

(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
2017年4月20日(20.04.2017)



(10) 国際公開番号

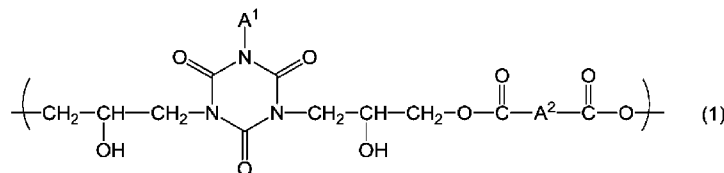
WO 2017/064992 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/14 (2006.01) C08L 67/06 (2006.01)
C08F 290/14 (2006.01) C09D 7/12 (2006.01)
C08F 299/04 (2006.01) C09D 163/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/078083
- (22) 国際出願日: 2016年9月23日(23.09.2016)
- (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 2015-202266 2015年10月13日(13.10.2015) JP
- (71) 出願人: 日産化学工業株式会社(NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒1010054 東京都千代田区神田錦町三丁目7番地1 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 坂口 崇洋(SAKAGUCHI, Takahiro); 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町488番地6 日産化学工業株式会社 材料科学研究所内 Chiba (JP). 菅原 由紀(SUGAWARA, Yuki); 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町488番地6 日産化学工業株式会社 材料科学研究所内 Chiba (JP). 安達 勲(ADACHI, Isao); 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町488番地6 日産化学工業株式会社 材料科学研究所内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人はなぶさ特許商標事務所 (HANABUSA PATENT & TRADEMARK OFFICE); 〒1010062 東京都千代田区神田駿河台3丁目2番地 新御茶ノ水アーバントリニティ 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, JP, KE, KG, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

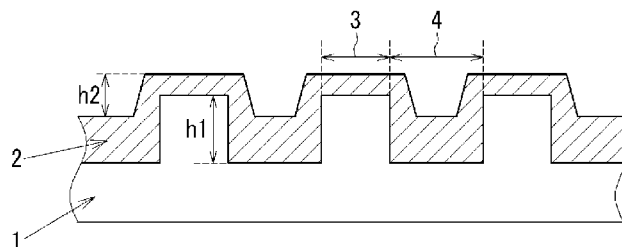
[続葉有]

(54) Title: THERMOSETTING RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 熱硬化性樹脂組成物



[図1]



(57) Abstract: [Problem] To provide: a thermosetting resin composition; a thermosetting resin composition for protective films; a thermosetting resin composition for planarization films; and a method for producing a cured film, a protective film or a planarization film with use of one of the above-described resin compositions. [Solution] A thermosetting resin composition which contains a polymer having a structural unit represented by formula (1), from 0% by mass to 30% by mass of a curing agent relative to the polymer, and a solvent, and wherein if a curing agent is contained therein, the curing agent is at least one compound selected from the group consisting of polyfunctional (meth)acrylate compounds and polyfunctional blocked isocyanate compounds. (In the formula, A¹ represents an alkenyl group or alkynyl group having 2 or 3 carbon atoms; and A² represents an alkenylene group or alkynylene group having 2 carbon atoms.)

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2017/064992 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

【課題】熱硬化性樹脂組成物、保護膜用熱硬化性樹脂組成物、平坦化膜用熱硬化性樹脂組成物、並びに当該樹脂組成物を用いた硬化膜、保護膜又は平坦化膜の作製方法を提供すること。【解決手段】下記式（１）で表される構造単位を有するポリマー、該ポリマーに対し 0 乃至 30 質量％の硬化剤、及び溶剤を含有し、前記硬化剤を含有する場合、該硬化剤は多官能（メタ）アクリレート化合物及び多官能ブロックイソシアネート化合物からなる群から選択される少なくとも 1 種の化合物である、熱硬化性樹脂組成物。（式中、 A^1 は炭素原子数 2 又は 3 のアルケニル基又はアルキニル基を表し、 A^2 は炭素原子数 2 のアルケニレン基又はアルキニレン基を表す。）

明 細 書

発明の名称：熱硬化性樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、熱硬化性樹脂組成物、保護膜用熱硬化性樹脂組成物、平坦化膜用熱硬化性樹脂組成物、並びに当該樹脂組成物を用いた硬化膜、保護膜又は平坦化膜の作製方法に関するものである。

背景技術

[0002] 液晶ディスプレイ、CCD／CMOSイメージセンサ等の電子デバイスは、その製造工程において、溶剤、又は酸もしくはアルカリ溶液等の薬液に曝される処理や、スパッタリング、ドライエッチング、半田リフロー等の高温に曝される処理が行われる。このような処理によって素子が劣化もしくは損傷することを防止するために、このような処理に対して耐性を有する硬化膜を保護膜として素子上に形成することが行われている。このような保護膜には、耐薬品性、高透明性、耐熱性等が要求される。

[0003] 前記電子デバイスには、例えば、カラーフィルター、回路配線部、遮光膜又はインナーレンズに起因する凹凸が存在する。そのため、電子デバイス製造時のプロセスマージンの確保やデバイス特性の均一性の確保等の観点から、前記硬化膜には段差平坦化性も要求される（特許文献1乃至特許文献4）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2000-344866号公報

特許文献2：特開2008-031370号公報

特許文献3：特許第4222457号

特許文献4：国際公開第2013/005619号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

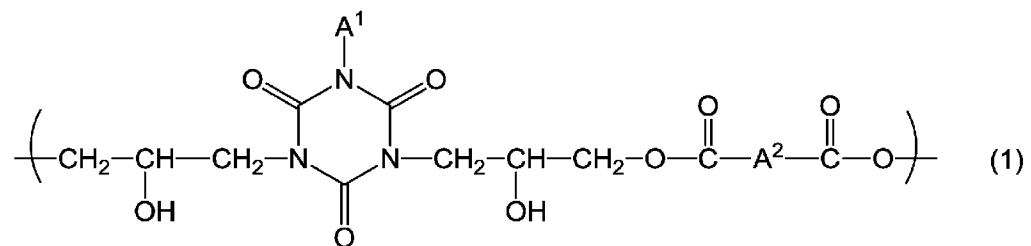
[0005] 本発明は、前記の事情に基づいてなされたものであり、その目的は、優れた

耐薬品性、耐熱性、透明性及び平坦化性を有する硬化膜を形成できる熱硬化性樹脂組成物を提供することである。また、本発明の他の目的は、優れた耐薬品性、耐熱性及び透明性を有する硬化膜、保護膜及び平坦化膜を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、前記の課題を解決するべく鋭意検討を行った結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、下記式（１）で表される構造単位を有するポリマー、該ポリマーに対し０乃至３０質量％の硬化剤、及び溶剤を含有し、前記硬化剤を含有する場合、該硬化剤は多官能（メタ）アクリレート化合物及び多官能ブロックイソシアネート化合物からなる群から選択される少なくとも１種の化合物である、熱硬化性樹脂組成物である。

[化１]



（式中、 A^1 は炭素原子数２又は３のアルケニル基又はアルキニル基を表し、 A^2 は炭素原子数２のアルケニレン基又はアルキニレン基を表す。）

[0007] 上記０乃至３０質量％の硬化剤とは、本発明の熱硬化性樹脂組成物が、硬化剤を含まない、又は上記式（１）で表される構造単位を有するポリマー１００質量％に対し３０質量％を上限として該硬化剤を含むことを意味する。

[0008] 本発明の熱硬化性樹脂組成物が、硬化剤として多官能（メタ）アクリレート化合物、すなわち多官能アクリレート化合物又は多官能メタクリレート化合物を含む場合、当該樹脂組成物から作製される硬化膜の耐熱性の観点から多官能アクリレート化合物が好ましい。

[0009] 本発明はまた、前記熱硬化性樹脂組成物を基板上に塗布した後、加熱手段を用いて前記熱硬化性樹脂組成物バークすることによる、硬化膜、保護膜又は

平坦化膜の作製方法である。

発明の効果

[0010] 本発明の熱硬化性樹脂組成物から作製される硬化膜は、優れた耐薬品性、耐熱性及び透明性を有する。これにより、本発明の熱硬化性樹脂組成物から作製される硬化膜は、その作製工程、又は配線等の周辺装置の形成工程において、溶剤、又は酸もしくはアルカリ溶液等の薬液に曝される処理や、スパッタリング、ドライエッチング、半田リフロー等の高温に曝される処理が行われる場合に、素子が劣化もしくは損傷する可能性を著しく減少できる。また、本発明の熱硬化性樹脂組成物から保護膜又は平坦化膜を作製し、その上にレジストを塗布する場合、及び電極／配線形成工程を行う場合には、レジストとのミキシングの問題、及び薬液による保護膜又は平坦化膜の変形及び剥離といった問題も著しく減少できる。したがって、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、保護膜又は平坦化膜を形成する材料として好適である。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]図1は、段差基板上に本発明の熱硬化性樹脂組成物を塗布し、ベークして作製される硬化膜を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0012] 本発明は、特定のポリマー、該ポリマーに対し0乃至30質量%の硬化剤及び溶剤を含有する熱硬化性樹脂組成物である。以下、各成分の詳細を説明する。本発明の熱硬化性樹脂組成物から溶剤を除いた固形分は通常、0.01質量%乃至80質量%である。

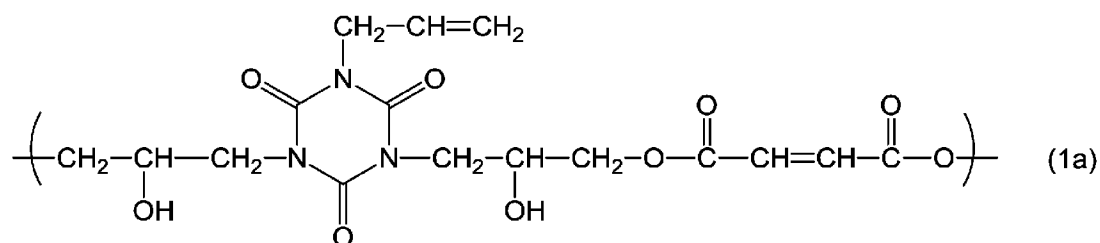
[0013] <ポリマー>

本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれるポリマーは、前記式(1)で表される構造単位を有するポリマーである。前記式(1)において、A¹で表される、炭素原子数2又は3のアルケニル基として、例えばビニル基及びアリル基が挙げられ、炭素原子数2又は3のアルキニル基として、例えばエチニル基(—C≡CH基)及びプロパルギル基(—CH₂—C≡CH基)が挙げられる。さらに前記式(1)において、A²で表される、炭素原子数2のアルケニレ

ン基として、エテンー 1, 2-ジイル基 ($-\text{CH}=\text{CH}-$ 基) が挙げられ、炭素原子数 2 のアルキニレン基として、エチンー 1, 2-ジイル基 ($-\text{C}\equiv\text{C}-$ 基) が挙げられる。

[0014] 前記ポリマーとして、例えば下記式 (1 a) で表される構造単位を有するポリマーが挙げられる。

[化2]



[0015] 前記式 (1 a) で表される構造単位を有するポリマーは、モノアリルジグリシジルイソシアヌレートと、フマル酸、マレイン酸又は無水マレイン酸（ポリマー合成の容易性からフマル酸が好ましい。）との重付加反応、もしくはモノアリルイソシアヌル酸と、フマル酸ジグリシジル又はマレイン酸ジグリシジルとの重付加反応によって製造することができる。

[0016] 前記重付加反応は、前記原料モノマーを、ベンゼン、トルエン、キシレン、乳酸エチル、乳酸ブチル、ピルビン酸メチル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、2-ブタノン、2-ヘプタノン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、3-メトキシプロピオン酸メチル、3-エトキシプロピオン酸エチル及びN-メチルピロリドン等の有機溶剤に溶解させた溶液状態で行なうことが好ましい。そして、この反応においては、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリス(4-メチルフェニル)ホスフィン、トリス(4-ノニルフェニル)ホスフィン、トリス(4-メトキシフェニル)ホスフィン、トリス(2,6-ジメトキシフェニル)ホスフィン、トリフェニルホスフィントリフェニルボラン等のホスフィン類、テトラフェニルホスホニウムクロリド、テトラフェニルホスホニウムブロミド、ベンジルトリフェニルホスホニウムク

ロリド、ベンジルトリフェニルホスホニウムブロミド、エチルトリフェニルホスホニウムクロリド、エチルトリフェニルホスホニウムブロミド、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラ（４－メチルフェニル）ボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラ（４－メトキシフェニル）ボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラ（４－フルオロフェニル）ボレート等の四級ホスホニウム塩類、テトラエチルアンモニウムクロリド、ベンジルトリメチルアンモニウムクロリド、ベンジルトリメチルアンモニウムブロミド、ベンジルトリエチルアンモニウムクロリド、ベンジルトリエチルアンモニウムブロミド、ベンジルトリプロピルアンモニウムクロリド、ベンジルトリプロピルアンモニウムブロミド、テトラメチルアンモニウムクロリド、テトラエチルアンモニウムブロミド、テトラプロピルアンモニウムクロリド、テトラプロピルアンモニウムブロミド等の四級アンモニウム塩類等を触媒として用いることも可能である。前記重付加反応の反応温度及び反応時間は、使用する化合物、濃度等に依存するものであるが、反応時間０．１時間乃至１００時間、反応温度２０℃乃至２００℃の範囲から適宜選択される。上記触媒を用いる場合、前記重付加反応に使用する原料モノマーの全質量に対して０．００１質量％乃至３０質量％の範囲で用いることができる。このようにして得られるポリマーは、通常、上記有機溶剤に溶解した溶液状態であり、この状態で単離することなく、本発明の熱硬化性樹脂組成物に用いることもできる。

[0017] また、上記のようにして得られたポリマーの溶液を、攪拌させたヘキサン、ジエチルエーテル、トルエン、メタノール、水等の貧溶媒に投入して当該ポリマーを再沈殿させ、生成した沈殿物をデカンテーション又はろ過し、必要に応じて洗浄後、常圧又は減圧下で常温乾燥又は加熱乾燥することで、当該ポリマーをオイル状物又は粉体とすることができる。このような操作により、前記ポリマーと共存する未反応化合物や上記触媒を除去することができる。本発明においては、前記ポリマーのオイル状物又は粉体をそのまま用いてもよく、あるいはそのオイル状物又は粉体を、例えば後述する溶剤に再溶解

して溶液の状態として用いてもよい。

[0018] また、前記重付加反応に使用するモノアリルジグリシジルイソシアヌレートと、フマル酸、マレイン酸又は無水マレイン酸の割合としては、モル比で、好ましくは3 : 2 ~ 2 : 3であり、より好ましくは5 : 4 ~ 4 : 5であり、または1 : 1である。

[0019] また、前記重付加反応に使用するモノアリルイソシアヌル酸と、フマル酸ジグリシジル又はマレイン酸ジグリシジルの割合としては、モル比で、好ましくは3 : 2 ~ 2 : 3であり、より好ましくは5 : 4 ~ 4 : 5であり、または1 : 1である。

[0020] 前記ポリマーの重量平均分子量は通常、500乃至200,000であり、好ましくは1,000乃至100,000である。なお、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ー（GPC）により、標準試料としてポリスチレンを用いて得られる値である。

[0021] 前記ポリマーは、前記式（1）で表される構造単位を有するポリマーを用いる限り、単独で使用しても、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0022] また、本発明の熱硬化性樹脂組成物における前記ポリマーの含有量は、当該樹脂組成物の固形分中の含有量に基づいて通常、30質量%乃至100質量%であり、好ましくは50質量%乃至100質量%である。

[0023] 本発明の熱硬化性樹脂組成物の調製方法は、特に限定されないが、例えば、前記式（1）で表される構造単位を有するポリマーを溶剤に溶解し、均一な溶液とする方法が挙げられる。さらに、この調製方法の適当な段階において、必要に応じて、硬化剤その他の添加剤を更に添加して混合する方法が挙げられる。

[0024] <溶剤>

本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる溶剤としては、当該樹脂組成物に含まれるポリマーを溶解するものであれば特に限定されない。そのような溶剤としては、例えば、エチ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エチルエーテル、メチルセロソルブアセテート、エチルセロソル

ブアセテート、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコール、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート、プロピレングリコールプロピルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテルアセテート、トルエン、キシレン、メチルエチルケトン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、2-ヒドロキシプロピオン酸エチル、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオン酸エチル、エトキシ酢酸エチル、ヒドロキシ酢酸エチル、2-ヒドロキシ-3-メチルブタン酸メチル、3-メトキシプロピオン酸メチル、3-メトキシプロピオン酸エチル、3-エトキシプロピオン酸エチル、3-エトキシプロピオン酸メチル、ピルビン酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、乳酸エチル、乳酸ブチル、2-ヘプタノン、 γ -ブチロラクトン、N-メチルピロリドン、及びN-エチルピロリドンを挙げることができる。これらの溶剤は、単独で使用しても、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0025] 前記溶剤の中でも、本発明の熱硬化性樹脂組成物を基板上に塗布して形成される塗膜のレベリング性の向上の観点から、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、2-ヘプタノン、乳酸エチル、乳酸ブチル、ピルビン酸メチル、3-メトキシプロピオン酸メチル、3-エトキシプロピオン酸エチル、シクロペンタノン、シクロヘキサノン及び γ -ブチロラクトンが好ましい。

[0026] <硬化剤>

また、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、当該樹脂組成物に含まれるポリマーによって硬化膜の形成が可能であるが、硬化性を向上させる目的でさらに硬化剤を含有することもできる。当該硬化剤としては、例えば、分子内に2個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート化合物

、又は分子内に2個以上のブロックイソシアネート基を有する多官能ブロックイソシアネート化合物を挙げることができる。硬化剤としてモノマー化合物が用いられる場合、当該モノマー分子内の(メタ)アクリロイル基又はブロックイソシアネート基の数は、例えば2個乃至15個である。これらの硬化剤は、単独で又は2種以上を組み合わせる用いることができる。なお、本明細書において、(メタ)アクリロイル基はメタクリロイル基及びアクリロイル基を意味し、(メタ)アクリレートはメタクリレート及びアクリレートを意味し、(メタ)アクリル酸はメタクリル酸及びアクリル酸を意味する。

[0027] 前記多官能(メタ)アクリレート化合物としては、例えば、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、テトラエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、プロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、1,4-ブタンジオールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ(メタ)アクリレート、トリシクロデカンジメタノールジ(メタ)アクリレート、ジシクロペンタニルジ(メタ)アクリレート、ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、エトキシ化ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、プロポキシ化ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、ビスフェノールSジ(メタ)アクリレート、フタル酸ジ(メタ)アクリレート、9,9-ビス[4-(2-(メタ)アクリロイルオキシエトキシ)フェニル]フルオレン、グリセリンジ(メタ)アクリレート、グリセリントリ(メタ)アクリレート、グリセリンエトキシトリ(メタ)アクリレート、グリセリンプロポキシトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパンエトキシトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパンプロポキシトリ(メタ)アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ(メタ)アク

リレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールエトキシテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ソルビトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリス（2-（メタ）アクリロイルオキシエチル）イソシアヌレート、及び ϵ -カプロラクトン変性トリス-（2-（メタ）アクリロイルオキシエチル）イソシアヌレートを挙げることができる。

[0028] また、前記多官能（メタ）アクリレート化合物としては、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、グリセリンジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート等のヒドロキシ基を有する（メタ）アクリレート、

又は多官能（メタ）アクリレートに、2, 4-トリレンジイソシアネート、2, 6-トリレンジイソシアネート、1, 3-キシレンジイソシアネート、1, 4-キシレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート、m-フェニレンジイソシアネート、p-フェニレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、4, 4'-ジベンジルジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、2, 4, 4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、1, 3-ビス（イソシアナトメチル）ベンゼン、1, 3-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン等のジイソシアネート化合物を反応させて合成した多官能ウレタン（メタ）アクリレートも挙げることができる。

[0029] また、前記多官能（メタ）アクリレート化合物としては、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、トリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエ

ーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、ビスフェノールEジグリシジルエーテル、ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビスフェノールSジグリシジルエーテル、水添ビスフェノールAジグリシジルエーテル、フタル酸ジグリシジリエステル、テレフタル酸ジグリシジリエステル、トリス(2, 3-エポキシプロピル)イソシアヌレート、3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、ブタンテトラカルボン酸テトラ(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)修飾ε-カプロラク톤等の2個以上のエポキシ基を有する化合物に、(メタ)アクリル酸を反応させて合成した多官能エポキシ(メタ)アクリレートも挙げることができる。

[0030] また、前記多官能(メタ)アクリレート化合物としては、グリシジル(メタ)アクリレート、グリシジロキシブチル(メタ)アクリレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル(メタ)アクリレート等のエポキシ基を有する(メタ)アクリレートモノマーをラジカル重合して得られるホモポリマー又はコポリマーに、(メタ)アクリル酸を反応させて合成した多官能エポキシ(メタ)アクリレートも挙げることができる。ここで、コポリマーとは、2種以上のモノマーを重合して得られるポリマーを意味する。コポリマーは、エポキシ基を有する2種以上の(メタ)アクリレートを重合して得られるコポリマーであってもよいし、エポキシ基を有する(メタ)アクリレート及びその他の(メタ)アクリレートを重合して得られるコポリマーであってもよい。

[0031] 前記多官能(メタ)アクリレート化合物の市販品としては、例えば、下記製品を挙げることができる。

アロニックス〔登録商標〕M-208、同M-210、同M-211B、同M-215、同M-220、同M-225、同M-233、同M-240、同M-245、同M-260、同M-270、同M-303、同M-305

、同M-306、同M-309、同M-310、同M-313、同M-315、同M-321、同M-350、同M-360、同M-400、同M-402、同M-403、同M-404、同M-405、同M-406、同M-408、同M-450、同M-452、同M-460、同M-510、同M-520、同M-1100、同M-1200、同M-1210、同M-1310、同M-1600、同M-1960、同M-6100、同M-6200、同M-6250、同M-6500、同M-7100、同M-7300K、同M-8030、同M-8060、同M-8100、同M-8530、同M-8560、同M-9050（以上、東亜合成（株）製）。

[0032] KAYARAD〔登録商標〕NPGDA、同PEG400DA、同FM-400、同R-167、同HX-220、同HX-620、同R-526、同R-551、同R-712、同R-604、同R-684、同GPO-303、同TMPTA、同HDDA、同TPGDA、同KS-HDDA、同KS-TPGDA、同MANDA、同THE-330、同TPA-320、同TPA-330、同PET-30、同T-1420、同T-1420(T)、同RP-1040、同DPHA、同DPEA-12、同D-310、同D-330、同DPCA-20、同DPCA-30、同DPCA-60、同DPCA-120、同FM-700、同DN-0075、同DN-2475、同TC-120S、同R-115、同R-130、同R-381、同EAM-2160、同CCR-1291H、同CCR-1235、同ZAR-1035、同ZAR-2000、同ZFR-1401H、同ZFA-1491H、同ZCR-1569H、同ZCR-1601H、同ZCR-1797H、同ZCR-1798H、同UXE-3000、同UXE-3024、同UX-3204、同UX-4101、同UXT-6100、同UX-6101、同UX-7101、同UX-8101、同UX-0937、同UXF-4001-M35、同UXF-4002、同DPHA-40H、同UX-5000、同UX-5102D-M20、同UX-5103D、同UX-5005（以上、日本化薬（株）製）。

- [0033] NKエステルA-200、同A-400、同A-600、同A-1000、同A-1500、同A-2000、同ABE-300、同A-BPE-4、同A-BPE-6、同A-BPE-10、同A-BPE-20、同A-BPE-30、同A-BPEF、同A-BPP-3、同A-DCP、同A-DOD-N、同A-HD-N、同A-NOD、同A-GLY-3E、同A-GLY-9E、同A-GLY-20E、同A-TMPT、同A-TMPT-3EO、同A-TMPT-9EO、同ATM-4E、同ATM-35E、同APG-100、同APG-200、同APG-400、同APG-700、同A-PTMG-65、同A-1000PER、同A-B1206PE、同701A、同A-9300、同A-9300-1CL、同A-9300-6CL、同A-9530、同ADP-51EH、同ATM-31EH、同A-TMM-3、同A-TMM-3L、同A-TMM-3LM-N、同AD-TMP、同A-TMMT、同A-9550、同A-DPH、同A-DPH-12E、同1G、同2G、同3G、同4G、同9G、同14G、同23G、同BPE-80N、同BPE-100、同BPE-100N、同BPE-200、同BPE-500、同BPE-900、同BPE-1300N、同DCP、同DOD-N、同HD-N、同NOD-N、同NPG、同1206PE、同701、同3PG、同9PG、同TMPT、NKエコノマーA-PG5009E、同A-PG5027E、同A-PG5054E、NKオリゴ U-2PPA、同U-6LPA、同U-10HA、同U-10PA、同UA-1100H、同U-4H、同U-6H、同U-4HA、同U-6HA、同U-15HA、同UA-32P、同UA-33H、同UA-53H、同U-200PA、同U-324A、同UA-160TM、同UA-290TM、同UA-4200、同UA-4400、同UA-122P、同UA-7100、同UA-W2A（以上、新中村化学工業（株）製）。
- [0034] ビスコート#195、同#230、同#260、同#310HP、同#335HP、同#700HV、同#540、同#802、同#295、同#300、同#360、同#230D、BAC-45、SPDBA-S30、ST

AR-501（以上、大阪有機化学工業（株）製）。

[0035] ライトエステル P-2M、同EG、同2EG、同3EG、同4EG、同9EG、同14EG、同1.4BG、同NP、同1.6HX、同1.9ND、同G-101P、同G-201P、同BP-2EMK、同TMP、ライトアクリレート〔登録商標〕3EG-A、同4EG-A、同9EG-A、同14EG-A、同PTMGA-250、同NP-A、同MPD-A、同1.6HX-A、同1.9ND-A、同MOD-A、同DCP-A、同BP-4EAL、同BP-4PA、同HPP-A、同G-201P、同TMP-A、同PE-3A、同PE-4A、同DPE-6A、エポキシエステル 40EM、同70PA、同200PA、同80MFA、同3002M(N)、同3002A(N)、同3000MK、同3000A、同EX-0205、AH-600、AT-600、UA-306H、UA-306T、UA-306I、UA-510H、UF-8001G、DAUA-167（以上、共栄社化学（株）製）。

[0036] アートレジン〔登録商標〕UN-333、同UN-350、同UN-1255、同UN-2600、同UN-2700、同UN-5200、同UN-5500、同UN-5590、同UN-5507、同UN-6060PTM、同UN-6200、同UN-6202、同UN-6300、同UN-6301、同UN-7600、同UN-7700、同UN-9000H、同UN-9000PEP、同UN-9200A、同UN-3320HA、同UN-3200HB、同UN-3320HC、同UN-3320HS、同UN-904、同UN-906S、同UN-901T、同UN-905、UN-906、同UN-952、同HDP-4T、同HMP-2、同H-61、同HDP-M20（以上、根上工業（株）製）。

[0037] 紫光〔登録商標〕UV-1400B、同UV-1700B、同UV-2000B、同UV-2010B、同UV-2750B、同UV-3000B、同UV-3200B、同UV-3210EA、同UV-3300B、同UV-3310B、同UV-3500BA、同UV-3520TL、同UV-36

10D80、同UV-3630D80、同UV-3640PE80、同UV-3700B、同UV-6100B、同UV-6300B、同UV-6640B、同UV-7000、同UV-7000B、同UV-7461TE、同UV-7510B、同UV-7550B、同UV-7600B、同UV-7605B、同UV-7610B、同UV-7620EA、同UV-7630B、同UV-7640B、同UV-7650B、同UV-NS001、同UV-NS034、同UV-NS054、同UV-NS063、同UV-NS077（以上、日本合成化学工業（株）製）。

[0038] ビームセット〔登録商標〕243NS、同255、同261、同271、同502H、同504H、同505A-6、同550B、同575、同577、同700、同710、同730、同750、同AQ-17、同EM-90、同EM-92、同371、同381（以上、荒川化学工業（株）製）。

[0039] ファンクリル〔登録商標〕FA-124AS、同FA-129AS、同FA-222A、同FA-240A、同FA-P240A、同FA-P270A、同FA-321A、同FA-324A、同FA-PTG9A、同FA-731A、同FA-121M、同FA-124M、同FA-125M、同FA-220M、同FA-240M、同FA-320M、同FA-321M、同FA-3218M、同FA-PTG9M、同FA-137M（以上、日立化成工業（株）製）。

[0040] SR212、SR213、SR230、SR238F、SR259、SR268、SR272、SR306H、SR344、SR349、SR508、CD560、CD561、CD564、SR601、SR602、SR610、SR833S、SR9003、CD9043、SR9045、SR9209、SR205、SR206、SR209、SR210、SR214、SR231、SR239、SR248、SR252、SR297、SR348、SR480、CD540、CD541、CD542、SR603、SR644、SR9036、SR351S、SR368、SR415、SR444、SR454、SR492、SR499、CD501、SR502、SR9

020、CD9021、SR9035、SR350、SR295、SR355、SR399、SR494、SR9041、SR9041、CN929、CN961E75、CN961H81、CN962、CN963、CN963A80、CN963B80、CN963E75、CN963E80、CN963J85、CN964、CN964E75、CN964A85、CN965、CN965A80、CN966A80、CN966H90、CN966J75、CN966R60、CN968、CN980、CN981、CN981A75、CN981B88、CN982、CN982A75、CN982B88、CN982E75、CN983、CN985B88、CN996、CN9001、CN9002、CN9788、CN9893、CN970A60、CN970E60、CN971、CN971A80、CN972、CN973A80、CN973H85、CN973J75、CN975、CN977C70、CN978、CN9782、CN9783、CN104、CN104A80、CN104B80、CN111、CN112C60、CN115、CN116、CN118、CN120、CN120A60、CN120A75、CN120B60、CN120B80、CN120C60、CN120C80、CN120D80、CN102E50、CN120M50、CN124、CNUVE151、CNUVE151/80、CN151、CN2203、CN2270、CN2271、CN2273、CN2274、CN307、CN371、CN550、CN551、SB401、SB402、SB404、SB500E50、SB500K60、SB510E35、SB520E35、SB520M35（以上、サートマー社製）。

[0041] DPGDA、HODA、TPGDA、PEG400DA-D、HPNDA、PETIA、PETRA、TMPTA、TMPEOTA、OTA480、DPHA、IRR214-K、IRR679、IRR742、IRR793、(ACA) Z200M、(ACA) Z230AA、(ACA) Z250、(ACA) Z251、(ACA) Z300、(ACA) Z320、(ACA) Z254F、EBERCRYL〔登録商標〕145、同150、同11、同

135、同40、同140、同1142、同180、同204、同205、同210、同215、同220、同230、同244、同245、同264、同265、同270、同280/151B、同284、同285、同294/25HD、同1259、同1290、同4820、同4858、同5129、同8210、同8254、同8301R、同8307、同8402、同8405、同8411、同8465、同8800、同8804、同8807、同9260、同9270、同8311、同8701、同9227EA、同436、同438、同446、同450、同524、同525、同770、同800、同810、同811、同812、同1830、同846、同851、同852、同853、同1870、同884、同885、同600、同605、同645、同648、同860、同1606、同3500、同3603、同3608、同3700、同3701、同3702、同3703、同3708、同6040、同8110、同271、同1258、同1291、同4100、同4200、同4500、同4680、同4220、同4265、同4491、同4513、同4587、同4666、同4683、同4738、同4740、同4250、同4510、KRM〔登録商標〕8200、同8200AE、同8296、同8452、同8904、同8667、同8912、同8981、同8762、同8713B、同8528（以上、ダイセル・オルネクス（株）製）。

[0042] BAEA-100、BAEM-100、BAEM-50、BEEM-50、BFEA-50、HPEA-100、CNEA-100、PNEM-50、RNEA-100、TEA-100、KUA-4I、KUA-6I、KUA-9N、KUA-10H、KUA-15N、KUA-C2I、KUA-PC2I、KUA-PEA2I、KUA-PEB2I、KUA-PEC2I、RP-274S、RP-310（以上、ケーエスエム（株）製）。

[0043] これらの多官能（メタ）アクリレート化合物は単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0044] 前記多官能ブロックイソシアネート化合物とは、イソシアネート基が適当な

保護基によりブロックされたイソシアネート基を一分子中2個以上有し、熱硬化時の高温に曝されると、保護基（ブロック部分）が熱解離して外れ、生じたイソシアネート基が樹脂との間で架橋反応を起こすものである。

[0045] このような多官能ブロックイソシアネート化合物は、例えば、一分子中2個以上のイソシアネート基を有する多官能イソシアネート化合物に対して適当なブロック剤を反応させて得ることができる。

[0046] 前記多官能イソシアネート化合物としては、例えば、1, 4-テトラメチレンジイソシアネート、1, 5-ペンタメチレンジイソシアネート、1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート、2, 2, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート、1, 3, 6-ヘキサメチレントリイソシアネート、リジンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、4, 4'-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、1, 3-ビス（イソシアネートメチル）シクロヘキサン、1, 4-シクロヘキシルジイソシアネート、2, 6-ビス（イソシアネートメチル）テトラヒドロジシクロペンタジエン、ビス（イソシアネートメチル）ジシクロペンタジエン、ビス（イソシアネートメチル）アダマンタン、2, 5-ジイソシアネートメチルノルボルネン、ノルボルナンジイソシアネート、ジシクロヘプタントリイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、2, 4-トリレンジイソシアネート、2, 6-トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、1, 5-ナフタレンジイソシアネート、p-フェニレンジイソシアネート、1, 3-ビス（イソシアネートメチル）ベンゼン、ジアニシジンジイソシアネート、3, 3'-ジメチルジフェニル-4, 4'-ジイソシアネート、ジフェニルエーテルジイソシアネート、2, 6-ビス（イソシアネートメチル）デカヒドロナフタレン、ビス（ジイソシアネートトリル）フェニルメタン、1, 1'-メチレンビス（3-メチル-4-イソシアネートベンゼン）、1, 3-ビス（1-イソシアネート-1-メチルエチル）ベンゼン、1, 4-ビス（1-イソシアネート-1-メチルエチル）ベンゼン、4, 4'-ビフェニレンジイソシアネート、

3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビフェニレンジイソシアネート、3, 3'-ジメトキシ-4, 4'-ビフェニレンジイソシアネート、ビス（イソシアネートメチル）チオフェン、ビス（イソシアネートメチル）テトラヒドロチオフェン、及びこれらの変性化合物（例えば、イソシアヌレート体、ビウレット体、エチレングリコールアダクト体、プロピレングリコールアダクト体、トリメチロールプロパンアダクト体、エタノールアミンアダクト体、ポリエステルポリオールアダクト体、ポリエーテルポリオールアダクト体、ポリアミドアダクト体、ポリアミンアダクト体）を挙げることができる。

[0047] 前記ブロック剤としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、*n*-ブタノール、ヘプタノール、ヘキサノール、2-エトキシヘキサノール、シクロヘキサノール、オクタノール、イソノニルアルコール、ステアリルアルコール、ベンジルアルコール、2-エトキシエタノール、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸アミル、エチ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エチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル）、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、*N*, *N*-ジメチルアミノエタノール、*N*, *N*-ジエチルアミノエタノール、*N*, *N*-ジブチルアミノエタノール等のアルコール類、フェノール、エチルフェノール、プロピルフェノール、ブチルフェノール、オクチルフェノール、ノニルフェノール、ニトロフェノール、クロロフェノール、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、キシレノール等のフェノール類、 α -ピロリドン、 β -ブチロラクタム、 β -プロピオラクタム、 γ -ブチロラクタム、 δ -バレロラクタム、 ϵ -カプロラクタム等のラクタム類、アセトンオキシム、メチルエチルケトンオキシム、メチルイソブチルケトンオキシム、ジエチルケトンオキシム、シクロヘキサノンオキシム、アセトフェノンオキシム、ベンゾフェノンオキシム等のオキシム類、ピラゾール、3, 5-ジメチルピラゾール

、 3-メチルピラゾール、 4-ベンジル-3, 5-ジメチルピラゾール、 4-ニトロ-3, 5-ジメチルピラゾール、 4-ブロモ-3, 5-ジメチルピラゾール、 3-メチル-5-フェニルピラゾール等のピラゾール類、 ブチルメルカプタン、 ヘキシルメルカプタン、 ドデシルメルカプタン、 ベンゼンチオール等のメルカプタン類、 マロン酸ジエステル、 アセト酢酸エステル、 マロン酸ジニトリル、 アセチルアセトン、 メチレンジスルホン、 ジベンゾイルメタン、 ジピバロイルメタン、 アセトンジカルボン酸ジエステル等の活性メチレン系化合物類、 ジブチルアミン、 ジイソプロピルアミン、 ジ-tert-ブチルアミン、 ジ(2-エチルヘキシル)アミン、 ジシクロヘキシルアミン、 ベンジルアミン、 ジフェニルアミン、 アニリン、 カルバゾール等のアミン類、 イミダゾール、 2-エチルイミダゾール等のイミダゾール類、 メチレンイミン、 エチレンイミン、 ポリエチレンイミン、 プロピレンイミン等のイミン類、 アセトアニリド、 アクリルアミド、 酢酸アミド、 ダイマー酸アミド等の酸アミド類、 コハク酸イミド、 マレイン酸イミド、 フタル酸イミド等の酸イミド類、 尿素、 チオ尿素、 エチレン尿素等の尿素化合物類を挙げることができる。また、 ウレトジオン結合(イソシアネート基の2量化)による内部ブロック型であってもよい。

[0048] 前記多官能ブロックイソシアネート化合物の市販品としては、例えば、下記製品を挙げることができる。

タケネート〔登録商標〕B-815N、同B-830、同B-842N、同B-846N、同B-870、同B-870N、同B-874、同B-874N、同B-882、同B-882N、同B-5010、同B-7005、同B-7030、同B-7075(以上、三井化学(株)製)。

[0049] デュラネート〔登録商標〕ME20-B80S、同MF-B60B、同MF-B60X、同MF-B90B、同MF-K60B、同MF-K60X、同SBN-70D、同17B-60P、同17B-60PX、同TPA-B80E、同TPA-B80X、同E402-B80B、同E402-B80T、同K6000(以上、旭化成ケミカルズ(株)製)、

コロネート〔登録商標〕2503、同2507、同2512、同2513、同2515、同2520、同2554、同BI-301、同AP-M、ミリオネート MS-50（以上、東ソー（株）製）。

[0050] バーノック〔登録商標〕D-500、同D-550、同DB-980K（以上、DIC（株）製）。

[0051] スミジュール〔登録商標〕BL-3175、同BL-4165、同BL-4265、同BL-1100、同BL-1265、デスモジュール〔登録商標〕TPLS-2957、同TPLS-2062、同TPLS-2078、同TPLS-2117、同BL-3475、デスモサーム〔登録商標〕2170、同2265（以上、住化バイエルウレタン（株）製）。

[0052] TRI XENE BI-7641、同BI-7642、同BI-7986、同BI-7987、同BI-7950、同BI-7951、同BI-7960、同BI-7961、同BI-7963、同BI-7981、同BI-7982、同BI-7984、同BI-7986、同BI-7990、同BI-7991、同BI-7992、同BI-7770、同BI-7772、同BI-7779、同DP9C/214（以上、バクセンデンケミカルズ社製）。

[0053] VESTANAT〔登録商標〕B1358A、同B1358/100、同B1370、VESTAGON〔登録商標〕B1065、同B1400、同B1530、同BF1320、同BF1540（以上、エボニックインダストリーズ社製）。

[0054] また、前記多官能ブロックイソシアネート化合物としては、ブロックイソシアネート基を有する（メタ）アクリレートを経ラジカル重合して得られるホモポリマー又はコポリマーを挙げることができる。ここで、コポリマーとは、2種以上のモノマーを経重合して得られるポリマーを意味する。コポリマーは、ブロックイソシアネート基を有する2種以上の（メタ）アクリレートを重合して得られるコポリマーであってもよいし、ブロックイソシアネート基を有する（メタ）アクリレート及びその他の（メタ）アクリレートを重合して

得られるコポリマーであってもよい。このようなブロックイソシアネート基を有する（メタ）アクリレートの市販品としては、例えば、昭和電工（株）製カレンズ〔登録商標〕MOI-BM、同AOI-BM、同MOI-BP、同AOI-BP、同MOI-DEM、同MOI-CP、同MOI-MP、同MOI-OEt、同MOI-OBu、同MOI-OiPrを挙げることができる。

[0055] これらの多官能ブロックイソシアネート化合物は単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0056] 前記硬化剤が使用される場合、本発明の熱硬化性樹脂組成物における含有量は、当該樹脂組成物の固形分中の含有量に基づいて、通常1質量%乃至30質量%であり、好ましくは1質量%乃至20質量%であり、又は1質量%乃至10質量%である。

[0057] <その他の添加剤>

また、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、塗布性を向上させる目的で、界面活性剤を含有することもできる。当該界面活性剤としては、例えば、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルエーテル、ポリオキシエチレンセチルエーテル、ポリオキシエチレンオレイルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル類、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックコポリマー類、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタンモノステアレート、ソルビタンモノオレエート、ソルビタントリオレエート、ソルビタントリステアレート等のソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンモノステアレート、ポリオキシエチレンソルビタントリオレエート、ポリオキシエチレンソルビタントリステアレート等のポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル類等のノニオン系界面活性剤、エフトップ〔登録商標〕

EF301、同EF303、同EF352（以上、三菱マテリアル電子化成（株）製）、メガファック〔登録商標〕F-171、同F-173、同R-30、同R-40、同R-40-LM（以上、DIC（株）製）、フロラードFC430、同FC431（以上、住友スリーエム（株）製）、アサヒガード〔登録商標〕AG710、サーフロン〔登録商標〕S-382、同SC101、同SC102、同SC103、同SC104、同SC105、同SC106（旭硝子（株）製）、FTX-206D、FTX-212D、FTX-218、FTX-220D、FTX-230D、FTX-240D、FTX-212P、FTX-220P、FTX-228P、FTX-240G、DFX-18等のフタージェントシリーズ（（株）ネオス製）等のフッ素系界面活性剤、及びオルガノシロキサンポリマーKP341（信越化学工業（株）製）を挙げることができる。これらの界面活性剤は、単独で使用しても、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0058] 前記界面活性剤が使用される場合、本発明の熱硬化性樹脂組成物における含有量は、当該樹脂組成物の固形分中の含有量に基づいて、通常0.001質量%乃至3質量%であり、好ましくは0.01質量%乃至2質量%であり、より好ましくは0.03質量%乃至1質量%である。

[0059] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、本発明の効果を損なわない限りにおいて、必要に応じて、ラジカル重合開始剤、酸化合物、光安定剤、紫外線吸収剤、増感剤、可塑剤、酸化防止剤、密着助剤、消泡剤等の添加剤を含むことができる。

[0060] <硬化膜、保護膜及び平坦化膜の作製方法>

本発明の熱硬化性樹脂組成物を用いた硬化膜、保護膜及び平坦化膜の作製方法について説明する。基板（例えば、半導体基板、ガラス基板、石英基板、シリコンウエハー及びこれらの表面に各種金属膜又はカラーフィルター等が形成された基板）上に、スピナー、コーター等の適当な塗布方法により本発明の熱硬化性樹脂組成物を塗布後、ホットプレート、オーブン等の加熱手段を用いてベークして硬化させて、硬化膜、保護膜、又は平坦化膜を作製する

。ベーク条件は、ベーク温度80℃乃至300℃、ベーク時間0.5分乃至60分間の中から適宜選択される。異なるベーク温度で2ステップ以上ベーク処理してもよい。また、本発明の熱硬化性樹脂組成物から作製される膜の膜厚としては、例えば0.001 μ m乃至1,000 μ mであり、好ましくは0.01 μ m乃至100 μ mであり、より好ましくは0.1 μ m乃至10 μ mである。

実施例

[0061] 以下に実施例及び比較例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものでない。

〔下記合成例で得られた共重合体の重量平均分子量の測定〕

装置：日本分光（株）製GPCシステム

カラム：Shodex〔登録商標〕KF-804L及び803L

カラムオーブン：40℃

流量：1mL／分

溶離液：テトラヒドロフラン

[0062] [ポリマーの合成]

＜合成例1＞

モノアリルジグリシジルイソシアヌレート（MA-DGIC（四国化成工業（株）製））22.0g、フマル酸9.5g及びベンジルトリエチルアンモニウムクロリド0.9gをプロピレングリコールモノメチルエーテル129.7gに溶解させた後、この溶液を加熱還流しながら6時間反応させて、ポリマーの溶液（固形分濃度20質量％）を得た。得られたポリマーの重量平均分子量M_wは7,500であった。

[0063] ＜合成例2＞

モノアリルジグリシジルイソシアヌレート（MA-DGIC（四国化成工業（株）製））20.0g、コハク酸9.7g及びベンジルトリエチルアンモニウムクロリド0.9gをプロピレングリコールモノメチルエーテル130.4gに溶解させた後、この溶液を加熱還流しながら6時間反応させて、ポ

リマーの溶液（固形分濃度 20 質量％）を得た。得られたポリマーの重量平均分子量 M_w は 2,500 であった。

[0064] <合成例 3>

テレフタル酸ジグリシジル（デナコール〔登録商標〕EX-711（ナガセケムテックス（株）製））22.0 g、フマル酸 9.6 g 及びベンジルトリエチルアンモニウムクロリド 0.9 g をプロピレングリコールモノメチルエーテル 130.1 g に溶解させた後、この溶液を加熱還流しながら 6 時間反応させて、ポリマーの溶液（固形分濃度 20 質量％）を得た。得られたポリマーの重量平均分子量 M_w は 5,100 であった。

[0065] <合成例 4>

2-[(3,5-ジメチルピラゾリル)カルボニルアミノ]エチルメタクリレート（カレンズ〔登録商標〕MOI-BP（昭和電工（株）製））40.0 g 及び 2,2'-アゾビスイソブチロニトリル 2.6 g をプロピレングリコールモノメチルエーテル 79.1 g に溶解させた後、この溶液を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 48.7 g を 80℃ に保持したフラスコ中に 3 時間かけて滴下した。滴下終了後、さらに 18 時間反応させて、ポリマーの溶液（固形分濃度 25 質量％）を得た。得られたポリマーの重量平均分子量 M_w は 14,500 であった。

[0066] <合成例 5>

メチルメタクリレート 40.0 g、2-ヒドロキシエチルメタクリレート 4.7 g、メタクリル酸 2.4 g 及び 2,2'-アゾビスイソブチロニトリル 3.1 g をプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート 55.7 g に溶解させた後、この溶液を、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート 55.7 g を 70℃ に保持したフラスコ中に 4 時間かけて滴下した。滴下終了後、さらに 18 時間反応させて、ポリマーの溶液（固形分濃度 30 質量％）を得た。得られたポリマーの重量平均分子量 M_w は 9,300 であった。

[0067] <合成例 6>

スチレン 22.0 g、2-ヒドロキシエチルメタクリレート 13.7 g、2-[(3,5-ジメチルピラゾリル)カルボニルアミノ]エチルメタクリレート(カレンズ〔登録商標〕MOI-BP(昭和電工(株)製)) 26.5 g及び2,2'-アゾビスイソブチロニトリル 2.8 gをプロピレングリコールモノメチルエーテル 65.1 gに溶解させた後、この溶液を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 32.5 gを70℃に保持したフラスコ中に4時間かけて滴下した。滴下終了後、さらに18時間反応させて、ポリマーの溶液(固形分濃度40質量%)を得た。得られたポリマーの重量平均分子量M_wは25,000であった。

[0068] [熱硬化性樹脂組成物の調製]

<実施例1>

合成例1で得られたポリマーの溶液 20.0 g及び界面活性剤としてDFX-18((株)ネオス製) 0.01 gを、プロピレングリコールモノメチルエーテル 7.5 g及び乳酸エチル 5.9 gに溶解させて溶液とした。その後、孔径0.10 μmのポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。本実施例では硬化剤を添加しない。

[0069] <実施例2>

合成例1で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能アクリレート化合物であるKAYARAD〔登録商標〕DPHA(日本化薬(株)製) 0.6 g及び界面活性剤としてDFX-18((株)ネオス製) 0.01 gを、プロピレングリコールモノメチルエーテル 11.1 g及び乳酸エチル 6.8 gに溶解させて溶液とした。その後、孔径0.10 μmのポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0070] <実施例3>

合成例1で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能アクリレート化合物であるビスコート#802(大阪有機化学工業(株)製) 0.6 g及び界面活性剤としてDFX-18((株)ネオス製) 0.01 gを、

プロピレングリコールモノメチルエーテル 11.1 g 及び乳酸エチル 6.8 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0071] <実施例 4>

合成例 1 で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能ウレタンアクリレート化合物である UA-510H（共栄社化学（株）製）0.6 g 及び界面活性剤として DFX-18（（株）ネオス製）0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 11.1 g 及び乳酸エチル 6.8 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0072] <実施例 5>

合成例 1 で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能ブロックイソシアネート化合物である TRIXENE BI-7982（プロピレングリコールモノメチルエーテル溶液、固形分濃度 70 質量%）（バクセンデンケミカルズ社製）0.8 g 及び界面活性剤として DFX-18（（株）ネオス製）0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 10.8 g 及び乳酸エチル 6.8 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0073] <実施例 6>

合成例 1 で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能ブロックイソシアネート化合物であるタケネート〔登録商標〕B-882N（酢酸ブチル及びソルベントナフサ溶液、固形分濃度 70 質量%）（三井化学（株）製）0.8 g 及び界面活性剤として DFX-18（（株）ネオス製）0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 10.8 g 及び乳酸エチル 6.8 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0074] <実施例 7>

合成例 1 で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤として多官能ブロックイソシアネート化合物である合成例 4 で得られたポリマーの溶液 2.4 g 及び界面活性剤として DFX-18 ((株) ネオス製) 0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 9.3 g 及び乳酸エチル 6.8 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。

[0075] <比較例 1>

合成例 2 で得られたポリマーの溶液 20.0 g 及び界面活性剤として DFX-18 ((株) ネオス製) 0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 7.5 g 及び乳酸エチル 5.9 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、樹脂組成物を調製した。本比較例で用いたポリマーは、前記式 (1) で表される構造単位を有さない。

[0076] <比較例 2>

合成例 3 で得られたポリマーの溶液 20.0 g 及び界面活性剤として DFX-18 ((株) ネオス製) 0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 7.5 g 及び乳酸エチル 5.9 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、樹脂組成物を調製した。本比較例で用いたポリマーは、前記式 (1) で表される構造単位を有さない。

[0077] <比較例 3>

合成例 1 で得られたポリマーの溶液 20.0 g、硬化剤としてメチル化メラミン樹脂 (ニカラック [登録商標] MW-390 ((株) 三和ケミカル製)) 0.6 g、硬化触媒として p-トルエンスルホン酸一水和物 0.06 g 及び界面活性剤として DFX-18 ((株) ネオス製) 0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 11.4 g 及び乳酸エチル 6.9 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロ

ィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。本比較例で用いた硬化剤は、多官能（メタ）アクリレート化合物及び多官能ブロックイソシアネート化合物のいずれにも該当しない。

[0078] <比較例 4>

合成例 5 で得られたポリマーの溶液 10.0 g 及び硬化剤としてメチルメラミン樹脂（ニカラック〔登録商標〕MX-706（2-プロパノール溶液、固形分濃度 70 質量%）（（株）三和ケミカル製））0.9 g 及び界面活性剤として DFX-18（（株）ネオス製）0.01 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 13.0 g 及びプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート 6.2 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。本比較例で用いたポリマーは、前記式（1）で表される構造単位を有さない。さらに本比較例で用いた硬化剤は、多官能（メタ）アクリレート化合物及び多官能ブロックイソシアネート化合物のいずれにも該当しない。

[0079] <比較例 5>

合成例 6 で得られたポリマーの溶液 10.0 g を、プロピレングリコールモノメチルエーテル 17.5 g 及び乳酸エチル 5.9 g に溶解させて溶液とした。その後、孔径 0.10 μm のポリエチレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、熱硬化性樹脂組成物を調製した。本比較例で用いたポリマーは、前記式（1）で表される構造単位を有さない。

[0080] [耐溶剤性試験]

実施例 1 乃至実施例 7 及び比較例 3 乃至比較例 5 で調製した熱硬化性樹脂組成物、並びに比較例 1 及び比較例 2 で調製した樹脂組成物をそれぞれ、シリコンウエハー上にスピンコーターを用いて塗布し、ホットプレート上において 100℃ で 1 分間、さらに 230℃ で 5 分間ベークを行い、膜厚 0.5 μm の膜を形成した。これらの膜に対して、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、酢酸ブチ

ル、乳酸エチル、3-メトキシプロピオン酸メチル、3-エトキシプロピオン酸エチル、アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、 γ -ブチロラクトン、N-メチルピロリドン、2-プロパノール及び2.38質量%濃度の水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液に、それぞれ23℃の温度条件下、5分間浸漬した後、100℃で1分間乾燥ベークを行った。浸漬前及び乾燥ベーク後の膜厚測定を行い、膜厚変化を算出した。前記浸漬溶剤のうち1つでも、浸漬前の膜厚に対して10%以上の膜厚増減があった場合は“×”、全ての溶剤について膜厚増減が10%未満であった場合は“○”として耐溶剤性を評価した。評価結果を表1に示す。

[0081] [透過率測定]

実施例1乃至実施例7及び比較例3乃至比較例5で調製した熱硬化性樹脂組成物をそれぞれ、石英基板上にスピコーターを用いて塗布し、ホットプレート上において100℃で1分間、さらに230℃で5分間ベークを行い、膜厚0.5 μ mの膜を形成した。これらの膜に対して、紫外線可視分光光度計UV-2550（（株）島津製作所製）を用いて、波長400nm～800nmの範囲で波長を2nmずつ変化させて透過率を測定した。さらにこの膜を260℃で5分間加熱した後、再び波長400nm～800nmの範囲で波長を2nmずつ変化させて透過率を測定した。260℃で5分間加熱する前及び後での、波長400nm～800nmの範囲で測定された最低透過率の値を表1に示す。

[0082] [段差平坦化性]

実施例1乃至実施例7及び比較例3乃至比較例5で調製した熱硬化性樹脂組成物を、それぞれ高さ0.5 μ m、ライン幅10 μ m、ライン間スペース10 μ mの段差基板（図1参照）上にスピコーターを用いて塗布し、ホットプレート上において100℃で1分間、さらに230℃で5分間ベークを行い、膜厚0.5 μ mの膜を形成した。図1の段差基板1に示すh1（段差基板の段差）とh2（硬化膜の段差、即ちライン上の硬化膜の高さとスペース上の硬化膜の高さとの高低差）の値から、“式：（1 - （h2 / h1）） ×

100”を用いて平坦化率を求めた。評価結果を表1に示す。

[0083] [表1]

表1

	耐溶剤性	最低透過率／％ (波長400～800nm)		平坦化率／％
		230℃	260℃	
実施例1	○	97	97	82
実施例2	○	97	97	75
実施例3	○	97	97	75
実施例4	○	97	97	76
実施例5	○	97	97	66
実施例6	○	97	97	62
実施例7	○	97	97	55
比較例1	×	—	—	—
比較例2	×	—	—	—
比較例3	○	97	97	42
比較例4	○	97	97	40
比較例5	○	97	97	40

[0084] 表1の結果から、本発明の熱硬化性樹脂組成物から作製された硬化膜は、高耐溶剤性であると共に波長400nm～800nmの範囲で高透明性であった。また、本発明の熱硬化性樹脂組成物から作製された硬化膜は、平坦化率50％を超える段差平坦化性を有するものであった。特に、実施例1乃至実施例4で調製した熱硬化性樹脂組成物から作製された硬化膜は、平坦化率75％以上の高い段差平坦化性を有する。一方、比較例1及び比較例2で調製した樹脂組成物から作製された樹脂膜は、耐溶剤性を満足しない結果となった。また、比較例3乃至比較例5で調製した熱硬化性樹脂組成物から作製された硬化膜は、高耐溶剤性であると共に波長400nm～800nmの範囲で高透明性であるものの、平坦化率50％未満であり、段差平坦化性に乏しいことが分かった。

符号の説明

[0085] 1：段差基板

2：硬化膜

3 : ライン幅

4 : ライン間スペース

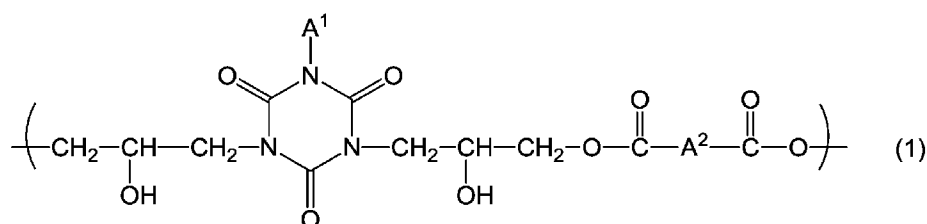
h 1 : 段差基板の段差

h 2 : 硬化膜の段差

請求の範囲

- [請求項1] 下記式（１）で表される構造単位を有するポリマー、該ポリマーに対し０乃至３０質量％の硬化剤、及び溶剤を含有し、前記硬化剤を含有する場合、該硬化剤は多官能（メタ）アクリレート化合物及び多官能ブロックイソシアネート化合物からなる群から選択される少なくとも１種の化合物である、熱硬化性樹脂組成物。

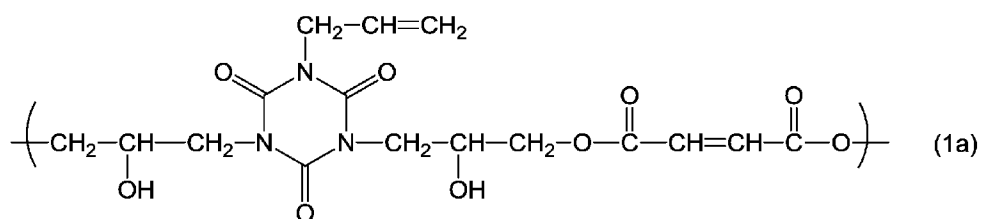
[化1]



（式中、 A^1 は炭素原子数２又は３のアルケニル基又はアルキニル基を表し、 A^2 は炭素原子数２のアルケニレン基又はアルキニレン基を表す。）

- [請求項2] 前記ポリマーは下記式（１a）で表される構造単位を有する請求項１に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[化2]

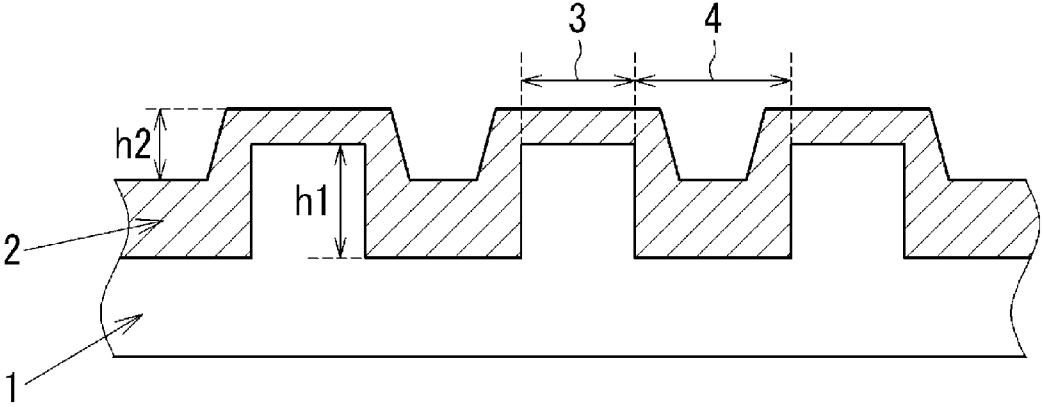


- [請求項3] 前記硬化剤は多官能アクリレート化合物である請求項１又は請求項２に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項4] さらに界面活性剤を含有する請求項１乃至請求項３のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項5] 平坦化膜用組成物である請求項１乃至請求項４のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項6] 保護膜用組成物である請求項１乃至請求項４のいずれか一項に記載の

熱硬化性樹脂組成物。

- [請求項7] 請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物を基板上に塗布した後、加熱手段を用いて前記熱硬化性樹脂組成物をベークすることによる、硬化膜、保護膜又は平坦化膜の作製方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/078083

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G59/14(2006.01)i, C08F290/14(2006.01)i, C08F299/04(2006.01)i,
C08L67/06(2006.01)i, C09D7/12(2006.01)i, C09D163/10(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08G59/14, C08F290/14, C08F299/04, C08L67/06, C09D7/12, C09D163/10

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2006/115074 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 02 November 2006 (02.11.2006), claims; paragraphs [0010], [0030], [0035]; examples & US 2008/0268379 A1 claims; paragraphs [0038], [0074], [0081]; examples & EP 1876495 A1 & CN 101160549 A & KR 10-2008-0002971 A & TW 00I371656 B	1-4, 6, 7 5
A	WO 2012/169580 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 13 December 2012 (13.12.2012), claims; paragraph [0029]; examples & TW 201302902 A	1-7

☒ 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
13 October 2016 (13.10.16)

Date of mailing of the international search report
25 October 2016 (25.10.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/078083

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2007/15427 A1 (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 08 February 2007 (08.02.2007), the entire description & US 2010/0104794 A1 the entire specification & CN 101283016 A & KR 10-2008-0031498 A & TW 00I385209 B	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08G59/14(2006.01)i, C08F290/14(2006.01)i, C08F299/04(2006.01)i, C08L67/06(2006.01)i, C09D7/12(2006.01)i, C09D163/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08G59/14, C08F290/14, C08F299/04, C08L67/06, C09D7/12, C09D163/10

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	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 1 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	WO 2006/115074 A1 (日産化学工業株式会社) 2006. 11. 02, 特許請求の範囲、[0010]、[0030]、[0035]、実施例 & US 2008/0268379 A1, 特許請求の範囲、[0038]、[0074]、[0081]、 実施例 & EP 1876495 A1 & CN 101160549 A & KR 10-2008-0002971 A & TW 00I371656 B	1-4, 6, 7 5

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

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

国際調査を完了した日

1 3 . 1 0 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

2 5 . 1 0 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

繁田 えい子

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

4 J

9 3 4 2

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2012/169580 A1 (日産化学工業株式会社) 2012. 12. 13, 特許請求の範囲、[0029]、実施例 & TW 201302902 A	1-7
A	WO 2007/15427 A1 (信越化学工業株式会社) 2007. 02. 08, 明細書全体 & US 2010/0104794 A1、明細書全体 & CN 101283016 A & KR 10-2008-0031498 A & TW 00I385209 B	1-7