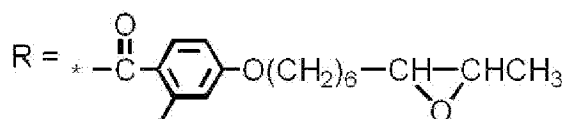
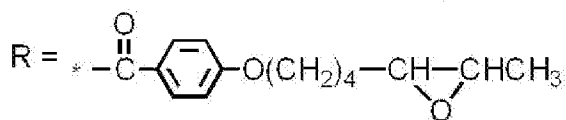
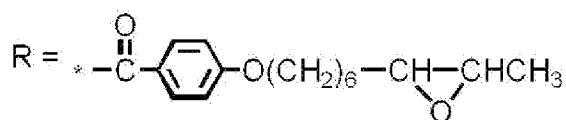
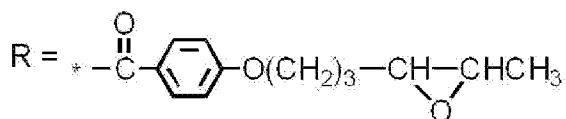
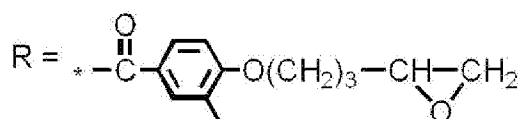
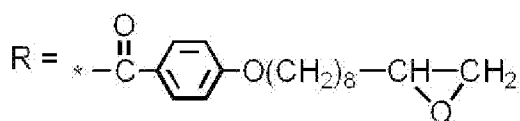
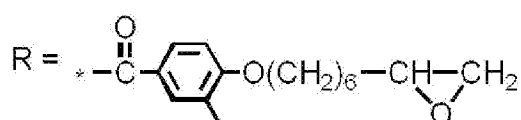
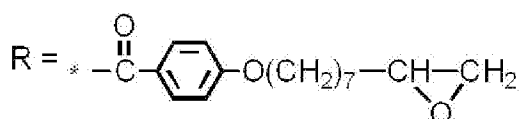
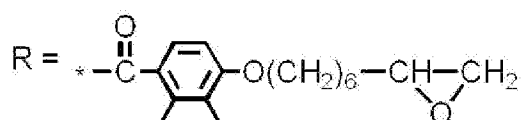
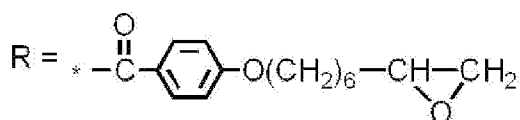
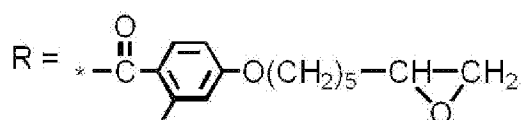
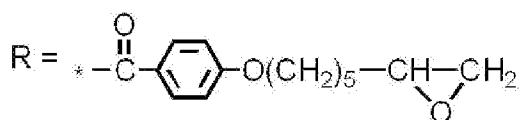
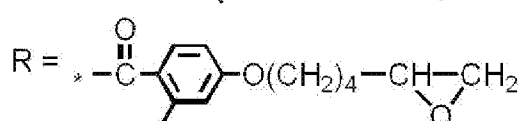
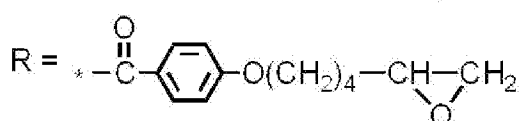
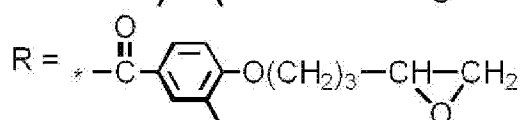
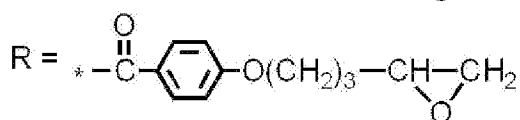
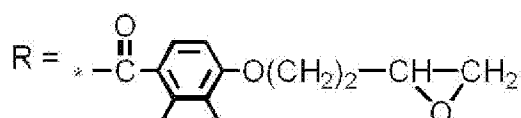
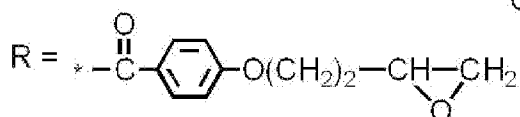
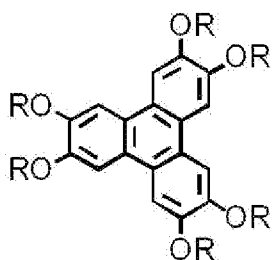
O—、—S—、—NH—、—N(CH₃)—、—CO—、—O—CO—、又は、—CO—O—で置換された基を表し、一般式(X I)におけるY¹²と同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0116] n₂₁及びn₂₂はそれぞれ独立に、0～3の整数を表し、熱伝導性がより優れる観点から、1～3の整数が好ましい。中でも、A²、A³、及び、A⁴が、いずれも—CH=である場合はn₂₁及びn₂₂がそれぞれ独立に2～3の整数であることがより好ましく、A²、A³、及び、A⁴が、いずれも—N=である場合はn₂₁及びn₂₂がそれぞれ独立に1であることがより好ましい。

[0117] 円盤状化合物の好ましい例としては、以下の化合物が挙げられる。

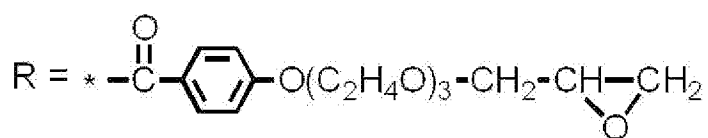
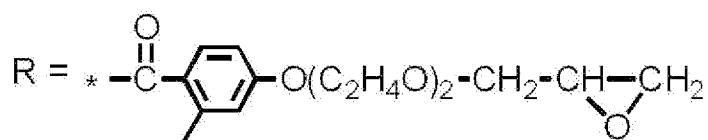
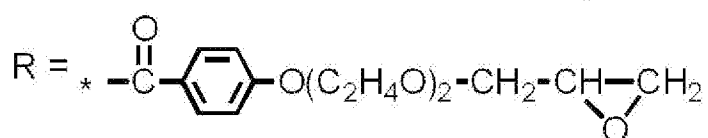
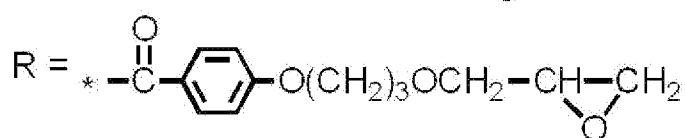
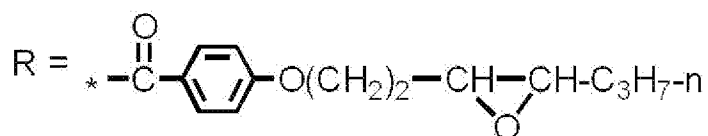
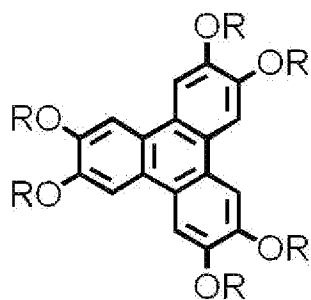
[0118]

[化15]

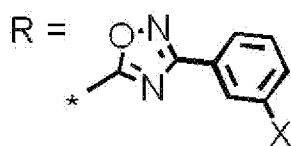
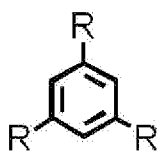


[0119]

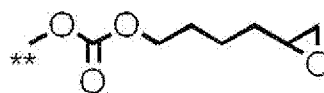
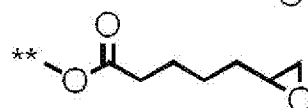
[化16]

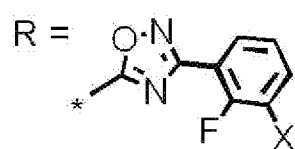
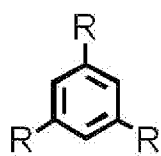


[0120] [化17]

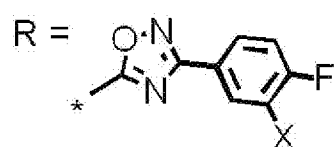
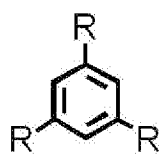
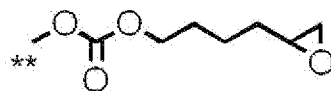
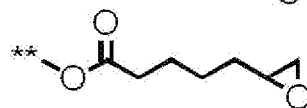
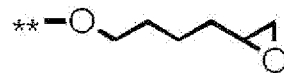


X =

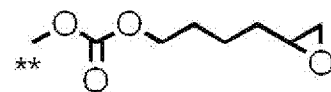
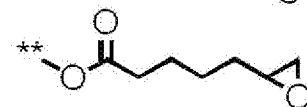
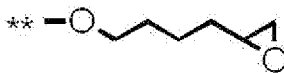




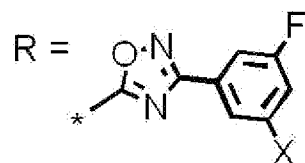
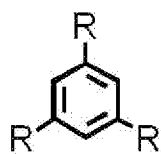
X =



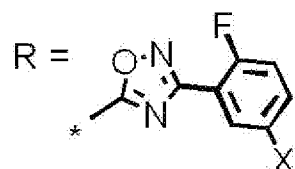
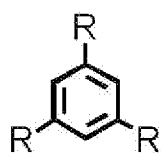
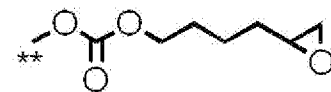
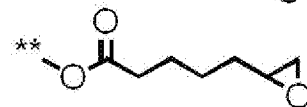
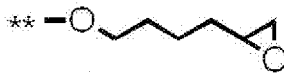
X =



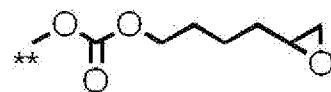
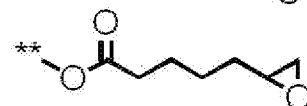
[0121] [化18]

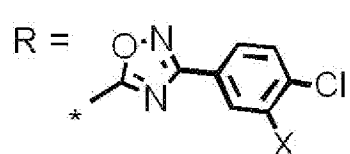
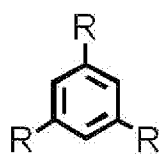


X =

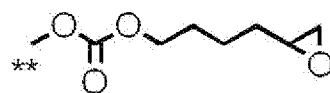
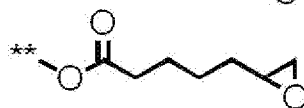


X =

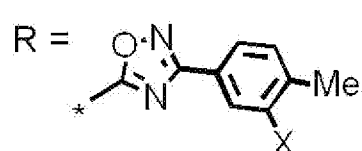
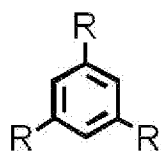




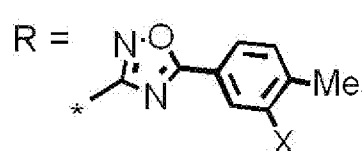
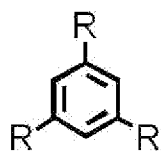
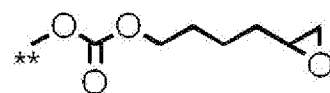
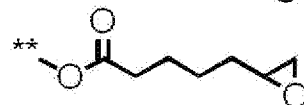
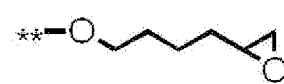
X =



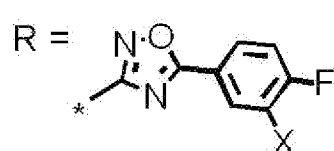
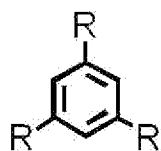
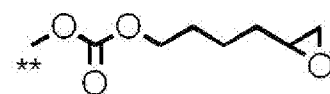
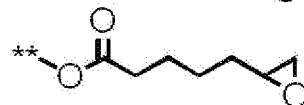
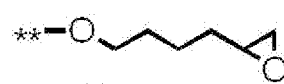
[0122] [化19]



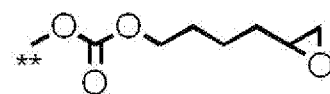
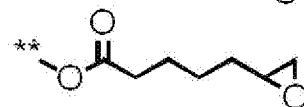
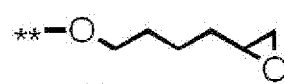
X =



X =

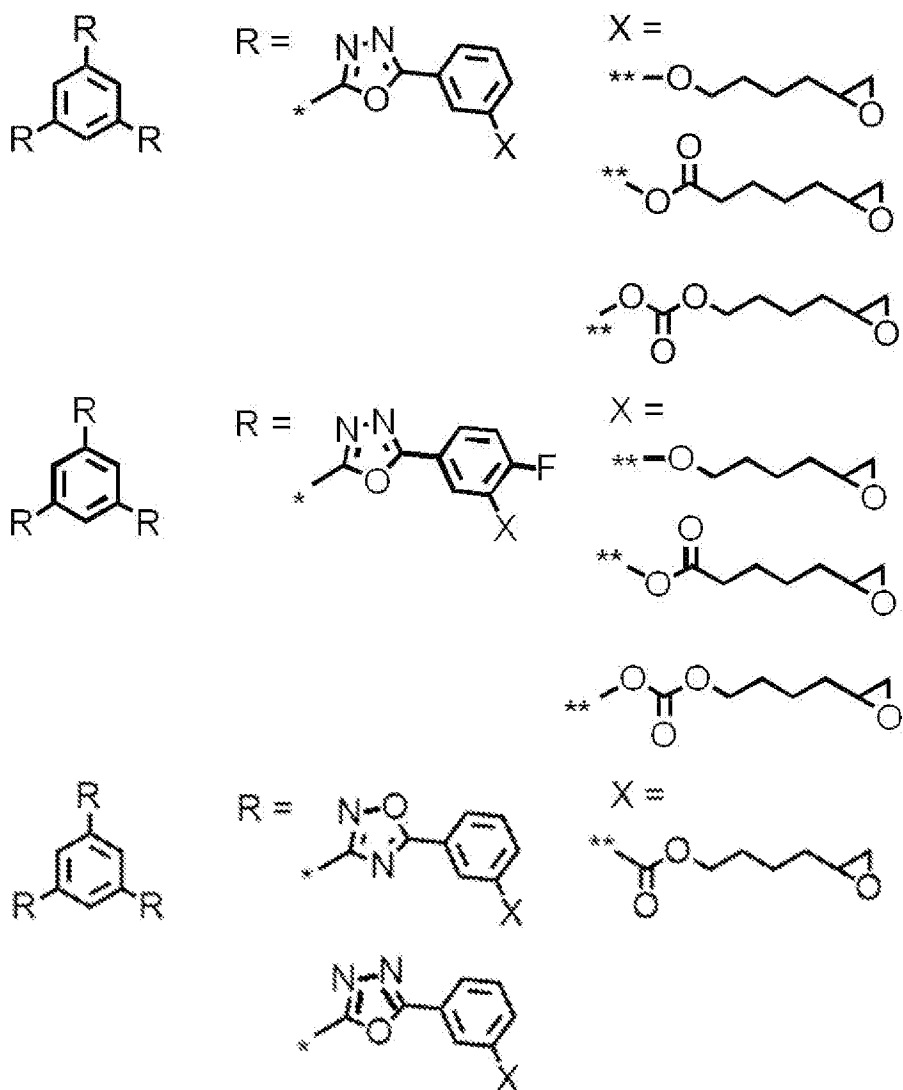


X =



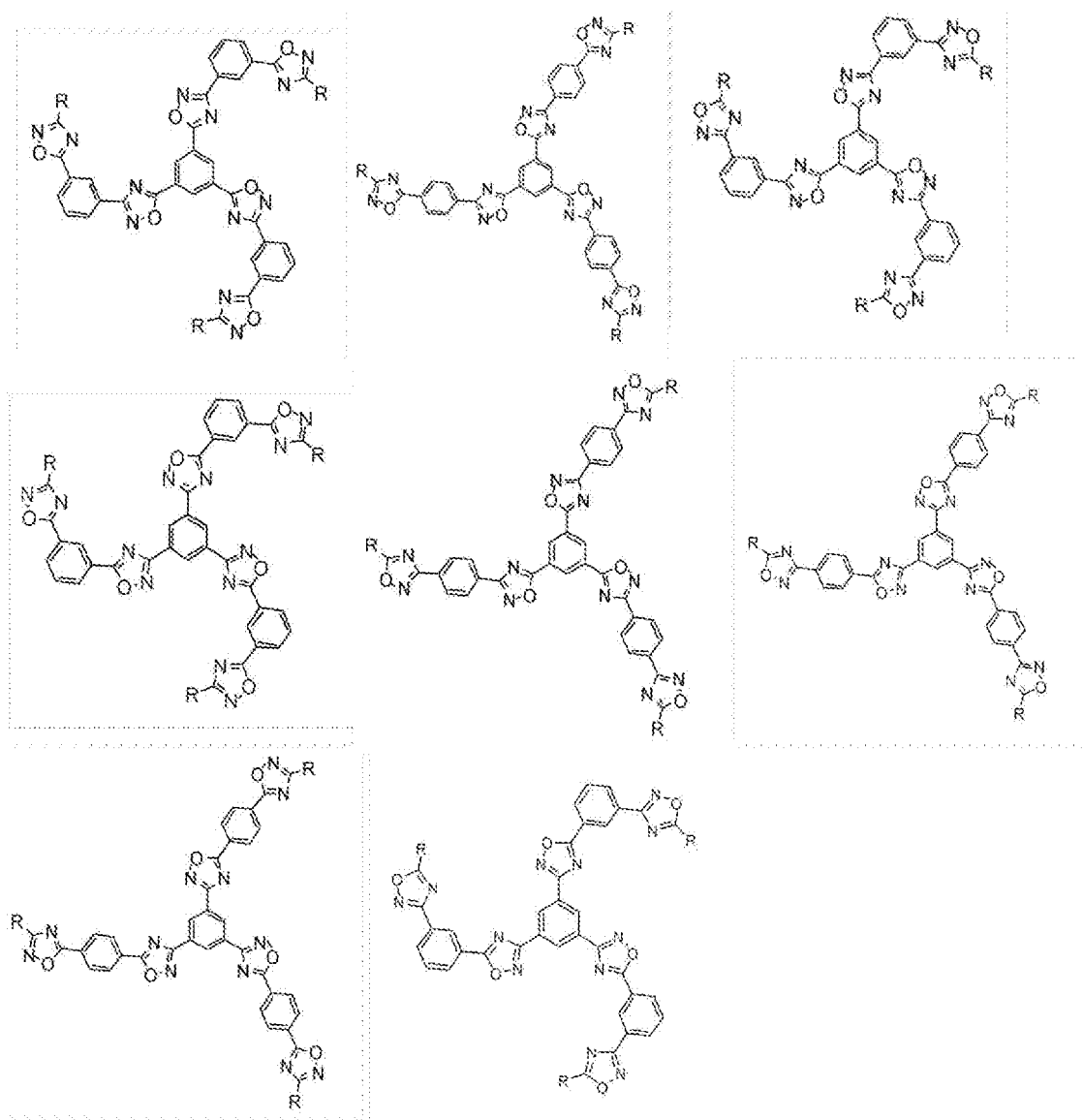
[0123]

[化20]

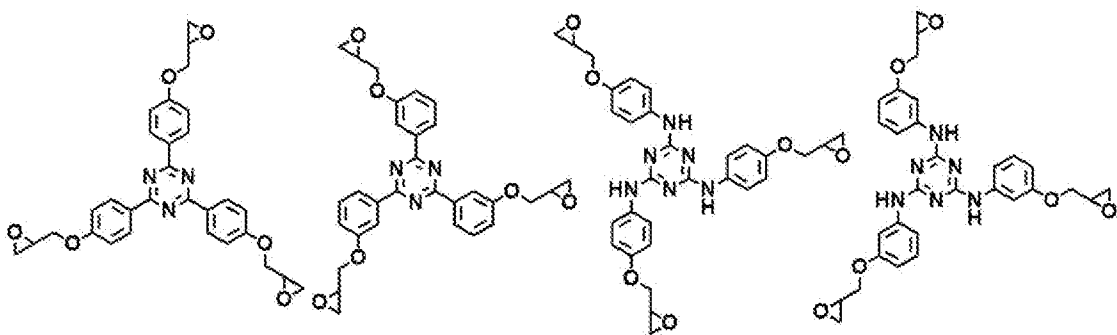
[0124] なお、下記構造式中、Rは、 $\text{--X}^{212}\text{--L}^{21}\text{--P}^{21}$ を表す。

[0125]

[化21]



[0126] [化22]



[0127] 式(X11)で表される化合物の詳細、及び具体例については、特開2010-244038号公報の段落0013~0077に記載の化合物におい

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を参照でき、その内容は本明細書に組み込まれる。

[0128] 式（X 1 1）で表される化合物は、特開2010-244038号公報、特開2006-076992号公報、及び、特開2007-002220号公報に記載の方法に準じて合成できる。

[0129] なお、電子密度を減らしてスタッキングを強くし、カラム状集合体を形成しやすくなるという観点から、円盤状化合物は水素結合性官能基を有する化合物であるのも好ましい。水素結合性官能基としては、 $-O-CO-NH-$ 、 $-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-$ 、 $-NH-CO-O-$ 、 $-NH-CO-NH-$ 、 $-NH-CO-S-$ 、又は、 $-S-CO-NH-$ 等が挙げられる。

[0130] （その他の第1のエポキシ化合物）

上述のエポキシ化合物以外にも、第1のエポキシ化合物は、例えば、フェノール化合物の説明中で述べた一般式（Z）、一般式（Z 1）、又は、一般式（Z 2）において、フェノール性水酸基をエポキシ含有基に代えた一般式で表される化合物も使用できる。

エポキシ含有基は、エポキシ基そのものである基、又は、エポキシ基を一部分に含む一価の基である。

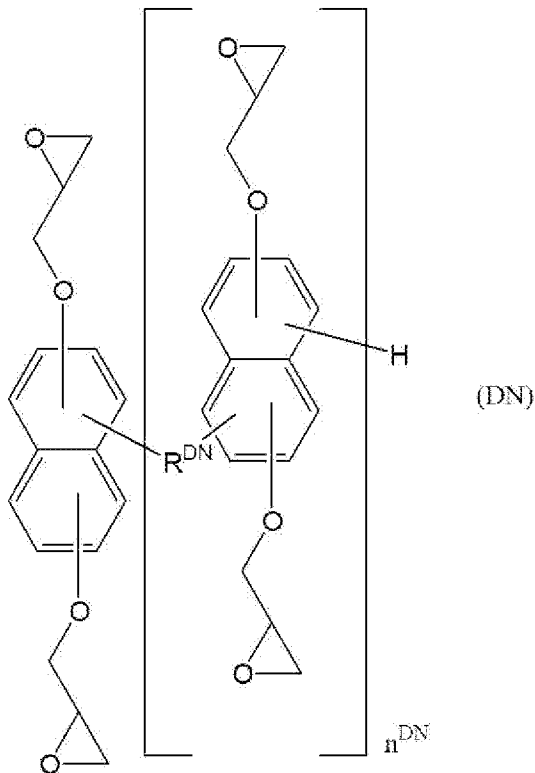
上記エポキシ基を一部分に含む一価の基は、基全体の中にエポキシ基を1個以上（好ましくは1～8個）有する基である。

上記エポキシ基を一部分に含む一価の基は、「 $-(2\text{価の炭化水素基})_{M1}-(-O-2\text{価の炭化水素基})_{M2}-\text{エポキシ基}$ 」で表される基が好ましい。上記基において、M1は、0又は1を表す。M2は、1以上（好ましくは1～10）の整数を表す。上記基における2価の炭化水素基としては、例えば、アルキレン基（好ましくは炭素数1～6）、アルケニレン基（ $-CH=CH-$ 等。好ましくは炭素数2～6）、アルキニレン基（ $-C\equiv C-$ 等。好ましくは炭素数2～6）、アリーレン基（フェニレン基等。好ましくは炭素数6～15）、及び、これらを組み合わせた基が挙げられる。上記2価の炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよく、上記2価の炭化水

素基が置換基として更にエポキシ含有基を有してもよい。複数存在してもよい。上記 2 価の炭化水素基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0131] また、その他の第 1 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も挙げられる。

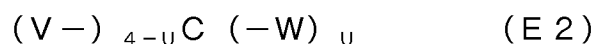
[0132] [化23]



[0133] 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。

[0134] その他の第 1 のエポキシ化合物としては、一般式 (E2) で表されるエポキシ化合物も挙げられる。



[0135] 一般式 (E2) 中、C は、炭素原子を表す。

[0136] 一般式 (E 2) 中、U は、3 又は 4 の整数を表す。

一般式 (E 2) 中において、V の数を示す「4 - U」中の「U」と、W の数を示す「U」とは同じ値を示す。つまり、一般式 (E 2) は、「V - C (-W)₃」又は「C (-W)₄」である。

[0137] 一般式 (E 2) 中、V は、エポキシ基を有さない置換基又は水素原子を表す。

上記エポキシ基を有さない置換基は、エポキシ基以外の置換基であり、かつ、置換基の一部としてもエポキシ基を含むことがない置換基である。

上記エポキシ基を有さない置換基としては、例えば、置換基群 Y から選択される基であって、エポキシ基及びエポキシ基を一部分に含む基を除いた基が挙げられる。

上記エポキシ基を有さない置換基は、アルキル基が好ましく、直鎖状又は分岐鎖状のアルキル基がより好ましい。上記アルキル基は、炭素数 1 ～ 5 が好ましい。

[0138] 一般式 (E 2) 中、W は、エポキシ含有基を表す。

エポキシ含有基は、エポキシ基そのものである基、又は、エポキシ基を一部分に含む一価の基である。

上記エポキシ基を一部分に含む一価の基は、基全体の中にエポキシ基を 1 個以上（好ましくは 1 ～ 8 個）有する基である。

上記エポキシ基を一部分に含む一価の基は、「- (2 価の炭化水素基)_{M1} - (-O- 2 価の炭化水素基)_{M2} - エポキシ基」で表される基が好ましい。上記基において、M1 は、0 又は 1 を表す。M2 は、1 以上（好ましくは 1 ～ 10）の整数を表す。上記基における 2 価の炭化水素基としては、例えば、アルキレン基（好ましくは炭素数 1 ～ 6）、アルケニレン基（-CH=CH- 等。好ましくは炭素数 2 ～ 6）、アルキニレン基（-C≡C- 等。好ましくは炭素数 2 ～ 6）、アリーレン基（フェニレン基等。好ましくは炭素数 6 ～ 15）、及び、これらを組み合わせた基が挙げられる。上記 2 価の炭化水素基は置換基を有していても有していなくてもよく、上記 2 価の炭化水

素基が置換基として更にエポキシ含有基を有してもよい。複数存在してもよい。上記2価の炭化水素基は、それぞれ同一でも異なってもよい。

一般式(E2)中に複数存在するWは、それぞれ同一でも異なってもよい。

[0139] その他の第1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-ジエポキシビスクロ[4.3.0]ノナン等が挙げられる。

[0140] その他の第1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）；レゾルシノール等のジヒドロキシベンゼンの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のグリシジルエーテル（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）；トリスフェノールメタン型エポキシ化合物；及び、フェノキシ樹脂等が挙げられる。上述の各化合物におけるグリシジルエーテル基及び／又はグリシジルエステル基の1個又は2個以上が、ジグリシジルアミノ基又はジグリシジルアミノアルキレン基（ジグリシジルアミノメチレン基等）に置き換わった化合物を第1のエポキシ化合物として使用してもよい。

上述の各化合物は、置換基を有していてもよい。例えば、上述の各化合物

に含まれる芳香環基、シクロアルカン環基、及び／又は、アルキレン基等が、グリシジルエーテル基、グリシジルエステル基、ジグリシジルアミノ基、及び／又は、ジグリシジルアミノアルキレン基以外の置換基を有していてもよい。

[0141] 中でも、第1のエポキシ化合物としては、本発明の効果がより優れる点から、ポリヒドロキシベンゼン型エポキシ化合物、ビフェニル骨格を有するエポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、フェノキシ樹脂、又は、一般式(E2)で表されるエポキシ化合物からなる群から選択される1種以上のエポキシ化合物を含むことが好ましい。また、例えば、トリアジン骨格を有さない第1のエポキシ化合物として、上記1種以上のエポキシ化合物を含むことが好ましい。

第1のエポキシ化合物は、上記1種以上のエポキシ化合物そのものであってもよいし、一部に含んでいてもよい。上記1種以上のエポキシ化合物の含有量は、第1のエポキシ化合物の全質量に対して、30～100質量%が好ましく、60～100質量%がより好ましく、90～100質量%が更に好ましい。

[0142] [フェノール化合物と第1のエポキシ化合物との関係性]

本発明の組成物において、フェノール化合物がトリアジン骨格を有するフェノール化合物を含むこと(要件1)、及び、第1のエポキシ化合物がトリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含むこと(要件2)、の少なくとも一方の要件を満たす。

組成物は、要件1のみを満たしてもよいし、要件2のみを満たしてもよいし、要件1及び要件2の両方を満たしてもよい。

[0143] フェノール化合物及び第1のエポキシ化合物が「トリアジン骨格を有する」とは、化合物中に1個以上(例えば1～5個)のトリアジン環基を有することを意味する。

トリアジン骨格を有するフェノール化合物としては、例えば、上述の、一般式(Z)で表される化合物、一般式(Z1)で表される化合物、及び、一

般式（Z 2）で表される化合物が挙げられる。

トリアジン骨格を有するエポキシ化合物としては、例えば、上述の、式（D 1 6）で表される化合物において A^{2x} 、 A^{3x} 、及び、 A^{4x} がいずれも $-N=$ である形態の化合物、式（X 1 1）で表される化合物において A^2 、 A^3 、及び、 A^4 がいずれも $-N=$ である形態の化合物、一般式（Z）においてフェノール性水酸基をエポキシ基含有基に代えた一般式で表される化合物、一般式（Z 1）においてフェノール性水酸基をエポキシ基含有基に代えた一般式で表される化合物、及び、一般式（Z 2）においてフェノール性水酸基をエポキシ基含有基に代えた一般式で表される化合物が挙げられる。

なお、エポキシ化合物がトリアジン骨格を有していたとしても、そのエポキシ化合物が後述する第2のエポキシ化合物に該当する場合は、そのエポキシ化合物は第1のエポキシ化合物には含まれない。つまり、組成物が、トリアジン骨格を有する第2のエポキシ化合物を含んでいたとしても、それによっては要件2を充足しない。

[0144] フェノール化合物が、トリアジン骨格を有するフェノール化合物を含む場合（つまり要件1を満たす場合）、その含有量は、フェノール化合物の全質量に対して、0質量%超100質量%以下であり、30～100質量%が好ましく、60～100質量%がより好ましく、90～100質量%が更に好ましい。なお、第1のエポキシ化合物が、トリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含む場合（つまり要件2を満たす場合）、トリアジン骨格を有するフェノール化合物の含有量は、上記好適範囲の範囲外であってもよい。

第1のエポキシ化合物が、トリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含む場合（つまり要件2を満たす場合）、その含有量は、第1のエポキシ化合物の全質量に対して、0質量%超100質量%以下であり、30～100質量%が好ましく、60～100質量%がより好ましく、90～100質量%が更に好ましい。なお、フェノール化合物が、トリアジン骨格を有するフェノール化合物を含む場合（つまり要件1を満たす場合）、トリアジン骨格を有する第1のエポキシ化合物の含有量は、上記好適範囲の範囲外であってもよい。

い。

[0145] フェノール化合物と第1のエポキシ化合物との少なくとも一部がトリアジン骨格を有する化合物以外であることも好ましい。

フェノール化合物の全部又は一部がトリアジン骨格を有する化合物以外でもよく、第1のエポキシ化合物の全部又は一部がトリアジン骨格を有する化合物以外でもよい。

架橋密度を調整し本発明の効果をより向上させる点から、トリアジン骨格を有するフェノール化合物とトリアジン骨格を有する第1のエポキシ化合物との合計含有量は、全フェノール化合物と全第1のエポキシ化合物との合計含有量に対して、0質量%超100質量%未満が好ましく、1～90質量%がより好ましく、5～80質量%が更に好ましい。

[0146] また、組成物中、第1の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、5～90質量%が好ましく、10～50質量%がより好ましく、12～40質量%が更に好ましい。

第1のエポキシ化合物及び／又はフェノール化合物は、1種単独で使用してもよく2種以上使用してもよい。

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。

[0147] [第2のエポキシ化合物]

本発明の組成物は、第2のエポキシ化合物を含む。

第2のエポキシ化合物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である。

[0148] 第2のエポキシ化合物は、グラフト構造を有していても有していなくてもよい。また、第2のエポキシ化合物は、ブロック構造を有していても有していなくてもよい。第2のエポキシ化合物は、ブランチ構造、又は、スター構造であってもよい。

[0149] 第2のエポキシ化合物は、樹脂中に、アクリル系繰り返し単位を含んでおり、アクリル系繰り返し単位をしては、(メタ)アクリル酸に基づく繰り返し単位、(メタ)アクリル酸エステル類に基づく繰り返し単位、(メタ)アクリルアミド類に基づく繰り返し単位、(メタ)アクリル酸ハライドに基づく繰り返し単位、及び、シアノアクリル酸類に基づく繰り返し単位が挙げられる。中でも、アクリル系繰り返し単位をしては、(メタ)アクリル酸に基づく繰り返し単位、又は、(メタ)アクリル酸エステル類に基づく繰り返し単位が好ましい。

なお、本明細書において、特定のモノマーに基づく繰り返し単位、又は、特定のモノマーに由来する繰り返し単位等と表現する場合、その繰り返し単位は、その特定のモノマーが重合してなる構造の繰り返し単位であればよい。例えば、特定のモノマーとは異なるモノマーを用いて形成した繰り返し単位を修飾又は脱保護等して、特定のモノマーが重合してなる構造の繰り返し単位と同一構造の繰り返し単位とした場合、このようにして得られた繰り返し単位も、特定のモノマーに基づく繰り返し単位、又は、特定のモノマーに由来する繰り返し単位として表現する。

[0150] 第2のエポキシ化合物は側鎖にエポキシ基を有する。つまり、第2のエポキシ化合物は、エポキシ基を有する繰り返し単位を有する。

エポキシ基を有する繰り返し単位は、アクリル系繰り返し単位の一部又は全部であってもよく、後述のアクリル系繰り返し単位以外の繰り返し単位の一部又は全部であってもよく、少なくとも、アクリル系繰り返し単位の一部がエポキシ基を有する繰り返し単位であることが好ましい。

エポキシ基を有する繰り返し単位は、例えば、エポキシ基を有する(メタ)アクリル酸エステル類、及び／又は、エポキシ基を有する(メタ)アクリル酸アミド類に基づく繰り返し単位である。

[0151] エポキシ基を有する繰り返し単位以外のアクリル系繰り返し単位(エポキシ基を有さないアクリル系繰り返し単位)としては、例えば、以下のモノマーに基づく繰り返し単位が挙げられる。

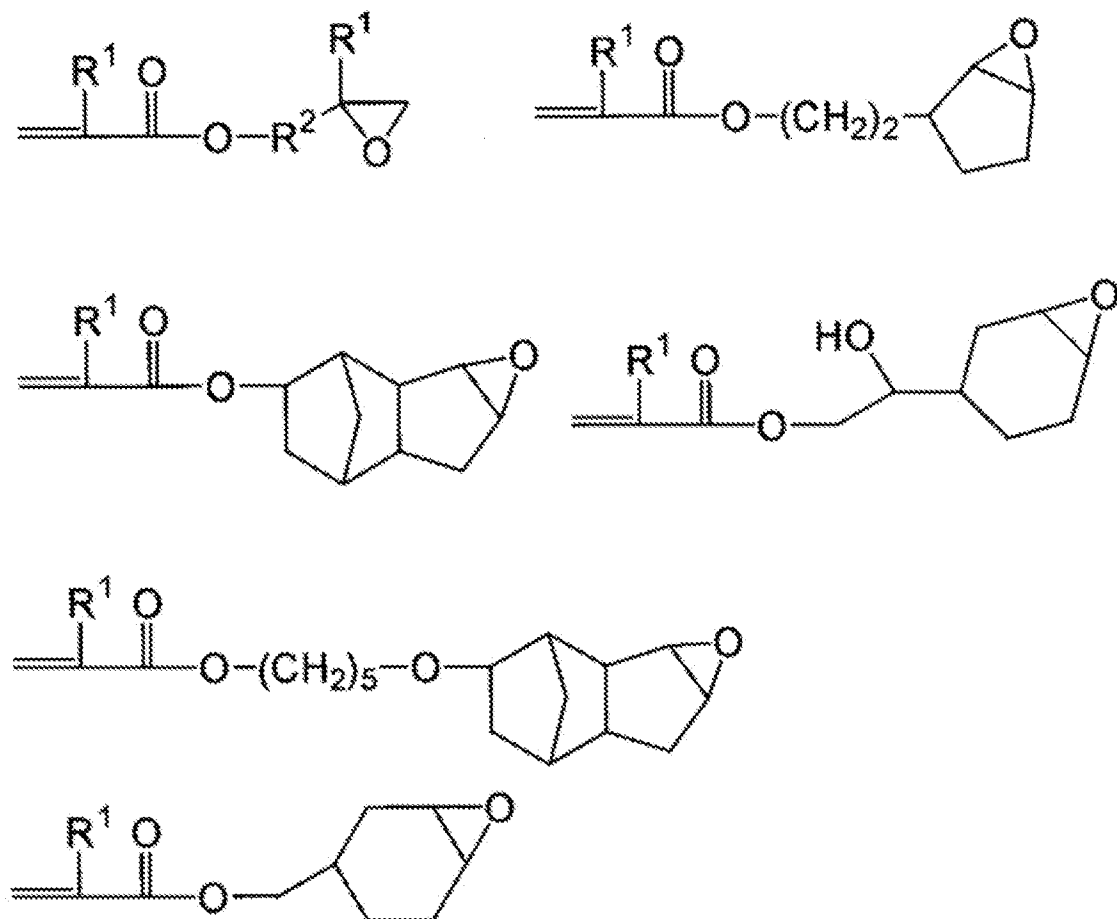
すなわち、上記モノマーとしては、例えば、（メタ）アクリル酸；（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸1-ヒドロキシ-2-プロピル、（メタ）アクリル酸2,3-ジヒドロキシプロピル、（メタ）アクリル酸ヒドロキシメチル、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸プロピル、（メタ）アクリル酸イソプロピル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メタ）アクリル酸ヘキシル、（メタ）アクリル酸2-エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸オクチル、（メタ）アクリル酸ラウリル、（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシブチル、（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル、（メタ）アクリル酸テトラヒドロフルフル、メトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、及び、（メタ）アクリル酸ベンジル等の（メタ）アクリル酸エステル類；アクリル酸アミド、メタクリルアミド、及び、N,N-ジメチルアクリル酸アミド等の（メタ）アクリル酸アミド類；（メタ）アクリル酸クロライド等のアクリル酸ハライド；シアノアクリル酸メチル、シアノアクリル酸エチル、シアノアクリル酸ブチル、及び、シアノアクリル酸オクチル等のシアノアクリル酸類、が挙げられる。

[0152] エポキシ基を有する繰り返し単位であるアクリル系繰り返し単位（エポキシ基を有するアクリル系繰り返し単位）としては、例えば、以下のモノマーに基づく繰り返し単位が挙げられる。

なお、以下において、 R^1 は、水素原子又はメチル基を表し、 R^2 は、炭素数1～8の2価の炭化水素基（アルキレン基等）を表す。なお、同一の構造式中に R^1 が複数存在する場合、それらは、同一でも異なってもよい。

[0153]

[化24]



[0154] 第2のエポキシ化合物は、アクリル系繰り返し単位以外の繰り返し単位を有していてもよい。アクリル系繰り返し単位以外の繰り返し単位としては、例えば、オレフィン（エチレン等）に基づく繰り返し単位、スチレン類（スチレン等）に基づく繰り返し単位、及び、無水マレイン酸に基づく繰り返し単位が挙げられる。

アクリル系繰り返し単位以外の繰り返し単位の一部又は全部が側鎖にエポキシ基を有していてもよい。

[0155] 第2のエポキシ化合物は、グラフト構造を有することも好ましい。

例えば、第2のエポキシ化合物は、エポキシ基を有する繰り返し単位を有する主鎖構造を有し、エポキシ基を有する繰り返し単位以外の繰り返し単位（オレフィンに基づく繰り返し単位、エポキシ基を有さないアクリル系繰

返し単位、及び／又は、エポキシ基を有さないスチレン類に基づく繰り返し単位等）からなる重合体である側鎖を有することも好ましい。

[0156] 第2のエポキシ化合物中、アクリル系繰り返し単位の含有量は、第2のエポキシ化合物の全質量に対して、1～100質量%が好ましく、1～50質量%がより好ましく、1～20質量%が更に好ましい。

第2のエポキシ化合物がアクリル系繰り返し単位以外の繰り返し単位を有する場合、その含有量は、第2のエポキシ化合物の全質量に対して、1～99質量%が好ましく、10～80質量%がより好ましく、20～70質量%が更に好ましい。

第2のエポキシ化合物中、エポキシ基を有する繰り返し単位（好ましくはエポキシ基を有するアクリル系繰り返し単位）の含有量は、第2のエポキシ化合物の全質量に対して、1～100質量%が好ましく、10～80質量%がより好ましく、20～70質量%が更に好ましい。

[0157] 第2のエポキシ化合物の重量平均分子量は、1000～5000000が好ましく、2000～2500000がより好ましく、7000～1000000が更に好ましい。

第2のエポキシ化合物のT_g（ガラス転移温度）は、-60～130℃が好ましく、-15～100℃がより好ましく、-5～80℃が更に好ましい。

[0158] 第2のエポキシ化合物のエポキシ基含有量は、0.05～20.0mmol/gが好ましく、0.1～10.0mmol/gがより好ましく、0.1～5.0mmol/gが更に好ましい。

[0159] 第2のエポキシ化合物としては、市販品を使用してもよい。市販品としては、例えば、LOTADER AXシリーズ（アルケマ社製）、モディパーA4100、モディパーA4300、モディパーA4400（日油社製）、マーブルーフGシリーズ（日油社製）、及び、テイサンレジンスG-P3（ナガセケムテックス社製）が挙げられる。

[0160] 第2のエポキシ化合物の含有量は、組成物の全固形分に対して、1～50

質量％が好ましく、2～35質量％がより好ましく、3～25質量％が更に好ましく、3～15質量％が特に好ましい。

第2のエポキシ化合物の含有量は、第1のエポキシ化合物とフェノール化合物との合計含有量100質量部に対して、1～200質量部が好ましく、5～170質量部がより好ましく、10～150質量部が更に好ましく、10～60質量部が更に好ましい。

第2のエポキシ化合物の含有量は、第1のエポキシ化合物の含有量100質量部に対して、5～500質量部が好ましく、10～400質量部がより好ましく、20～300質量部が更に好ましい。

第2のエポキシ化合物は、1種単独で使用してもよく2種以上使用してもよい。

[0161] 組成物において、フェノール化合物に含まれる水酸基（好ましくはフェノール性水酸基）の数に対する、第1のエポキシ化合物及び第2のエポキシ化合物に含まれる合計のエポキシ基の数との比（エポキシ基の数／水酸基の数）は、30／70～70／30が好ましく、40／60～60／40がより好ましく、45／55～55／45が更に好ましい。

つまり、組成物中の、フェノール化合物と第1のエポキシ化合物と第2のエポキシ化合物との含有量の比は、上記「エポキシ基の数／フェノール性水酸基の数」が上記範囲内になるような比であるのが好ましい。

[0162] また、組成物において、エポキシ化合物（第1のエポキシ化合物及び第2のエポキシ化合物）のエポキシ基と、活性水素（フェノール性水酸基に由来する活性水素であってもよく、その他の活性水素含有化合物の活性水素であってもよい）との当量比（エポキシ基の数／活性水素の数）は、30／70～70／30が好ましく、40／60～60／40がより好ましく、45／55～55／45が更に好ましい。

[0163] [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、無機窒化物及び／又は無機酸化物を含むのが好ましく、少なくとも無機窒化物（好ましくは窒化ホウ素）を含むのがより好ましく、無機窒化物（好ましくは窒化ホウ素）及び無機酸化物（好ましくは酸化アルミニウム）の両方を含むのが更に好ましい。

[0164] 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。

[0165] 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（アルミナ）、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。

[0166] 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 (CuN)、

u_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。

[0167] 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 $500\mu m$ 以下が好ましく、 $300\mu m$ 以下がより好ましく、 $200\mu m$ 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。

[0168] 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。

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い。無機窒化物と無機酸化物との両方を含んでもよい。

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く、平均粒径が $20\mu m$ 以上である凝集状窒化ホウ素を少なくとも含むのが更に

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、より好ましくは平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上である凝集状窒化ホウ素）の含有量は、無機物の全質量に対して $10\sim100$ 質量％が好ましく、 $40\sim100$ 質量％がより好ましく、 $60\sim100$ 質量％が更に好ましい。

上記無機酸化物としては、酸化アルミニウムが好ましい。

[0169] 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 $20\mu\text{m}$ 以上（好ましくは、 $30\mu\text{m}$ 以上）の無機物（好ましくは、無機窒化物又は無機酸化物、より好ましくは無機窒化物、更に好ましくは窒化ホウ素、特に好ましくは凝集状窒化ホウ素）を少なくとも含むのが好ましい。

[0170] 組成物が含む無機物（好ましくは無機窒化物又は無機酸化物、より好ましくは無機窒化物、更に好ましくは窒化ホウ素及び／又は窒化アルミニウム）は、実質的に平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上（好ましくは、 $30\mu\text{m}$ 以上）の無機物のみであるのも好ましい。無機物が、実質的に平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物のみであるとは、無機物の全質量に対して、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物の含有量が 99 質量％超であることを言う。

[0171] また、無機物は、平均粒径が異なる無機物をそれぞれ有するのも好ましく、例えば、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物である無機物Xと、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 未満の無機物である無機物Yとの両方を含むのも好ましい。

上記無機物Xの平均粒径は、 $20\sim300\mu\text{m}$ が好ましく、 $30\sim200\mu\text{m}$ がより好ましい。上記無機物Yの平均粒径は、 1nm 以上 $20\mu\text{m}$ 未満が好ましく、 10nm 以上 $15\mu\text{m}$ 以下がより好ましい。

無機物Xは、無機窒化物又は無機酸化物が好ましく、無機窒化物がより好ましく、窒化ホウ素が更に好ましく、凝集状窒化ホウ素が特に好ましい。

無機物Yは、無機窒化物又は無機酸化物が好ましく、窒化ホウ素又は酸化アルミニウムがより好ましい。

無機物X及び無機物Yは、それぞれ、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

無機物中、無機物Xの含有量と無機物Yの含有量との質量比（無機物Xの含有量／無機物Yの含有量）は、50/50～99/1が好ましく、60/40～95/5が更に好ましい。

[0172] 無機物（特に窒化ホウ素）は、表面処理されていてもよい。なお表面処理とは、後述する表面修飾剤を用いた表面修飾とは異なる処理を意図する。

このような処理を行うことで、無機物の表面に官能基が導入され、無機物がフェノール化合物、エポキシ化合物、及び／又は、後述の表面修飾剤等と相互作用しやすくなり、形成される熱伝導材料の熱伝導性及びピール強度等がより改善すると考えられている。

表面処理としては、例えば、プラズマ処理（真空プラズマ処理、大気圧プラズマ処理、及び、アクアプラズマ処理等）、紫外線照射処理、コロナ処理、電子線照射処理、オゾン処理、焼成処理、火炎処理、及び、酸化剤処理等が挙げられる。上記酸化剤処理としては、酸性条件で行ってもよいし塩基性条件（pH12以上等）で行ってもよい。

[0173] 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、20質量%以上が好ましく、50質量%以上がより好ましく、60質量%以上が更に好ましい。上限は100質量%未満であり、95質量%以下が好ましく、80質量%未満がより好ましい。

[0174] [硬化促進剤]

組成物は、更に、硬化促進剤を含むことも好ましい。

硬化促進剤としては、例えば、トリスオルトトリルホスフィン、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2012-067225号公報の段落0052に記載の化合物が挙げられる。また、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート（TPP-K）、テトラフェニルホスホニウムテトラ-p-トリルボレート（TPP-MK）、テトラ-n-ブチルホスホニウムラウレート（TBP-LA）、ビス（テトラ-n-ブチルホスホニウム）ピロメリテート、及び、テトラフェニルホスホニウムのビス（ナフタレン-2,3-ジオキシ）フェニルシリケート付加物のような

四級ホスホニウム系化合物（ホスホニウム塩）等のオニウム塩系硬化促進剤も挙げられる。

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）、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール（商品名；2PZ-CN）、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；2MZA-PW）、及び、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；2MAOK-PW）等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）。更に

、トリアリールホスフィン系の硬化促進剤として特開 2004-043405 号公報の段落 0052 に記載の化合物も挙げられる。トリアリールホスフィンにトリフェニルボランが付加したリン系硬化促進剤として、特開 2014-005382 号公報の段落 0024 に記載の化合物も挙げられる。

中でも、硬化促進剤は、リン原子を含む化合物を含むことが好ましく、ホスホニウム塩を含むことも好ましい。硬化促進剤は、リン原子を含む化合物又はホスホニウム塩そのものであってもよい。リン原子を含む化合物又はホスホニウム塩の含有量は、硬化促進剤の全質量に対して、10～100質量％が好ましく、50～100質量％がより好ましく、80～100質量％が更に好ましい。

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、組成物の全固形分に対して、0.002質量％以上が好ましく、0.02質量％以上がより好ましく、0.07質量％以上が更に好ましい。硬化促進剤の含有量は、組成物の全固形分に対して、5質量％以下が好ましく、2質量％以下がより好ましく、1質量％以下が更に好ましい。

硬化促進剤の含有量は、全エポキシ化合物（第1のエポキシ化合物及び第2のエポキシ化合物の合計）に対して、0.01質量％以上が好ましく、0.10質量％以上がより好ましく、0.55質量％以上が更に好ましい。硬化促進剤の含有量は、全エポキシ化合物に対して、40質量％以下が好ましく、12質量％以下がより好ましく、10質量％以下が更に好ましく、5質量％以下が特に好ましい。

[0175] 〔表面修飾剤〕

本発明の組成物は、上述の成分とは異なる成分として、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。

[0176] 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。

[0177] 上記シランカップリング剤は、例えば、Si原子に直接結合した加水分解性基を有する化合物である。

上記加水分解性基としては、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～10）、及び、塩素原子等のハロゲン原子が挙げられる。

シランカップリング剤が有する、Si原子に直接結合した加水分解性基の数は、1以上が好ましく、2以上がより好ましく、3以上が更により好ましい。上記数に上限はなく、例えば、10000である。

シランカップリング剤は、反応性基を有することも好ましい。

上記反応性基の具体例としては、エポキシ基、オキセタニル基、ビニル基

、（メタ）クリル基、スチリル基、アミノ基、イソシアネート基、メルカプト基、及び、酸無水物基が挙げられる。

シランカップリング剤が有する、反応性基の数は、１以上が好ましく、２以上がより好ましく、３以上が更により好ましい。上記数に上限はなく、例えば、１００００である。

シランカップリング剤としては、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。

[0178] 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、組成物の全固形分に対して、０．００５～５質量％が好ましく、０．０５～３質量％がより好ましい。

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。

[0179] 〔イオン捕捉剤〕

本発明の組成物は、イオン捕捉剤を含んでいてもよい。

イオン捕捉剤は、組成物中又は組成物を用いて形成される熱伝導材料中においてイオン性の不純物を吸着する。これにより、組成物中又熱伝導材料が吸湿した場合でも、熱伝導材料の絶縁信頼性を良好に維持できる。

イオン捕捉剤としては、特に制限されず公知のものを使用できる。イオン捕捉剤としては、例えば、イオン交換により陽イオンを捕捉する陽イオン吸着剤、イオン交換により陰イオンを捕捉する陰イオン吸着剤、及び、イオン交換により陽イオンと陰イオンの両方を捕捉する両イオン捕捉剤などの無機イオン吸着剤；トリアジンチオール化合物；トリアジンアミン化合物；ベン

ゾイミダゾール化合物；ベンゾトリアゾール化合物；アミノトリアゾール化合物；並びに、ビスフェノール系還元剤が挙げられる。

なお、上述の無機物の全部又は一部が、イオン捕捉剤としての機能を兼ねていてもよい。

[0180] 無機イオン吸着剤としては、アンチモン、ビスマス、ジルコニウム、チタン、スズ、マグネシウム、及び、アルミニウムからなる群から選択される1種又は2種以上の、酸化物、酸化水和物、及び、水酸化物が挙げられる。

中でも、ビスマス、ジルコニウム、マグネシウム、及び、アルミニウムからなる群から選択される2種以上の、酸化物、酸化水和物、又は、水酸化物が好ましく、マグネシウム、アルミニウム、及び、ジルコニウムの3成分系酸化物、ビスマス及びジルコニウムの2成分系酸化水和物、並びに、マグネシウム及びアルミニウムを含む水酸化物であるハイドロタルサイトがより好ましく、ハイドロタルサイトが更に好ましい。

[0181] トリアジンチオール化合物としては、例えば、2-ジブチルアミノ-4,6-ジメルカプト-s-トリアジンが挙げられる。

ベンゾイミダゾール化合物としては、例えば、ベンゾイミダゾールが挙げられる。

ベンゾトリアゾール化合物としては、例えば、1H-ベンゾトリアゾール、カルボキシベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、及び、2,2'-メチレンビス[6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-tert-オクチルフェノール]が挙げられる。

アミノトリアゾール化合物としては、例えば、3-アミノ-1,2,4-トリアゾール、及び、3,5-ジアミノ-1,2,4-トリアゾールが挙げられる。

ビスフェノール系還元剤としては、例えば、2,2'-メチレンビス-(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)、及び、4,4'-ブチリデンビ

スー（6-tert-ブチル-3-メチルフェノール）が挙げられる。

[0182] イオン捕捉剤は市販品を用いてもよく、例えば、DHF-4A、DHT-4A、DHT-4A-2、DHT-4C、キョーワード500、KW-2000、及び、KW-2100（商品名、協和化学社製）；IXE-100、IXE-500、IXE-600、IXE-700F、IXE-800、IXE-6107、IXEPLAS-A1、IXEPLAS-A2、及び、IXEPLAS-B1（商品名、東亜合成社製）；ジスネットDB（商品名、三協製薬社製）；VD-3、及び、VD-5（商品名、四国化成社製）；並びに、ヨシノックスBB（商品名、吉富製薬社製）が挙げられる。

[0183] 組成物がイオン捕捉剤を含む場合、イオン捕捉剤の含有量は、組成物の全固形分に対して、例えば、0.01～10質量%である。イオン捕捉剤としての機能を兼ねる無機物が含まれている場合、そのようなイオン捕捉剤の含有量は、この含有量の範囲よりも多いことも好ましい。

イオン捕捉剤は、1種単独で使用してもよく2種以上使用してもよい。

[0184] [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、30～80質量%とする量がより好ましく、50～80質量%とする量が更に好ましい。

溶媒の含有量は、組成物の全質量に対して、5～80質量%が好ましく、15～70質量%がより好ましく、20～50質量%が更に好ましい。

[0185] [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。

[0186] 〔組成物の硬化方法〕

本発明の組成物は熱伝導材料形成用組成物であるのが好ましい。

本発明の組成物を硬化処理して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。

[0187] 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。また、組成物を半硬化状態にした後、更に硬化処理を実施して、硬化を完全にしてもよい。

組成物を半硬化状態にするための硬化処理（「半硬化処理」ともいう）と

、硬化を完全にするための硬化処理（「本硬化処理」ともいう）とを、別々の工程に分けて行ってもよい。

[0188] 例えば、半硬化処理では、基材上に組成物を塗布して塗膜を形成した後、そのまま無加圧で基材上の塗膜を加熱等して半硬化状態の熱伝導材料（「半硬化膜」又は「半硬化シート」ともいう）としてもよいし、プレス加工を併用しながら基材上の塗膜を加熱等して半硬化膜としてもよい。プレス加工をする場合、プレス加工は、上記加熱等の、前後に実施されてもよいし、最中に実施されてもよい。半硬化処理においてプレス加工を実施すると、得られる半硬化膜の膜厚の調整、及び／又は、半硬化膜中のボイド量の低減をしやすい場合がある。

半硬化処理において、別々の基材上に形成した塗膜同士を積層させた状態で半硬化処理を行ってもよいし、塗膜同士を積層させずに半硬化処理を行ってもよい。半硬化処理は、組成物から形成された塗膜と、更に、上記塗膜以外の材料とを接触させた状態で実施してもよい。

[0189] 得られた、半硬化膜を、そのまま熱伝導材料として使用してもよいし、半硬化膜に更に本硬化処理を施してから完全に硬化した熱伝導材料として使用してもよい。

本硬化処理においては、半硬化膜を、そのまま無加圧で加熱等してもよいし、プレス加工を行ってから、又は、行いながら加熱等してもよい。この際、本硬化処理において、別々の半硬化膜同士を積層させた状態で本硬化処理を行ってもよいし、半硬化膜同士を積層させずに本硬化処理を行ってもよい。

また、本硬化処理は、半硬化膜を、使用されるデバイス等に接触するように配置した状態で実施してもよい。本硬化処理によって、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。

[0190] 半硬化処理及び／又は本硬化処理等における硬化処理の際に実施し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。

半硬化処理及び／又は本硬化処理等における硬化処理の際に、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。

[0191] 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）も参照できる。

[0192] 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、本発明の組成物を用いて得られる熱伝導材料は、熱伝導シートであるのも好ましい。

また、本発明の組成物を用いて得られる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。

[0193] 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。

[0194] [熱伝導材料の用途]

本発明の組成物を用いて得られる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。上記熱伝導層は、後述する熱伝導性多層シート含む熱伝導層であってもよい。

本発明の組成物を用いて得られる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、本発明の組成物を用いて得られる熱伝導材料は、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。

[0195] 本発明の組成物を用いて得られる熱伝導材料は、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、熱伝導材料（熱伝導シート等）は、本組成物から形成された層の他の、支持体（被着材）と組み合わせられていてもよい。

支持体（被着材）としては、例えば、プラスチック材料、金属材料、又は、ガラスが挙げられる。プラスチック材料としては、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。金属材料としては、例えば、銅及びアルミが挙げられる。

支持体（被着材）は、シート状であることも好ましい。

シート状の熱伝導材料（熱伝導シート）の膜厚は、 $100 \sim 300 \mu\text{m}$ が好ましく、 $150 \sim 250 \mu\text{m}$ がより好ましい。

[0196] また、熱伝導材料（好ましくは熱伝導シート）に対して、接着剤層及び／又は粘着剤層を組み合わせてもよい。

このような接着剤層及び／又は粘着剤層を介して、熱伝導材料をデバイス

のような熱を移動させるべき対象物と接合することで、熱伝導材料と対象物との、より強固な接合を実現できる。本発明の組成物から形成される熱伝導材料は、接着剤層及び粘着剤層との密着性も良好で、熱伝導材料と接着剤層又は粘着剤層との界面における剥離も抑制できる。

例えば、熱伝導性多層シートとして、熱伝導シートと、上記熱伝導シートの片面又は両面に設けられた、接着剤層又は粘着剤層と、を有する、熱伝導性多層シートを作製してもよい。

なお、上記熱伝導シートの片面又は両面には、それぞれ接着剤層及び粘着剤層の一方が設けられていてもよく、両方が設けられていてもよい。上記熱伝導シートの一面に接着剤層が設けられていて、他の面に粘着剤層が設けられていてもよい。また、上記熱伝導シートの片面又は両面には、接着剤層及び／又は粘着剤層が部分的に設けられていてもよく、全面的に設けられていてもよい。

なお、上述の通り、本発明において熱伝導シート等の熱伝導材料は半硬化状態（半硬化膜）であってもよく、熱伝導性多層シートにおける熱伝導シートが半硬化状態であってもよい。熱伝導性多層シートにおける接着剤層は硬化していてもよく半硬化状態であってもよく未硬化状態であってもよい。

実施例

[0197] 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。

[0198] [組成物の調製及び評価]

[各種成分]

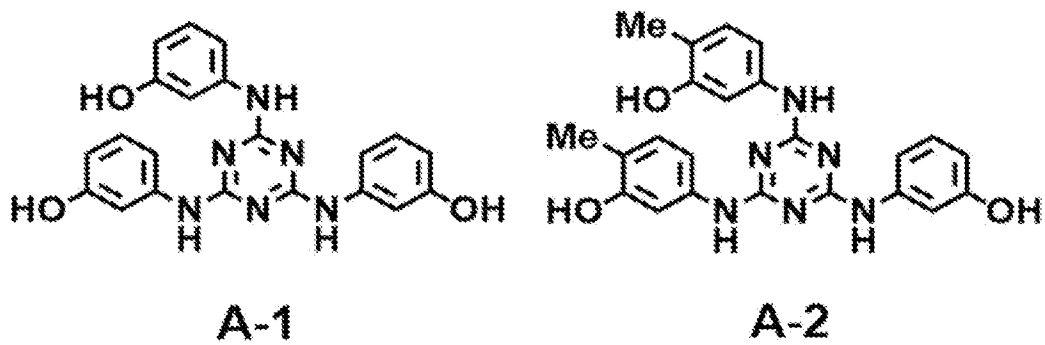
以下に、実施例及び比較例で使用了各種成分を示す。

[0199] <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。

[0200]

[化25]



[0201] ・ A-3 : MEH-7500 (明和化成製、トリアジン骨格を有さないフェノール化合物)

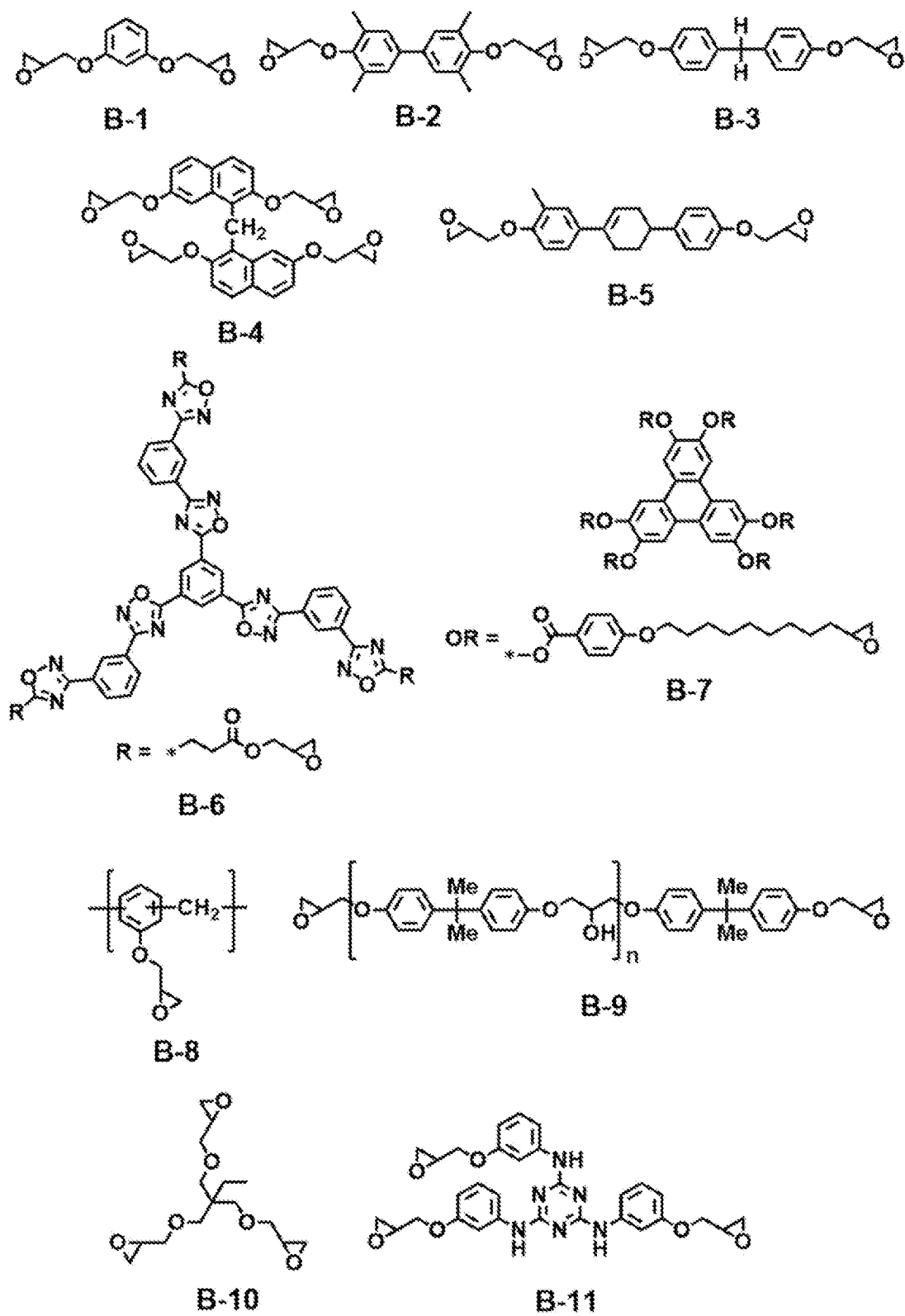
[0202] <第1のエポキシ化合物>

以下に、実施例及び比較例で使用了エポキシ化合物を示す。

B-8の重量平均分子量は3000であり、B-9のnの値の平均値は10である。

[0203]

[化26]



[0204] <第2のエポキシ化合物>

・LOTADER AX: LOTADER AX8900/エチレンーアク

リル酸エステルーグリシジルメタクリレート共重合体／アルケマ社製

・ A 4 1 0 0 : モディパー A 4 1 0 0 / 主鎖にエチレンーメタクリル酸グリシジル共重合体骨格を有し、側鎖にポリスチレン骨格を有する樹脂／ガラス転移点 0℃／日油社製

・ S G - P 3 : テイサンレジン S G - P 3 / 重量平均分子量 8 5 0 0 0 0 / ガラス転移点 1 2℃／ナガセケムテックス社製

・ G 2 0 5 0 M : マープルーフ G 2 0 5 0 M / 重量平均分子量 2 0 0 0 0 0 / ガラス転移点 7 4℃／日油社製

・ ポリマー A : 重量平均分子量 1 3 0 0 0 0 / メタアクリル酸メチルに基づく繰り返し単位、2-エチルヘキシルアクリレートに基づく繰り返し単位、グリシジルメタクリレートに基づく繰り返し単位を、それぞれ順に、37質量%、33質量%、30質量%含む／ガラス転移点 1 0℃

[0205] <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。

- ・ H P - 4 0 : 凝集状窒化ホウ素、平均粒径 : 4 0 μ m、水島合金鉄社製
- ・ A A - 3 : 酸化アルミニウム、平均粒径 : 3 μ m、住友化学社製
- ・ A A - 0 4 : 酸化アルミニウム、平均粒径 : 0. 4 μ m、住友化学社製

[0206] <硬化促進剤>

- ・ C - 1 : T P P - M K (テトラフェニルホスホニウムテトラ-p-トリルボラート)
- ・ C - 2 : トリスオルトトリルホスフィン
- ・ C - 3 : トリフェニルホスフィン
- ・ C - 4 : 2 P H Z - P W (2-フェニルー4, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール)

[0207] <溶媒>

溶媒として、シクロペンタノンを使用した。

[0208] <表面修飾剤>

表面修飾剤として、K B M - 5 7 3 (N-フェニルー3-アミノプロピル

トリメトキシシラン、信越シリコン社製）を使用した。

[0209] 〔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（第 1 のエポキシ化合物及び第 2 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）で配合した混合体を調製した。

この際、最終的に得られる組成物において、第 2 のエポキシ化合物の含有量、及び、フェノール化合物と第 1 のエポキシ化合物の合計含有量が下記表 1 に示す通りの含有量になるように調整した。

（例えば、実施例 1 の組成物においては、第 2 のエポキシ化合物の含有量が組成物の全固形分に対して 5 質量%で、フェノール化合物と第 1 のエポキシ化合物の合計含有量が組成物の全固形分に対して 29.9 質量%で、かつ、第 1 のエポキシ化合物と第 2 のエポキシ化合物とフェノール化合物とが全体として当量になるような配合とした）

また、溶媒との混合状態で流通する原料を使用する場合は、その原料の固形分の含有量が下記表 1 に示す通りの含有量になるように調整した。

（例えば、実施例 2 1 の組成物において使用する S G - P 3 は、第 2 のエポキシ化合物（固形分）が溶媒に分散した状態で流通するが、実施例 2 1 の組成物では、第 2 のエポキシ化合物（固形分）そのものの含有量が組成物の全固形分に対して 5 質量%になるように調整した）

[0210] 上記混合体、溶媒、所望に応じて使用する表面修飾剤、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（T H I N K Y 社製、あわとり練太郎 A R E - 3 1 0）で 5 分間処理して、各実施例又は比較例の組成物（硬化性樹脂組成物）を得た。

[0211] 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。

組成物中、第1のエポキシ化合物とフェノール化合物との合計含有量（上記混合体の含有量）は、組成物の全固形分に対して、表1中の「合計量（質量%）」欄に示す量になるようにした。

組成物中、硬化促進剤、表面修飾剤、無機窒化物、無機酸化物、及び、第2のエポキシ化合物の量は、それぞれ、組成物の全固形分に対して、表1中の各マスにおけるカッコ内に示す量（質量%）になるようにした。

[0212] [評価]

[半硬化シート（半硬化膜）の作製]

マイクロメーター付きアプリケーターを用いて、離型処理したポリエステルフィルム（PET756501リンテック社製、膜厚75 μ m）の離型面上に、調製した組成物を均一に塗布し、120℃で4分間乾燥して半硬化シート（半硬化膜）を作製した。

なお、組成物の塗布量は、後述の方法で得られる銅箔付きアルミベース基板中の熱伝導シートの平均膜厚は120 μ mになるように調整した。

[0213] [ピール強度の評価]

ポリエステルフィルム付き半硬化シートからポリエステルフィルムを剥がし、得られた半硬化シートを20mm×60mmの短冊状に切り出し、被着体である電解銅箔（20mm×100mm、厚み：35 μ m）とアルミニウム板（30mm×60mm、厚み：1mm）の間に挟んだ。得られた積層体を、空気下で熱プレス処理（熱板温度180℃、圧力20MPaで5分間処理した後、熱板温度180℃、常圧下で90分間処理）することにより、熱伝導シートと被着体とが一体化した銅箔付きアルミベース基板を得た。

得られたサンプルの銅箔ピール強度を、デジタルフォースゲージ（ZTS-200N、株式会社イマダ製）と90度剥離試験治具（P90-200N-BB、株式会社イマダ製）を用いて、JIS C 6481に記載の常態での引きはがし強さの測定方法に従って測定した。ピール強度試験における銅箔の剥離は、銅箔付きアルミベース基板に対して90°の角度で、50mm/分の剥離速度で実施した。

[0214] 測定された引きはがし強さ（ピール強度）を下記基準に照らして区分し、評価した。

A + : 6 N / c m 以上

A : 5 N / c m 以上 6 N / c m 未満

B : 4 N / c m 以上 5 N / c m 未満

C : 4 N / c m 未満

[0215] [結果]

以下、表 1 を示す。

表 1 には、各実施例又は比較例における組成物の固形分の配合と試験結果とを示す。

[0216]

[表1]

表1	組成物 組成								性能 ピール強度 [N/cm]
	フェノール化合物/エポキシ化合物			硬化促進剤 (質量%)	表面修飾剤 (質量%)	無機物		樹脂	
	フェノール化合物	第1のエポキシ化合物	合計量 (質量%)			無機窒化物 (質量%)	無機酸化物 (質量%)		
実施例1	A-1	B-1	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	LOTADER AX (5)	A
実施例2	A-2	B-1	16.0	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	LOTADER AX (5)	A+
実施例3	A-2	B-1	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	LOTADER AX (5)	A
実施例4	A-2	B-2	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例5	A-2	B-3	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例6	A-2	B-4	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	B
実施例7	A-2	B-5	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	B
実施例8	A-2	B-6	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	B
実施例9	A-2	B-7	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	B
実施例10	A-2	B-8	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例11	A-2	B-9	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例12	A-2	B-10	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例13	A-2	B-11	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	B
実施例14	A-2	B-3	29.9	C-2 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例15	A-2	B-3	29.9	C-3 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例16	A-2	B-3	29.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
実施例17	A-2	B-3	24.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (10)	A
実施例18	A-2	B-3	29.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	SG-P3 (5)	A
実施例19	A-2	B-3	29.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	G2050M (5)	A
実施例20	A-2	B-3	14.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (80)	—	SG-P3 (5)	B
実施例21	A-2	B-3	14.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (80)	—	G2050M (5)	B
実施例22	A-2	B-3	29.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (67)	—	ホリ7-A (3)	A
実施例23	A-3	B-11	29.9	C-4 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	SG-P3 (5)	A
実施例24	A-2	B-1	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	A4100 (5)	A
比較例1	A-2	B-1	21.0	C-1 (0.3)	KBM-573 (0.1)	HP-40 (52.6)	AA-3/AA-04 (18/8)	—	C
比較例2	A-2	B-1	34.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	—	C
比較例3	A-3	B-1	34.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	—	C
比較例4	A-3	B-1	29.9	C-1 (0.1)	—	HP-40 (65)	—	SG-P3 (5)	C

[0217] 表に示す結果より、本発明の組成物を使用すれば本発明の効果を実現できることが確認された。

[0218] 中でも、無機物が、窒化ホウ素と共に無機酸化物を含む場合、本発明の効

果がより優れることが確認された（実施例2の結果等を参照）。

[0219] 無機物が、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物と、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 未満の無機物との両方を含む場合、本発明の効果がより優れることが確認された（実施例2の結果等を参照）。

[0220] 第1のエポキシ化合物が、ポリヒドロキシベンゼン型エポキシ化合物、ビフェニル骨格を有するエポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、フェノキシ樹脂、又は、一般式（E2）で表されるエポキシ化合物を使用する場合、本発明の効果がより優れることが確認された（実施例4～13、24の結果の比較等を参照）。

[0221] 組成物の全固形分に対する無機物の含有量が80質量%未満である場合、本発明の効果がより優れることが確認された（実施例18～21の結果の比較等を参照）。

[0222] [熱伝導率の確認]

また、本発明の組成物を用いて得られる熱伝導材料（熱伝導シート）について、下記に示す方法で熱伝導率を測定したところ、いずれの実施例の組成物を用いて作製した熱伝導材料（熱伝導シート）でも、熱伝導率が $15\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ 以上であることが確認された。これにより、本発明の組成物を用いて得られる熱伝導材料が良好な熱伝導性を示すことが確認された。

[0223] [測定手順]

<熱伝導シートの作製>

上述の方法で得られた半硬化シートに離型処理したポリエステルフィルムを被せ、空気下で熱プレス（熱板温度 180°C 、圧力 20MPa で5分間処理）した。その後、常圧下で 180°C で90分加熱処理して樹脂シートを得た。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 $120\mu\text{m}$ の熱伝導性シート（熱伝導材料）を得た。

[0224] <評価方法>

得られた熱伝導シートについて、以下の方法で熱伝導率を測定した。

(1) NETZSCH社製の「LFA467」を用いて、レーザーフラッシュ

ユ法で熱伝導性シートの厚み方向の熱拡散率を測定した。

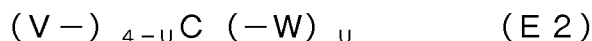
(2) メトラー・トレド社製の天秤「XS204」を用いて、熱伝導性シートの比重をアルキメデス法（「固体比重測定キット」使用）で測定した。

(3) セイコーインスツル社製の「DSC320/6200」を用い、10℃/分の昇温条件の下、25℃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。

請求の範囲

- [請求項1] フェノール化合物、第1のエポキシ化合物、第2のエポキシ化合物、及び、無機物を含む、硬化性樹脂組成物であって、
- 前記フェノール化合物がトリアジン骨格を有するフェノール化合物を含むこと、及び、前記第1のエポキシ化合物がトリアジン骨格を有するエポキシ化合物を含むこと、の少なくとも一方の要件を満たし、
- 前記第2のエポキシ化合物は、側鎖にエポキシ基を有するアクリル樹脂である、硬化性樹脂組成物。
- [請求項2] 前記無機物が、窒化ホウ素を含む、請求項1に記載の硬化性樹脂組成物。
- [請求項3] 前記無機物が、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上である凝集状窒化ホウ素を含む、請求項1又は2に記載の硬化性樹脂組成物。
- [請求項4] 前記無機物が、無機酸化物を含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の硬化性樹脂組成物。
- [請求項5] 前記無機物が、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の無機物である無機物Xと、平均粒径が $20\mu\text{m}$ 未満の無機物である無機物Yとの両方を含む、請求項1～4のいずれか1項に記載の硬化性樹脂組成物。
- [請求項6] 前記第1のエポキシ化合物が、ポリヒドロキシベンゼン型エポキシ化合物、ビフェニル骨格を有するエポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、フェノキシ樹脂、及び、一般式(E2)で表されるエポキシ化合物からなる群から選択される1種以上のエポキシ化合物を含む、請求項1～5のいずれか1項に記載の硬化性樹脂組成物。



一般式(E2)中、Cは、炭素原子を表す。

Uは、3又は4の整数を表す。

Vは、エポキシ基を有さない置換基又は水素原子を表す。

Wは、エポキシ含有基を表す。

前記エポキシ含有基は、エポキシ基そのものである基、又は、エポキシ基を一部分に含む一価の基である。

一般式（E 2）中に複数存在するWは、それぞれ同一でも異なってもよい。

[請求項7] 更に、硬化促進剤を含む、請求項1～6のいずれか1項に記載の硬化性樹脂組成物。

[請求項8] 請求項1～7のいずれか1項に記載の硬化性樹脂組成物を硬化して得られる、熱伝導材料。

[請求項9] 請求項8に記載の熱伝導材料からなる、熱伝導シート。

[請求項10] デバイスと、前記デバイス上に配置された請求項9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/JP2021/033173

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G 59/62(2006.01)i; *H01L 23/36*(2006.01)i; *H01L 23/373*(2006.01)i; *C08L 33/14*(2006.01)i; *C08L 61/34*(2006.01)i; *C08L 63/00*(2006.01)i; *C08J 5/12*(2006.01)i; *C08J 5/18*(2006.01)i; *C09K 5/14*(2006.01)i; *C08K 3/22*(2006.01)i; *C08K 3/38*(2006.01)i

FI: C08L63/00 C; C08L63/00 B; C08K3/38; C08K3/22; C08L63/00 A; C08L33/14; C08L61/34; C08G59/62; C09K5/14 E; H01L23/36 D; H01L23/36 M; C08J5/18 CFC; C08J5/12 CEZ

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)

C08G59/62; H01L23/36; H01L23/373; C08L33/14; C08L61/34; C08L63/00; C08J5/12; C08J5/18; C09K5/14; C08K3/22; C08K3/38

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 1971-2021
Registered utility model specifications of Japan 1996-2021
Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

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.
Y	WO 2020/153205 A1 (FUJIFILM CORP.) 30 July 2020 (2020-07-30) claims, examples	1-10
Y	WO 2020/158259 A1 (FUJIFILM CORP.) 06 August 2020 (2020-08-06) claims, examples	1-10
Y	JP 2009-227947 A (MITSUBISHI ELECTRIC CORP.) 08 October 2009 (2009-10-08) claims, examples	1-10
Y	JP 2008-277759 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 13 November 2008 (2008-11-13) claims, paragraphs [0002], [0009]-[0026], examples	1-10
Y	JP 2015-61924 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 02 April 2015 (2015-04-02) claims, paragraphs [0005], [0016]-[0022], examples	1-10

☒ 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

27 October 2021

Date of mailing of the international search report

16 November 2021

Name and mailing address of the ISA/JP

**Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan**

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/033173**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/195902 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 16 November 2017 (2017-11-16) claims, examples	1, 2, 4, 6, 7
X	JP 2004-214288 A (LINTEC CORP.) 29 July 2004 (2004-07-29) claims, examples	1, 4, 6, 7
X	WO 2013/031844 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 07 March 2013 (2013-03-07) claims, examples	1, 4, 6, 7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/033173

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2020/153205	A1	30 July 2020	(Family: none)	
WO	2020/158259	A1	06 August 2020	(Family: none)	
JP	2009-227947	A	08 October 2009	(Family: none)	
JP	2008-277759	A	13 November 2008	JP	2008-277768 A
JP	2015-61924	A	02 April 2015	(Family: none)	
WO	2017/195902	A1	16 November 2017	US	2019/0161586 A1
				claims, examples	
				EP	3456779 A1
				CN	109153837 A
				KR	10-2019-0008526 A
				TW	201817797 A
JP	2004-214288	A	29 July 2004	(Family: none)	
WO	2013/031844	A1	07 March 2013	CN	103781860 A
				KR	10-2014-0068946 A
				TW	201319180 A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/62(2006.01)i; H01L 23/36(2006.01)i; H01L 23/373(2006.01)i; C08L 33/14(2006.01)i; C08L 61/34(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08J 5/12(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; C09K 5/14(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 3/38(2006.01)i FI: C08L63/00 C; C08L63/00 B; C08K3/38; C08K3/22; C08L63/00 A; C08L33/14; C08L61/34; C08G59/62; C09K5/14 E; H01L23/36 D; H01L23/36 M; C08J5/18 CFC; C08J5/12 CEZ																							
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）） C08G59/62; H01L23/36; H01L23/373; C08L33/14; C08L61/34; C08L63/00; C08J5/12; C08J5/18; C09K5/14; C08K3/22; C08K3/38 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1 9 2 2 - 1 9 9 6 年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1 9 7 1 - 2 0 2 1 年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1 9 9 6 - 2 0 2 1 年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1 9 9 4 - 2 0 2 1 年</td> </tr> </table> 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)			日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年	日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 2 1 年	日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 2 1 年	日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 2 1 年													
日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年																						
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 2 1 年																						
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 2 1 年																						
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 2 1 年																						
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2020/153205 A1（富士フイルム株式会社）30.07.2020（2020 - 07 - 30） 請求の範囲，実施例</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2020/158259 A1（富士フイルム株式会社）06.08.2020（2020 - 08 - 06） 請求の範囲，実施例</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2009-227947 A（三菱電機株式会社）08.10.2009（2009 - 10 - 08） 特許請求の範囲，実施例</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2008-277759 A（積水化学工業株式会社）13.11.2008（2008 - 11 - 13） 特許請求の範囲，[0002][0009]-[0026]，実施例</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2015-61924 A（日立化成株式会社）02.04.2015（2015 - 04 - 02） 特許請求の範囲，[0005][0016]-[0022]，実施例</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>WO 2017/195902 A1（日立化成株式会社）16.11.2017（2017 - 11 - 16） 請求の範囲，実施例</td> <td>1, 2, 4, 6, 7</td> </tr> </tbody> </table>			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	Y	WO 2020/153205 A1（富士フイルム株式会社）30.07.2020（2020 - 07 - 30） 請求の範囲，実施例	1-10	Y	WO 2020/158259 A1（富士フイルム株式会社）06.08.2020（2020 - 08 - 06） 請求の範囲，実施例	1-10	Y	JP 2009-227947 A（三菱電機株式会社）08.10.2009（2009 - 10 - 08） 特許請求の範囲，実施例	1-10	Y	JP 2008-277759 A（積水化学工業株式会社）13.11.2008（2008 - 11 - 13） 特許請求の範囲，[0002][0009]-[0026]，実施例	1-10	Y	JP 2015-61924 A（日立化成株式会社）02.04.2015（2015 - 04 - 02） 特許請求の範囲，[0005][0016]-[0022]，実施例	1-10	X	WO 2017/195902 A1（日立化成株式会社）16.11.2017（2017 - 11 - 16） 請求の範囲，実施例	1, 2, 4, 6, 7
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																					
Y	WO 2020/153205 A1（富士フイルム株式会社）30.07.2020（2020 - 07 - 30） 請求の範囲，実施例	1-10																					
Y	WO 2020/158259 A1（富士フイルム株式会社）06.08.2020（2020 - 08 - 06） 請求の範囲，実施例	1-10																					
Y	JP 2009-227947 A（三菱電機株式会社）08.10.2009（2009 - 10 - 08） 特許請求の範囲，実施例	1-10																					
Y	JP 2008-277759 A（積水化学工業株式会社）13.11.2008（2008 - 11 - 13） 特許請求の範囲，[0002][0009]-[0026]，実施例	1-10																					
Y	JP 2015-61924 A（日立化成株式会社）02.04.2015（2015 - 04 - 02） 特許請求の範囲，[0005][0016]-[0022]，実施例	1-10																					
X	WO 2017/195902 A1（日立化成株式会社）16.11.2017（2017 - 11 - 16） 請求の範囲，実施例	1, 2, 4, 6, 7																					
☒ 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。																							
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"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</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"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）</td> <td>"&" 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>"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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	"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	"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	"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	"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	"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	"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）	"&" 同一パテントファミリー文献	"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										
* 引用文献のカテゴリー	"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																						
"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	"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																						
"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	"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																						
"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）	"&" 同一パテントファミリー文献																						
"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																							
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日																						
27.10.2021	16.11.2021																						
名称及びあて先	権限のある職員（特許庁審査官）																						
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	久保 道弘 4J 4514 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 カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2004-214288 A (リンテック株式会社) 29.07.2004 (2004 - 07 - 29) 特許請求の範囲, 実施例	1, 4, 6, 7
X	WO 2013/031844 A1 (日立化成株式会社) 07.03.2013 (2013 - 03 - 07) 請求の範囲, 実施例	1, 4, 6, 7

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/JP2021/033173

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2020/153205	A1	30.07.2020	(ファミリーなし)	
WO	2020/158259	A1	06.08.2020	(ファミリーなし)	
JP	2009-227947	A	08.10.2009	(ファミリーなし)	
JP	2008-277759	A	13.11.2008	JP	2008-277768 A
JP	2015-61924	A	02.04.2015	(ファミリーなし)	
WO	2017/195902	A1	16.11.2017	US	2019/0161586 A1
				CLAIMS, EXAMPLES	
				EP	3456779 A1
				CN	109153837 A
				KR	10-2019-0008526 A
				TW	201817797 A
JP	2004-214288	A	29.07.2004	(ファミリーなし)	
WO	2013/031844	A1	07.03.2013	CN	103781860 A
				KR	10-2014-0068946 A
				TW	201319180 A