

(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  
2025年1月2日(02.01.2025)



(10) 国際公開番号

**WO 2025/005134 A1**

(51) 国際特許分類:

*C09D 4/02* (2006.01) *C09D 7/20* (2018.01)  
*C08F 20/20* (2006.01) *C09D 7/63* (2018.01)  
*C09D 5/25* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/023167

(22) 国際出願日: 2024年6月26日(26.06.2024)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2023-108538 2023年6月30日(30.06.2023) JP  
特願 2023-199372 2023年11月24日(24.11.2023) JP

(71) 出願人: J S R 株式会社(JSR CORPORATION)  
[JP/JP]; 〒1058640 東京都港区東新橋一丁目9番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者:野坂 直矢(NOSAKA Naoya); 〒1058640  
東京都港区東新橋一丁目9番2号 J S R  
株式会社内 Tokyo (JP). 田畑 有基(TABATA  
Yuuki); 〒1058640 東京都港区東新橋一丁目  
9番2号 J S R 株式会社内 Tokyo (JP). 高  
梨 和憲(TAKANASHI Kazunori); 〒1058640 東  
京都港区東新橋一丁目9番2号 J S R 株  
式会社内 Tokyo (JP). 浜口 仁(HAMAGUCHI  
Hitoshi); 〒1058640 東京都港区東新橋一丁目9  
番2号 J S R 株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 池田 義典 (IKEDA Yoshinori);  
〒6500025 兵庫県神戸市中央区相生町1  
丁目1番18号 富士興業ビル6階 天  
野特許事務所内 Hyogo (JP).

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

KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU,  
LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY,  
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,  
PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,  
SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: COMPOSITION FOR INSULATING-FILM FORMATION, INSULATING FILM, ELECTRONIC DEVICE, MULTILAYER OBJECT, AND METHOD FOR PRODUCING MULTILAYER OBJECT

(54) 発明の名称: 絶縁膜形成用組成物、絶縁膜、電子デバイス、積層体及び積層体の製造方法

(57) Abstract: A composition for insulating-film formation which comprises: a polyfunctional acrylate having 2-6 acrylic groups in the molecule; a free-radical photopolymerization initiator; and a solvent having a boiling point at atmospheric pressure of 100-250°C and a surface tension of 20-34 mN/m.

(57) 要約: 1分子中に2以上6以下のアクリル基を有する多官能アクリレートと、ラジカル光重合開始剤と、沸点が大気圧下で100°C以上250°C以下であり、かつ表面張力が20mN/m以上34mN/m以下である溶媒とを含有する絶縁膜形成用組成物。



**WO 2025/005134 A1**

## 明 細 書

発明の名称：

絶縁膜形成用組成物、絶縁膜、電子デバイス、積層体及び積層体の製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、絶縁膜形成用組成物、絶縁膜、電子デバイス、積層体及び積層体の製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 建物の内外壁、サッシ等の建材などに絶縁膜を形成するための組成物（絶縁膜形成用組成物）として、例えば特開2001-240809号公報や特開2022-29540号公報において、バインダー樹脂、中空粒子や無機粒子等を含有する断熱性層形成用組成物が開示されている。しかし、これらは1～100 $\mu$ m程度の中空粒子や無機粒子を含むため、1 $\mu$ m以下の表面が均一な膜を形成するのが困難であった。特に半導体デバイスは、高集積化に伴い3次元実装による多層積層する構造の開発が進んでおり、電極間に適用する絶縁膜の重要性が増してきている。

[0003] これに対し、100nm程度の空孔を持つエアロゲルは、一般に、断熱性及びガス吸着性に優れる。代表的なエアロゲルとして、シリカゲルよりなるエアロゲルが古くから研究されているが（非特許文献1）、僅かな変形で崩れてしまう脆い物質であり、加えられる応力も著しく小さい。そのためエアロゲルの多層積層構造を有する電子デバイス等の絶縁膜への適用は、進んでいない。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開2001-240809号公報

特許文献2：特開2022-029540号公報

#### 非特許文献

[0005] 非特許文献1: Samuel Stephens Kistler, Coherent expanded aerogels and jellies, Nature, 1931年5月16日, vol. 127, p. 741

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の課題は、絶縁性及び断熱性優れる絶縁膜を形成できる絶縁膜形成用組成物を提供することである。

### 課題を解決するための手段

[0007] 上記課題を解決するためになされた発明は、1分子中に2以上6以下のアクリル基を有する多官能アクリレートと、ラジカル光重合開始剤と、沸点が大気圧下で100℃以上250℃以下であり、かつ表面張力が20mN/m以上34mN/m以下である溶媒とを含有する絶縁膜形成用組成物である。

## 発明の効果

[0008] 本発明の絶縁膜形成用組成物によれば、絶縁性及び断熱性に優れる絶縁膜を形成することができる。

### 発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の絶縁膜形成用組成物、絶縁膜、電子デバイス、積層体及び積層体の製造方法について詳説する。

[0010] <絶縁膜形成用組成物>

当該絶縁膜形成用組成物は、1分子中に2以上6以下のアクリル基を有する多官能アクリレート（以下、「[A] 多官能アクリレート」ともいう）と、ラジカル光重合開始剤（以下、「[B] ラジカル光重合開始剤」ともいう）と、沸点が大気圧下で100℃以上250℃以下であり、かつ表面張力が20mN/m以上34mN/m以下である溶媒（以下、「[C] 溶媒」ともいう）とを含有する。当該絶縁膜形成用組成物は、好適成分として、増粘剤（以下、「[D] 増粘剤」ともいう）を含有することができる。当該絶縁膜形成用組成物は、好適成分として、バリア形成剤（以下、「[E] バリア形

成剤」ともいう)を含有することができる。当該絶縁膜形成用組成物は、本発明の効果を損なわない範囲において、必要に応じて〔A〕多官能アクリレート、〔B〕ラジカル光重合開始剤、〔C〕溶剤、〔D〕増粘剤及び〔E〕バリア形成剤以外のその他の成分(以下、単に「その他の成分」ともいう)を含有していてもよい。

[0011] 当該絶縁膜形成用組成物によれば、絶縁性及び断熱性に優れる絶縁膜を形成することができる。その理由としては必ずしも明確ではないが、例えば次のように推察される。当該絶縁膜形成用組成物が〔A〕多官能アクリレート及び〔C〕溶媒を含有することにより、絶縁膜を形成する際の収縮が抑制される結果、空孔容積の高い絶縁膜を形成することができる。空孔容積が高いと、空孔内に含まれる空気の分だけ絶縁膜の比誘電率及び熱伝導率が低くなるため、絶縁性及び断熱性に優れる絶縁膜を形成できると考えられる。

[0012] 絶縁膜形成用組成物の固形分濃度は5質量%以上35質量部以下であることが好ましい。固形分濃度が上記範囲であると、空孔容積の高い絶縁膜を得ることができる。固形分濃度の下限としては、5質量%が好ましく、10質量%がより好ましく、15質量%がさらに好ましい。固形分濃度の上限としては、35質量%が好ましく、30質量%がより好ましく、25質量%がさらに好ましい。固形分濃度とは、当該絶縁膜形成用組成物に含有される〔C〕溶媒以外の全成分の濃度を意味する。

[0013] 以下、当該絶縁膜形成用組成物が含有する各成分について説明する。

[0014] 〔〔A〕多官能アクリレート〕

〔A〕多官能アクリレートは、1分子中に2以上6以下のアクリル基を有する多官能アクリレートである。当該絶縁膜形成用組成物は〔A〕多官能アクリレートを含有することにより、絶縁膜を形成する際の収縮が抑制される結果、クラックのない絶縁膜を形成することができる。

[0015] 本明細書において「多官能」とは、複数のアクリル基を有するという意味において使用しており、例えば「2官能アクリレート」とは2つのアクリル基を有する化合物を意味する。〔A〕多官能アクリレートとしては、1分子

中に2以上6以下のアクリル基を有し、かつ後述する〔C〕溶媒に溶解する化合物であれば特に制限されない。当該絶縁膜形成用組成物は1種又は2種以上の〔A〕多官能アクリレートを含むことができる。

[0016] 〔A〕多官能アクリレートは、重合体ではない化合物であることが好ましい。「重合体」とは、3以上の繰り返し単位を有する化合物を意味する。

[0017] 2官能アクリレートとしては、例えばエチレングリコールジアクリレート、1, 3-プロパンジオールジアクリレート、1, 4-ブタンジオールジアクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、3-メチル-1, 5-ペンタンジオールジアクリレート、1, 6-ヘキサジオールジアクリレート、1, 9-ノナンジオールジアクリレート、1, 10-デカンジオールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリエチレングリコールジアクリレート、トリシクロ〔5. 2. 1. 0<sup>2, 6</sup>〕デカンジメタノールジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート（エチレングリコールの繰り返し単位数4～15）、ポリプロピレングリコールジアクリレート（プロピレングリコールの繰り返し単位数4～15）等を挙げることができる。

[0018] 3～6官能アクリレートとしては、例えばトリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールトリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールペンタアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート；ジペンタエリスリトールペンタアクリレートとジペンタエリスリトールヘキサアクリレートとの混合物；エチレンオキサイド変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリ（2-（メタ）アクリロイルオキシエチル）フォスフェート、コハク酸変性ペンタエリスリトールトリアクリレート、コハク酸変性ジペンタエリスリトールペンタアクリレート、トリペンタエリスリトールヘプタアクリレート、トリペンタエリスリトールオクタアクリレート等が挙げられる。

[0019] 〔A〕多官能アクリレートとしては、ネオペンチルグリコールジアクリレ

ート、トリシクロ [5, 2, 1, 0<sup>2, 6</sup>] デカンジメタノールジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールトリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールペンタアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート；ジペンタエリスリトールペンタアクリレートとジペンタエリスリトールヘキサアクリレートとの混合物が、架橋基濃度が高く、高弾性の硬化体となり収縮が抑えられたため、特に好ましい。

[0020] 絶縁膜形成用組成物における [A] 多官能アクリレートの含有割合の下限は、組成物中、5質量%が好ましく、9質量%がより好ましく、12質量%がさらに好ましい。また、上記含有量の上限としては、30質量%が好ましく、25質量%がより好ましく、20質量部がさらに好ましい。上記含有量を上記範囲とすることにより、低誘電率・低熱伝導率のエアロゲルを生成することができる。

[0021] [[B] ラジカル光重合開始剤]

[B] ラジカル光重合開始剤としては、例えば可視光線、紫外線、遠紫外線、電子線、X線等の放射線の露光により、[A] 多官能アクリレートのラジカル重合反応を開始し得る活性種を発生することができる化合物が挙げられる。当該絶縁膜形成用組成物は1種又は2種以上の[B] ラジカル重合開始剤を含有することができる。

[0022] 当該絶縁膜形成用組成物の塗膜を露光することにより、[B] ラジカル光重合開始剤からラジカルが発生し、[A] 多官能アクリレートの架橋反応を進行させることにより、硬化を促進し絶縁膜を形成することができる。

[0023] [B] ラジカル光重合開始剤の具体例としては、例えばO-アシルオキシム化合物、 $\alpha$ -アミノケトン化合物、 $\alpha$ -ヒドロキシケトン化合物、アシルホスフィンオキサイド化合物が挙げられる。

[0024] 上記O-アシルオキシム化合物としては、例えば1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9, H, -カルバゾール-3-イル]-エタン-1-オンオキシム-O-アセタート、1-[9-エチル-6-ベンゾイル

- 9. H. -カルバゾール-3-イル] -オクタン-1-オンオキシム-O  
 -アセテート、1 - [9-エチル-6- (2-メチルベンゾイル) -9. H.  
 . -カルバゾール-3-イル] -エタン-1-オンオキシム-O-ベンゾエ  
 -ート、1 - [9-n-ブチル-6- (2-エチルベンゾイル) -9. H. -  
 カルバゾール-3-イル] -エタン-1-オンオキシム-O-ベンゾエート  
 、エタノン、1 - [9-エチル-6- (2-メチル-4-テトラヒドロフラ  
 ニルベンゾイル) -9. H. -カルバゾール-3-イル] -, 1 - (O-ア  
 セチルオキシム)、エタノン、1 - [9-エチル-6- (2-メチル-4-  
 テトラヒドロピラニルベンゾイル) -9. H. -カルバゾール-3-イル]  
 -, 1 - (O-アセチルオキシム)、エタノン、1 - [9-エチル-6- (2-  
 メチル-5-テトラヒドロフラニルベンゾイル) -9. H. -カルバゾ  
 ール-3-イル] -, 1 - (O-アセチルオキシム)、エタノン、1 - [9-  
 エチル-6- {2-メチル-4- (2, 2-ジメチル-1, 3-ジオキサ  
 ラニル) メトキシベンゾイル} -9. H. -カルバゾール-3-イル] -,  
 1 - (O-アセチルオキシム)、エタノン、1 - [9-エチル-6- (2-  
 メチル-4-テトラヒドロフラニルメトキシベンゾイル) -9. H. -カル  
 バゾール-3-イル] -, 1 - (O-アセチルオキシム)、1, 2-オクタ  
 ンジオン、1 - [4- (フェニルチオ) -, 2- (O-ベンゾイルオキシム  
 ) ] が挙げられる。

[0025] 上記 $\alpha$ -アミノケトン化合物としては、例えば2-ベンジル-2-ジメ  
 チルアミノ-1- (4-モルホリノフェニル) -ブタン-1-オン、2-ジメ  
 チルアミノ-2- (4-メチルベンジル) -1- (4-モルホリン-4-イ  
 ル-フェニル) -ブタン-1-オン、2-メチル-1- (4-メチルチオフ  
 ェニル) -2-モルホリノプロパン-1-オンが挙げられる。

[0026] 上記 $\alpha$ -ヒドロキシケトン化合物としては、例えば1-フェニル-2-ヒ  
 ドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン、1- (4-i-プロピルフェニ  
 ル) -2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン、4- (2-ヒドロ  
 キシエトキシ) フェニル- (2-ヒドロキシ-2-プロピル) ケトン、1-

ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトンが挙げられる。

[0027] 上記アシルホスフィンオキサイド化合物としては、例えば2, 4, 6-トリメチルベンゾイル-ジフェニル-ホスフィンオキサイド、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキサイドが挙げられる。

[0028] [B] ラジカル光重合開始剤としては、放射線による硬化反応をより促進させる観点から、O-アシルオキシム化合物又はアシルホスフィンオキサイド化合物が好ましく、1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9-H-カルバゾール-3-イル]-エタン-1-オンオキシム-O-アセタート、2, 4, 6-トリメチルベンゾイル-ジフェニル-ホスフィンオキサイド、またはビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキサイドがより好ましい。

[0029] 当該絶縁膜形成用組成物における[B] ラジカル光重合開始剤の含有量の下限としては、[A] 多官能アクリレート100質量部に対して、0.1質量部が好ましく、0.5質量部がより好ましく、1質量部がさらに好ましい。また、上記含有量の上限としては、[A] 多官能アクリレート100質量部に対して、20質量部が好ましく、10質量部がより好ましく、5質量部がさらに好ましい。上記含有量を上記範囲とすることにより、放射線による硬化反応をより促進させることができる。

[0030] [[C] 溶媒]

[C] 溶媒は、沸点が大気圧(1気圧)下で100℃以上250℃以下であり、かつ表面張力が20mN/m以上34mN/m以下である溶媒である。沸点が下限未満であると硬化時に表面荒れが生じ、上限超であると加熱乾燥時に硬化体が軟化して収縮が大きくなる不都合が生じる。また、表面張力が下限未満であるとモノマー等の溶解性が担保できなくなり、上限超であると、乾燥過程での溶剤揮発時に毛細管力が大きくなるため、高い応力がかかり収縮が大きくなるという不都合が生じる。当該絶縁膜形成用組成物では、沸点及び表面張力がともに上記特定の範囲にある[C] 溶媒を用いることで

、乾燥時の収縮を抑制し、硬化体の表面荒れを防ぐことができる。当該絶縁膜形成用組成物は1種又は2種以上の〔C〕溶媒を含有することができる。

[0031] 〔C〕溶媒の沸点の下限としては、100℃であり、120℃が好ましく、150℃がより好ましい。上記沸点の上限としては、250℃であり、230℃が好ましい。〔C〕溶媒の沸点が上記好ましい範囲であると、絶縁膜を形成する際に〔C〕溶媒を除去するために高温高圧で乾燥する必要がないため、細孔構造を保ちつつ、機械的強度に優れた絶縁膜を製造することができる。

[0032] 〔C〕溶媒の表面張力の下限としては、20 mN/mであり、23 mN/mが好ましい。上記表面張力の上限としては、34 mN/mであり、32 mN/mが好ましい。〔C〕溶媒の表面張力が上記好ましい範囲であると、低収縮でクラックを生じることなく、空孔容積の高い絶縁膜を得ることができる。

[0033] 〔C〕溶媒としては、例えばトルエン、キシレン、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、エチルー3-エトキシプロピオネート、酢酸3-メトキシブチル、3-メトキシブタノール、メシチレン、酢酸シクロヘキシル、酢酸イソボルニル、デカン酸メチル、酢酸デシル、デカヒドロナフタレンが挙げられる。

[0034] これらの中でも、ジプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチルー3-エトキシプロピオネート、メシチレン、酢酸シクロヘキシル、酢酸イソボルニル、デカン酸メチル、酢酸デシル及びデカヒドロナフタレンからなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましい。この場合、沸点と表面張力が特に良

好なバランスとなり、低収縮でクラックを生じることなく、空孔容積の高い絶縁膜を得ることができる。

[0035] [[D] 増粘剤]

[D] 増粘剤は、形成される絶縁膜に柔軟性を付与することができ、クラック発生を抑制することができる成分である。[D] 増粘剤としては、エチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース等の多糖類、アクリル酸ポリマー、カルボキシビニルポリマー、ポリエチレンオキサイド等の合成高分子が挙げられる。

[0036] 当該絶縁膜形成用組成物が増粘剤を含有する場合、[D] 増粘剤の含有量としては、[A] 多官能アクリレート 100 質量部に対して、50 質量部以下が好ましく、5 質量部以上 20 質量部以下がより好ましい。[D] 増粘剤の含有量が上記範囲内であると、絶縁膜へのクラック発生をより抑制することができる。

[0037] [[E] バリア形成剤]

[E] バリア形成剤は、[A] 多官能アクリレートと分子量が大きく異なるため、組成物から塗膜形成後、塗膜に紫外線照射することで、[E] バリア形成剤と [A] 多官能アクリレートが相分離し絶縁膜の表面にバリア膜を形成することが可能となる。このバリア膜をさらに加熱・乾燥等することで緻密な重合体の膜とすることが可能となる。このバリア膜の上にさらに膜形成用組成物等を塗布することで種々の膜の形成が可能となる。

[0038] [E] バリア形成剤としては、例えばポリスチレン、スチレン系共重合体、ポリ環状オレフィン、環状オレフィン系共重合体、環状オレフィン系共重合体、シクロオレフィンポリマー、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、アクリル樹脂、ポリ（エチレン／プロピレン）－ポリスチレンブロック共重合体（SE P）、ポリスチレン－ポリ（エチレン／ブチレン）ブロック共重合体（SE B）、ポリスチレン－ポリ（エチレン／プロピレン）－ポリスチレンブロック共重合体（SE P S）、ポリスチレン－ポリ（エチレン／ブチレン）－ポリスチレンブロック共重合体（SE B S）、ポリスチレ

ンーポリ（エチレンーエチレン／プロピレン）ーポリスチレンブロック共重合体（S E E P S）、ポリオレフィン系重合体、ポリスチレンーポリ（エチレン／プロピレン）ブロック共重合体、ポリスチレンーポリ（エチレン／ブチレン）ブロック共重合体、ポリスチレンーポリ（エチレン／プロピレン）ーポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレンーポリ（エチレン／ブチレン）ーポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレンーポリ（エチレンーエチレン／プロピレン）ーポリスチレンブロック共重合体等が挙げられる。[E] バリア形成剤は、1 種単独で又は2 種以上を混合することができる。

[0039] [E] バリア形成剤としては、ポリ（エチレン／プロピレン）ーポリスチレンブロック共重合体（S E P）、ポリスチレンーポリ（エチレン／ブチレン）ブロック共重合体（S E B）、ポリスチレンーポリ（エチレン／プロピレン）ーポリスチレンブロック共重合体（S E P S）、又はポリスチレンーポリ（エチレン／ブチレン）ーポリスチレンブロック共重合体（S E B S）が好ましい。

[0040] 当該絶縁膜形成用組成物が[E] バリア形成剤を含有する場合、[E] バリア形成剤の含有量としては、[A] 多官能アクリレート100質量部に対して、50質量部以下が好ましく、3質量部以上20質量部以下がより好ましい。

[0041] [その他の成分]

その他の成分としては、例えば密着助剤、界面活性剤、重合禁止剤が挙げられる。

[0042] 密着助剤は、形成される絶縁膜と基板との接着性をさらに向上するために使用することができる。密着助剤としては、例えばトリメトキシシリル安息香酸、ビニルトリアセトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルアルキルジアルコキシシラン、 $\gamma$ -クロロプロピルトリアルコキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリアルコキシシラン、 $\beta$ -（3，4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキ

シシランが挙げられる。

[0043] 当該絶縁膜形成用組成物が密着助剤を含有する場合、密着助剤の含有量としては、[A] 多官能アクリレート 100 質量部に対して、20 質量部以下が好ましく、1 質量部以上 10 質量部以下がより好ましい。密着助剤の含有量が上記範囲内であると、基板と形成される絶縁膜との密着性が向上する。

[0044] 界面活性剤としては、例えばフッ素系界面活性剤、シリコン系界面活性剤が挙げられる。絶縁膜形成用組成物が界面活性剤を含有する場合、界面活性剤の含有量としては、[A] 多官能アクリレート 100 質量部に対して、1 質量部以下が好ましく、0.01 質量部以上 0.6 質量部以下がより好ましい。

[0045] 重合禁止剤は、露光若しくは加熱によって発生したラジカルを捕捉し、又は酸化によって生成した過酸化物を分解することにより、[A] 多官能アクリレートの分子の開裂を抑制する成分である。当該絶縁膜形成用組成物が重合禁止剤を含有すると、形成される絶縁膜中の重合体分子の解裂劣化が抑制されるため、絶縁膜の耐光性を向上させることができる。

[0046] 重合禁止剤としては、例えばヒンダードフェノール化合物、ヒンダードアミン化合物、アルキルホスファイト化合物、チオエーテル化合物が挙げられる。中でも、ヒンダードフェノール化合物が好ましい。

[0047] 当該絶縁膜形成用組成物が重合禁止剤を含有する場合、重合禁止剤の含有量としては、[A] 多官能アクリレート 100 質量部に対して、1 質量部以下が好ましく、0.01 質量部以上 0.6 質量部以下がより好ましい。

[0048] <絶縁膜の形成方法>

当該絶縁膜形成用組成物を用いて絶縁膜を形成する方法としては、上述の絶縁膜形成用組成物に放射線を照射（露光）し、ゲルを得る工程（以下、「ゲル形成工程」ともいう。）と、上記ゲルを乾燥する工程（以下、「乾燥工程」ともいう。）とを備える方法が挙げられる。

[0049] 以下、各工程について説明する。

[0050] [ゲル形成工程]

本工程では、上述の当該絶縁膜形成用組成物に放射線を照射（露光）し、光硬化反応によりゲルを形成する。上記光硬化反応の反応条件としては、ゲル得ることができる限り特に限定されず、反応温度、反応時間等は従来のゲルと同様の範囲とすることができる。上記光硬化反応は、窒素又はアルゴン等の不活性ガス雰囲気下で行なうことが好ましい。通常、上記放射線としては、例えば可視光線、紫外線、遠紫外線、電子線、X線等を使用できる。これらの放射線の中でも、波長が190nm以上450nm以下の範囲にある放射線が好ましく、365nmの紫外線を含む放射線がより好ましい。

[0051] 本工程における露光量の下限としては、放射線の波長365nmにおける強度を照度計（OAI Optical Associates Inc. 社の「OAI model 356」）により測定した値として、 $10\text{ mJ}/\text{cm}^2$ が好ましく、 $20\text{ mJ}/\text{cm}^2$ がより好ましい。また、上記露光量の上限としては、上記照度計により測定した値として、 $2,000\text{ mJ}/\text{cm}^2$ が好ましく、 $1,000\text{ mJ}/\text{cm}^2$ がより好ましい。フォトリソを介して露光し、パターン形成することも可能であり、モールドを用いたインプリント法によりパターン形成することも可能である。

#### [0052] [乾燥工程]

本工程では、形成したゲルを乾燥することで絶縁膜を得る。ゲルの乾燥方法として公知の方法を用いることができる。例えば、常圧乾燥法、凍結乾燥法、超臨界乾燥法等が挙げられるが、常圧乾燥が好ましく用いられる。常圧乾燥の条件を的確に制御することで、ゲル骨格の破壊・収縮を抑制することができるので好ましい。また、ゲルを超臨界乾燥法により乾燥する場合、ゲルの分散媒の臨界点以上の温度及び圧力にて分散媒を除去する。超臨界乾燥法の場合、前述した溶媒置換を行なうことにより、ゲルの分散媒は、反応溶媒から、エタノールに置換し、さらに液化二酸化炭素に置換することが好ましい。

#### [0053] <絶縁膜>

当該絶縁膜は、上述の当該絶縁膜形成用組成物から形成される。当該絶縁

膜は、例えば保護膜、層間絶縁膜、平坦化膜、ゲート絶縁膜などとして機能する。当該絶縁膜は、空孔容積が高いため、低誘電率及び低熱伝導率である。さらに、当該絶縁膜は、低屈折率である。

[0054] 当該絶縁膜は、複数の空孔を有する多孔質膜である。空孔の直径としては、 $1\text{ nm}$ 以上 $500\text{ nm}$ 以下が好ましい。また、当該絶縁膜は、エアロゲルから構成される。

[0055] 当該絶縁膜は上述の当該絶縁膜形成用組成物から形成されるため、上述の  
[A] 多官能アクリレートに由来する繰り返し単位を有する重合体を含有する。

[0056] 当該絶縁膜は、自立膜であってもよいし、積層体の一部を構成する膜であってもよい。

本明細書において、「自立膜」とは、他の基材や支持体が存在しなくとも膜としての形状を保つことができる膜を意味する。

[0057] 当該絶縁膜の空孔容積としては、 $0.3\text{ cm}^3/\text{g}$ 以上 $1.5\text{ cm}^3/\text{g}$ 以下であることが好ましい。当該絶縁膜の空孔容積が上記範囲であると、低誘電率及び低熱伝導率を発揮することができる。当該絶縁膜の空孔容積は、後述の実施例に記載の測定方法により測定することができる。

[0058] 上記空孔容積の下限としては、 $0.3\text{ cm}^3/\text{g}$ が好ましく、 $0.4\text{ cm}^3/\text{g}$ がより好ましく、 $0.5\text{ cm}^3/\text{g}$ がより好ましい場合もある。上記空孔容積の上限としては、 $1.5\text{ cm}^3/\text{g}$ が好ましく、 $1.0\text{ cm}^3/\text{g}$ がより好ましく、 $0.9\text{ cm}^3/\text{g}$ がさらに好ましく、 $0.8\text{ cm}^3/\text{g}$ が好ましい場合もある。

[0059] 当該絶縁膜の比誘電率は $1.2$ 以上 $2.0$ 以下であることが好ましい。当該絶縁膜の比誘電率が上記範囲であることにより、伝搬遅延を抑制した絶縁膜として使用できる。上記比誘電率の下限としては、 $1.2$ が好ましく、 $1.3$ がより好ましく、 $1.4$ が好ましい場合もある。上記比誘電率の上限としては、 $2.0$ が好ましく、 $1.9$ がより好ましく、 $1.8$ が好ましい場合もある。当該絶縁膜の比誘電率は、後述の実施例に記載の測定方法により測

定することができる。

[0060] 当該絶縁膜の密度は $0.05\text{ g/cm}^3$ 以上 $0.30\text{ g/cm}^3$ 以下であることが好ましい。当該絶縁膜の密度が上記範囲であることにより、絶縁性及び断熱性により優れる絶縁膜を得ることができる。限定的な解釈を望むものではないが、上記範囲内において密度が低いほど絶縁性及び断熱性により優れる傾向がある。上記密度の下限としては、 $0.05\text{ g/cm}^3$ が好ましく、 $0.10\text{ g/cm}^3$ がより好ましく、 $0.20\text{ g/cm}^3$ がさらに好ましく、 $0.21\text{ g/cm}^3$ が好ましい場合もある。上記密度の上限としては、 $0.30\text{ g/cm}^3$ が好ましく、 $0.29\text{ g/cm}^3$ がより好ましく、 $0.27\text{ g/cm}^3$ が好ましい場合もある。絶縁膜の密度は、後述の実施例に記載の測定方法により測定することができる。

[0061] 絶縁膜の熱伝導率は $0.020\text{ W/mK}$ 以上 $0.050\text{ W/mK}$ 以下であることが好ましい。絶縁膜の熱伝導率が上記範囲であることにより、サーマルマネジメント向けの絶縁膜として好ましく使用できる。上記熱伝導率の下限としては、 $0.020\text{ W/mK}$ が好ましく、 $0.025\text{ W/mK}$ がより好ましい。上記熱伝導率の上限としては、 $0.050\text{ W/mK}$ が好ましく、 $0.045\text{ W/mK}$ がより好ましい。絶縁膜の熱伝導率は、後述の実施例に記載の測定方法により測定することができる。

[0062] <電子デバイス>

当該電子デバイスは、上述の当該絶縁膜を備える。当該電子デバイスとしては、例えば表示素子、半導体デバイス、CMOSイメージセンサー、そのほか各種センサー等の電子デバイスが挙げられる。

[0063] <積層体>

当該積層体は、基材と、この基材上に直接又は間接に積層される絶縁膜とを備える積層体である。上記絶縁膜は、上述の当該絶縁膜形成用組成物から形成される。

[0064] 当該積層体は、表示素子、半導体デバイス、CMOSイメージセンサー、そのほか各種センサー等の電子デバイスとして使用できる。当該積層体が備

える絶縁膜は、空孔容積が高いため空孔に空気が取り込まれやすいため絶縁性が高く、断熱性も高い。さらに高度な架橋構造を有するため機械的強度の高い絶縁膜である。そのため当該積層体は、多層構造を有する半導体デバイスに好適に用いることができる。

[0065] [基材]

基材の材質としては特に制限されず、例えばガラス、石英、シリコン、樹脂が挙げられる。上記樹脂の具体例としては、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエーテルスルホン、ポリカーボネート、ポリイミド、環状オレフィンの付加重合体、環状オレフィンの開環重合体及びその水素添加物が挙げられる。

[0066] <積層体の製造方法>

当該積層体の製造方法は、基材上に直接又は間接に絶縁膜形成用組成物を塗工し、塗膜を形成する工程（以下、「塗膜形成工程」ともいう）と、上記塗膜を露光し、乾燥する工程（以下、「乾燥工程」ともいう）と、上記乾燥工程により得られた膜上に膜形成用組成物を塗工し、加熱又は露光することで膜を形成する工程（以下、「膜形成工程」ともいう）とを備える。上記塗膜形成工程では、絶縁膜形成用組成物として、上述の絶縁膜形成用組成物のうち、[E] バリア形成剤を含有するものを用いる。

[0067] 当該積層体の製造方法によれば、基材と、上記基材上に直接又は間接に積層される絶縁膜と、上記絶縁膜上に形成されるバリア膜と、上記バリア膜上に形成される膜とを備える積層体を得ることができる。

[0068] 当該積層体の製造方法によれば、相分離により、エアロゲル絶縁膜上にバリア膜が形成されるため、エアロゲル絶縁膜上に直接積層することが困難な膜を積層することができる。

[0069] [塗膜形成工程]

本工程では、基材上に直接又は間接に絶縁膜形成用組成物を塗工し、塗膜を形成する。

[0070] 基材としては、上記<積層体>の項に記載したものが挙げられる。

[0071] 本工程では、絶縁膜形成用組成物として、上述の絶縁膜形成用組成物のうち、[E] バリア形成剤を含有するものを用いる。

[0072] 塗工方法としては、特に制限されず、公知の方法を採用することができる。

[0073] [乾燥工程]

本工程では、上記塗膜形成工程で得られた塗膜を露光し、乾燥する。本工程により、上記基材上に絶縁膜が形成され、上記絶縁膜上にバリア膜を形成することができる。露光及び乾燥の方法及び条件は、上述の〈絶縁膜の形成方法〉の項中、ゲル形成工程及び乾燥工程として記載した方法及び条件が挙げられる。

[0074] [膜形成工程]

本工程では、上記乾燥工程により得られたバリア膜上に膜形成用組成物を塗工し、加熱又は露光することで膜を形成する。

[0075] 膜形成用組成物としては、膜を形成可能な組成物であれば特に制限されない。例えば有機溶剤に溶解したアクリレートモノマーと開始剤の混合物が挙げられる。

[0076] 膜形成用組成物の塗工方法としては、特に制限されず、公知の方法を採用することができる。

[0077] 加熱条件としては、例えば120℃／1時間が挙げられる。

[0078] 露光の方法及び条件としては、上述の〈絶縁膜の形成方法〉の項中、ゲル形成工程及び乾燥工程として記載した方法及び条件が挙げられる。

## 実施例

[0079] 以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明する。本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0080] 〈絶縁膜形成用組成物の調製〉

絶縁膜形成用組成物の調製に用いた各成分を以下に示す。

[0081] [[A] 多官能アクリレート]

(A-1) : ペンタエリスリトールテトラアクリレート (アクリル基数 : 4

)

(A-2) : グリセロールジアクリレート (アクリル基数 : 2)

(A-3) : ジペンタエリトリールヘキサアクリレート (アクリル基数 : 6)

(A-4) : 日本化薬 (株) の「DPHA-4OH」 (アクリル基数 : 10)

(A-5) : トリシクロ [5. 2. 1. 0<sup>2, 6</sup>] デカンジメタノールジアクリレート (アクリル基数 : 2)

[0082] [ [B] ラジカル光重合開始剤]

(B-1) : フェニルビス (2, 4, 6-トリメチルベンゾイル) ホスフィンオキシド

[0083] [ [C] 溶媒]

(C-1) : ジプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート (沸点 : 209℃、表面張力 : 28.6 mN/m)

(C-2) : メシチレン (沸点 : 165℃、表面張力 : 27.6 mN/m)

(C-3) : 酢酸シクロヘキシル (沸点 : 172℃、表面張力 : 31.3 mN/m)

(C-4) : トルエン (沸点 : 110℃、表面張力 : 28.5 mN/m)

(C-5) : アニソール (沸点 : 154℃、表面張力 : 34.6 mN/m)

(C-6) : イソプロピルアルコール (沸点 : 82℃、表面張力 : 20.8 mN/m)

(C-7) : N, N-ジメチルホルムアミド (沸点 : 153℃、表面張力 : 36.4 mN/m)

(C-8) : N-メチル-2-ピロリドン (沸点 : 202℃、表面張力 : 40.3 mN/m)

(C-9) : ジエチレングリコールジブチルエーテル (沸点 : 255℃、表面張力 : 28.7 mN/m)

(C-10) : 酢酸イソボルニル (沸点 : 215℃、表面張力 : 30.2 mN/m)

N/m)

[0084] [[D] 増粘剤]

(D-1) : エチルセルロース (シグマアルドリッチ社製)

[0085] [[E] バリア形成剤]

(E-1) : (株) クラレの「SEPTON1020」

[0086] [実施例1] 絶縁膜形成用組成物 (J-1) の調製

[A] 多官能アクリレートとしての (A-1) 100質量部及び [B] ラジカル光重合開始剤としての (B-1) 3質量部を [C] 溶媒としての (C-1) 456質量部に溶解し、絶縁膜形成用組成物 (J-1) を調製した。絶縁膜形成用組成物 (J-1) の固形分濃度は18質量%であった。

[0087] [実施例2～9及び比較例1～6] 絶縁膜形成用組成物 (J-2) ～ (J-9) 及び (CJ-1) ～ (CJ-6) の調製

下記表1に示す種類及び配合量の各成分を用いたこと以外は実施例1と同様にして、絶縁膜形成用組成物 (J-2) ～ (J-9) 及び (CJ-1) ～ (CJ-6) を調製した。

[0088] <評価>

上記調製した絶縁膜形成用組成物を用いて下記の方法に従い絶縁膜又は積層体を形成した。得られた絶縁膜について、以下の方法に従い、密度、BET比表面積、空孔容積、熱伝導率、比誘電率、及び硬化体表面の外観を評価した。得られた積層体について、以下の方法に従い、BET比表面積、空孔容積、熱伝導率、比誘電率、及び硬化体表面の外観を評価した。また、乾燥時にクラックが発生したものについては、密度、BET比表面積、空孔容積、熱伝導率及び比誘電率の測定を行うことができなかった。結果を下記表1に示す。なお、[積層体の形成2]の項では、形成した絶縁膜についてBET比表面積、空孔容積、熱伝導率、比誘電率、及び硬化体表面の外観を評価した。

[0089] [絶縁膜の形成]

上記調製した絶縁膜形成用組成物 (J-1) ～ (J-6)、(J-8) 及

び（C J - 1）～（C J - 6）をポリプロピレン製容器に入れ、室温にて 250W の高圧水銀灯で 30 分照射することにより、前駆体のゲルを得た。このゲルをポリプロピレン製容器から取り出し、120℃で常圧乾燥することで、自立膜としての絶縁膜を得た。

[0090] [積層体の形成 1]

上記調製した絶縁膜形成用組成物（J - 7）を石英基板上に塗工し、得られた塗膜に室温にて 250W の高圧水銀灯で 30 分照射し、120℃で常圧乾燥することで、基板上に絶縁膜を有する積層体を形成した。

[0091] [積層体の形成 2]

上記調製した絶縁膜形成用組成物（J - 9）を石英基板上に塗工し、得られた塗膜に室温にて 250W の高圧水銀灯で 30 分照射し、150℃で常圧乾燥することで、基板上に膜を形成した。この膜は、絶縁膜及びバリア膜がこの順で積層される膜である。さらにバリア膜上に膜形成用脂組成物（2 官能のアクリレートモノマーと光開始剤との混合物）を塗布し、室温にて 250W の高圧水銀灯で 30 分照射することで、上記バリア膜上に膜を形成した。

[0092] [密度]

密度の測定は、寸法測定及び質量測定により行なった。寸法測定は、絶縁膜の任意の断面を以下の条件の走査型電子顕微鏡（SEM）により観察した。

測定対象のサンプル：絶縁膜をカミソリにより薄片化した。

測定装置：A p r e o S L o V a c（T h e r m o F i s h e r S c i e n t i f i c 社製）

測定条件：80Pa、室温

[0093] [BET比表面積及び空孔容積]

BET比表面積は、BELSORP18PLUS-HT（日本ベル製）を用い、窒素ガスの等温吸着を定法により測定した。また、GCMC法により空孔容積（細孔直径約0.5～50nm）を算出した。

## [0094] [熱伝導率]

熱伝導率の測定は、a i - P h a s e M o b i l e - 1 0（アイフェイズ社製）を用い、温度波振幅法ベース／交流定常法により行った。

## [0095] [比誘電率]

絶縁膜の比誘電率は空洞共振器法により 1 0 G H z における誘電特性の測定を行った。

## [0096] [硬化体表面の外観]

絶縁膜形成用組成物を光硬化し乾燥後、光照射面を目視により観察した。荒れ等見られない場合は「A」（良好）と、わずかに光照射面に乱れがみられる場合は「B」（やや良好）と、絶縁膜にクラックが発生した場合は「C」（不良）と評価した。

[0097] 下記表 1 中、「含有量」の列における数値は質量部を示す。「[D] 増粘剤」及び「[E] バリア形成剤」の列における「－」は、該当する成分を用いていないことを示す。「密度」の列における「－」は、密度の測定を行っていないことを示す。

## [0098]

[表1]

|      | 絶縁膜<br>形成用<br>組成物 | [A]多官能<br>アクリレート |     | [B]ラジカル<br>光重合開始剤 |     | [C]溶剤 |     | [D]増粘剤 |     | [E]バリア<br>形成剤 |     | 固形分濃度<br>[wt%] | 密度<br>[g/cm <sup>3</sup> ] | BET<br>比表面積<br>[m <sup>2</sup> /g] | 空孔容積<br>[cm <sup>3</sup> /g] | 熱伝導率<br>[W/mK] | 比誘電率 | 硬化体<br>表面の外観 |
|------|-------------------|------------------|-----|-------------------|-----|-------|-----|--------|-----|---------------|-----|----------------|----------------------------|------------------------------------|------------------------------|----------------|------|--------------|
|      |                   | 種類               | 含有量 | 種類                | 含有量 | 種類    | 含有量 | 種類     | 含有量 | 種類            | 含有量 |                |                            |                                    |                              |                |      |              |
| 実施例1 | J-1               | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-1   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.21                       | 493                                | 0.89                         | 0.027          | 1.4  | A            |
| 実施例2 | J-2               | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-2   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.21                       | 430                                | 0.56                         | 0.034          | 1.4  | A            |
| 実施例3 | J-3               | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-3   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.25                       | 415                                | 0.49                         | 0.036          | 1.6  | A            |
| 実施例4 | J-4               | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-4   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.20                       | 475                                | 0.82                         | 0.038          | 1.3  | B            |
| 実施例5 | J-5               | A-2              | 100 | B-1               | 3   | C-1   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.29                       | 405                                | 0.42                         | 0.042          | 1.9  | A            |
| 実施例6 | J-6               | A-3              | 100 | B-1               | 3   | C-2   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.27                       | 423                                | 0.57                         | 0.041          | 1.8  | A            |
| 実施例7 | J-7               | A-2              | 100 | B-1               | 3   | C-1   | 451 | D-1    | 5   | -             | -   | 19             | -                          | 380                                | 0.37                         | 0.045          | 1.9  | A            |
| 実施例8 | J-8               | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-1   | 200 | -      | -   | -             | -   | 34             | 0.37                       | 312                                | 0.33                         | 0.049          | 2.0  | A            |
| 実施例9 | J-9               | A-5              | 100 | B-1               | 3   | C-10  | 288 | -      | -   | E-1           | 12  | 28             | -                          | 337                                | 0.34                         | 0.048          | 2.0  | A            |
| 比較例1 | C-J-1             | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-5   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.56                       | 140                                | 0.25                         | 0.082          | 2.6  | C            |
| 比較例2 | C-J-2             | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-6   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 0.42                       | 266                                | 0.29                         | 0.054          | 2.2  | C            |
| 比較例3 | C-J-3             | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-7   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 乾燥時にクラックが生じ測定不可            |                                    |                              |                |      | C            |
| 比較例4 | C-J-4             | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-8   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 乾燥時にクラックが生じ測定不可            |                                    |                              |                |      | C            |
| 比較例5 | C-J-5             | A-1              | 100 | B-1               | 3   | C-9   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 乾燥時にクラックが生じ測定不可            |                                    |                              |                |      | C            |
| 比較例6 | C-J-6             | A-4              | 100 | B-1               | 3   | C-1   | 456 | -      | -   | -             | -   | 18             | 乾燥時にクラックが生じ測定不可            |                                    |                              |                |      | C            |

[0099] 表 1 の結果から、実施例 1 ～ 9 は、比較例 1 ～ 2 と比較して、比誘電率及び熱伝導率が共に低いことが分かった。

## 請求の範囲

- [請求項1] 1 分子中に 2 以上 6 以下のアクリル基を有する多官能アクリレートと、  
ラジカル光重合開始剤と、  
沸点が大気圧下で 100℃以上 250℃以下であり、かつ表面張力が 20 mN/m 以上 34 mN/m 以下である溶媒と  
を含有する絶縁膜形成用組成物。
- [請求項2] 上記多官能アクリレートの含有割合が 5 質量%以上 30 質量%以下である請求項 1 に記載の絶縁膜形成用組成物。
- [請求項3] 上記ラジカル光重合開始剤が、O-アシルオキシム化合物、 $\alpha$ -アミノケトン化合物、 $\alpha$ -ヒドロキシケトン化合物及びアシルホスフィンオキサイド化合物からなる群から選択される少なくとも 1 種である請求項 1 に記載の絶縁膜形成用組成物。
- [請求項4] 上記溶媒が、ジプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチル-3-エトキシプロピオネート、メシチレン、酢酸シクロヘキシル、酢酸イソボルニル、デカン酸メチル、酢酸デシル及びデカヒドロナフタレンからなる群から選択される少なくとも 1 種である請求項 1 に記載の絶縁膜形成用組成物。
- [請求項5] バリア形成剤をさらに含有する請求項 1 に記載の絶縁膜形成用組成物。
- [請求項6] 請求項 1 から請求項 5 のいずれか 1 項に記載の絶縁膜形成用組成物から形成される絶縁膜。
- [請求項7] 空孔容積が 0.3 cm<sup>3</sup>/g 以上 1.5 cm<sup>3</sup>/g 以下である請求項 6 に記載の絶縁膜。
- [請求項8] 比誘電率が 1.2 以上 2.0 以下である請求項 6 に記載の絶縁膜。
- [請求項9] 熱伝導率が 0.020 W/mK 以上 0.050 W/mK 以下である請求項 6 に記載の絶縁膜。

- [請求項10] 密度が $0.05 \text{ g/cm}^3$ 以上 $0.30 \text{ g/cm}^3$ 以下である請求項6に記載の絶縁膜。
- [請求項11] 請求項6に記載の絶縁膜を備える電子デバイス。
- [請求項12] 基材と、この基材上に直接又は間接に形成される絶縁膜とを備える積層体であって、  
上記絶縁膜が請求項1から請求項5のいずれか1項に記載の絶縁膜形成用組成物から形成される積層体。
- [請求項13] 基材上に直接又は間接に請求項5に記載の絶縁膜形成用組成物を塗工し、塗膜を形成する工程と、  
上記塗膜を露光し、乾燥する工程と、  
上記乾燥工程により得られた絶縁膜上に膜形成用組成物を塗工し、加熱又は露光することで膜を形成する工程と  
を備える積層体の製造方法。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/023167

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

*C09D 4/02*(2006.01)i; *C08F 20/20*(2006.01)i; *C09D 5/25*(2006.01)i; *C09D 7/20*(2018.01)i; *C09D 7/63*(2018.01)i  
FI: C09D4/02; C09D7/20; C09D7/63; C08F20/20; C09D5/25

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)

C09D4/02; C08F20/20; C09D5/25; C09D7/20; C09D7/63

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

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

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

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                        | Relevant to claim No. |
|-----------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | WO 2014/002690 A1 (JSR CORPORATION) 03 January 2014 (2014-01-03)<br>claim 1, paragraphs [0076], [0121]-[0122], [0124], [0131]-[0132], [0135]-[0142], [0146]-[0147], tables 1-3, example 1 | 1-13                  |
| Y         | paragraphs [0121]-[0122]                                                                                                                                                                  | 13                    |
| Y         | JP 2014-88504 A (NISSAN CHEMICAL IND LTD.) 15 May 2014 (2014-05-15)<br>claim 1, paragraphs [0031], [0044], [0052], [0063]-[0070], table 1, example 5                                      | 1-13                  |
| X         | JP 2009-25369 A (JSR CORPORATION) 05 February 2009 (2009-02-05)<br>claim 1, paragraphs [0072], [0081], [0090], [0096]-[0101], [0103]-[0105], tables 1-2, example 1                        | 1-13                  |
| Y         | paragraphs [0036]-[0041], [0103]                                                                                                                                                          | 1-13                  |
| A         | JP 2015-102756 A (FUJIFILM CORPORATION) 04 June 2015 (2015-06-04)<br>paragraphs [0069], [0072]                                                                                            | 1-13                  |

☐ 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  
“D” document cited by the applicant in the international application  
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date  
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&amp;” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

04 September 2024

Date of mailing of the international search report

17 September 2024

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  
Information on patent family members

International application No.  
**PCT/JP2024/023167**

| Patent document<br>cited in search report |             |    | Publication date<br>(day/month/year) | Patent family member(s)                                  | Publication date<br>(day/month/year) |
|-------------------------------------------|-------------|----|--------------------------------------|----------------------------------------------------------|--------------------------------------|
| WO                                        | 2014/002690 | A1 | 03 January 2014                      | CN 104411746 A<br>KR 10-2015-0024304 A<br>TW 201406801 A |                                      |
| JP                                        | 2014-88504  | A  | 15 May 2014                          | (Family: none)                                           |                                      |
| JP                                        | 2009-25369  | A  | 05 February 2009                     | (Family: none)                                           |                                      |
| JP                                        | 2015-102756 | A  | 04 June 2015                         | (Family: none)                                           |                                      |

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C09D 4/02(2006.01)i; C08F 20/20(2006.01)i; C09D 5/25(2006.01)i; C09D 7/20(2018.01)i;  
C09D 7/63(2018.01)i  
FI: C09D4/02; C09D7/20; C09D7/63; C08F20/20; C09D5/25

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））

C09D4/02; C08F20/20; C09D5/25; C09D7/20; C09D7/63

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語）

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
|-----------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| X               | WO 2014/002690 A1（JSR株式会社）03.01.2014（2014-01-03）<br>請求項1, 段落[0076], [0121]-[0122], [0124], [0131]-[0132], [0135]-[0142],<br>[0146]-[0147], 表1-3, 実施例1 | 1-13           |
| Y               | 段落[0121]-[0122]                                                                                                                                       | 13             |
| Y               | JP 2014-88504 A（日産化学工業株式会社）15.05.2014（2014-05-15）<br>請求項1, 段落[0031], [0044], [0052], [0063]-[0070], 表1, 実施例5                                          | 1-13           |
| X               | JP 2009-25369 A（JSR株式会社）05.02.2009（2009-02-05）<br>請求項1, 段落[0072], [0081], [0090], [0096]-[0101], [0103]-[0105], 表1-2, 実施<br>例1                        | 1-13           |
| Y               | 段落[0036]-[0041], [0103]                                                                                                                               | 1-13           |
| A               | JP 2015-102756 A（富士フイルム株式会社）04.06.2015（2015-06-04）<br>段落[0069], [0072]                                                                                | 1-13           |

☐ 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、一般的技术水準を示すもの  
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献  
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に  
公表されたもの  
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若し  
くは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を  
付す）  
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の  
後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵  
触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引  
用するもの  
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性  
又は進歩性がないと考えられるもの  
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献  
との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がな  
いと考えられるもの  
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 04.09.2024

国際調査報告の発送日 17.09.2024

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

権限のある職員（特許庁審査官）  
  
川嶋 宏毅 4Z 1777  
  
電話番号 03-3581-1101 内線 3478

国際調査報告  
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号  
PCT/JP2024/023167

| 引用文献 |             |    | 公表日        | パテントファミリー文献 |                 |   | 公表日 |
|------|-------------|----|------------|-------------|-----------------|---|-----|
| WO   | 2014/002690 | A1 | 03.01.2014 | CN          | 104411746       | A |     |
|      |             |    |            | KR          | 10-2015-0024304 | A |     |
|      |             |    |            | TW          | 201406801       | A |     |
| JP   | 2014-88504  | A  | 15.05.2014 | (ファミリーなし)   |                 |   |     |
| JP   | 2009-25369  | A  | 05.02.2009 | (ファミリーなし)   |                 |   |     |
| JP   | 2015-102756 | A  | 04.06.2015 | (ファミリーなし)   |                 |   |     |