

(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1月27日(27.01.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/019095 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 11/04 (2006.01) C09J 175/06 (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) C08L 63/00 (2006.01)
C09J 11/08 (2006.01) C08G 18/44 (2006.01)
C08L 51/04 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
C08L 75/06 (2006.01) C09J 7/30 (2018.01)
C09J 163/00 (2006.01) H05K 3/28 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/025253

(22) 国際出願日: 2021年7月5日(05.07.2021)

(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 2020-124865 2020年7月22日(22.07.2020) JP

(71) 出願人: 株式会社有沢製作所(ARISAWA MFG. CO., LTD.) [JP/JP]; 〒9438610 新潟県上越市南本町1丁目5番5号 Niigata (JP).

(72) 発明者: 権平 貴志 (GONDAIRA Takashi); 〒9438610 新潟県上越市南本町1丁目5番5号 株式会社有沢製作所内 Niigata (JP). 古川勝彦(FURUKAWA Katsuhiko); 〒9438610 新潟県上越市南本町1丁目5番5号 株式会社有沢製作所内 Niigata (JP). 阿部 将太(ABE Shota); 〒9438610 新潟県上越市南本町1丁目5番5号 株式会社有沢製作所内 Niigata (JP). 須貝 拓馬(SUGAI Takuma); 〒9438610

新潟県上越市南本町1丁目5番5号 株式会社有沢製作所内 Niigata (JP).

(74) 代理人: 木村 満, 外 (KIMURA Mitsuru et al.); 〒1010054 東京都千代田区神田錦町二丁目7番地 協販ビル2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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(54) Title: THERMOSETTING RESIN COMPOSITION, COVERLAY FILM, ADHESIVE SHEET, AND FLEXIBLE PRINTED CIRCUIT BOARD

(54) 発明の名称: 熱硬化性樹脂組成物、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板

(57) Abstract: This thermosetting resin composition contains: an epoxy resin that is solid at 25°C; an epoxy resin that is non-solid at 25°C; fine particulate rubber that is dispersed in the non-solid epoxy resin; a setting agent; an inorganic filler; and a polyurethane derived from a polycarbonate diol. The fine particulate rubber is contained in an amount of 3-15 parts by mass with respect to the total parts by mass of the solid epoxy resin and the non-solid epoxy resin. The acid value of the polyurethane derived from the polycarbonate diol is 10-30 mgKOH/g. The weight-average molecular weight of the polyurethane derived from the polycarbonate diol is 15000-50000.

(57) 要約: 熱硬化性樹脂組成物は、25°Cにおいて固形のエポキシ樹脂と、25°Cにおいて非固形のエポキシ樹脂と、非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムと、硬化剤と、無機充填剤と、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンと、を含む。固形のエポキシ樹脂及び非固形のエポキシ樹脂の全質量部数に対して、微粒子ゴムの含有量が3~15質量部であり、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が10~30mgKOH/gであり、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000~50000である。

WO 2022/019095 A1

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：

熱硬化性樹脂組成物、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板

技術分野

[0001] 本発明は、熱硬化性樹脂組成物、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板に関する。

背景技術

[0002] 電子機器を構成するシート状の電子材料としては、カバーレイフィルム、接着シート、フレキシブルプリント配線板等が挙げられる。このような電子材料には、引き剥がし強度（以下、ピール強度ともいう。）等の物理特性、電気絶縁信頼性（以下、マイグレーション特性ともいう。）等の電気特性、はんだ耐熱性等の耐熱特性、及び難燃特性をバランスよく備えていることが求められる（例えば、特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2005-187810号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 近年のシート状の電子材料に対して、さらに求められる事項が、効率的かつ容易に加工ができること、及び、過酷な条件下において優れた電気絶縁信頼性を有することである。ここで、効率的かつ容易に加工ができることとは、短時間で熱圧着できること（以下、クイックプレスともいう。）をいう。また、過酷な条件下において優れた電気絶縁信頼性を有することとは、例えば、110℃、85%RH、DC50Vの高ストレス条件下における電気絶縁信頼性の評価、すなわちBHAST (Biased Highly Ac

celerated temperature and humidity Stress Test) において、優れた電気絶縁信頼性を有することをいう。

[0005] 本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、クイックプレスができ、BHASTにおいて優れた電気絶縁信頼性を有する熱硬化性樹脂組成物、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討した結果、25℃において固形のエポキシ樹脂と、25℃において非固形のエポキシ樹脂と、前記非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムと、硬化剤と、無機充填剤と、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンと、を含み、前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数に対して、前記微粒子ゴムの含有量が3～15質量部であり、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が10～30mg KOH/gであり、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000～50000である、熱硬化性樹脂組成物が、上記目的を達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0007] すなわち、本発明は以下のとおりである。

[1] 25℃において固形のエポキシ樹脂と、25℃において非固形のエポキシ樹脂と、前記非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムと、硬化剤と、無機充填剤と、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンと、を含み、前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数に対して、前記微粒子ゴムの含有量が3～15質量部であり、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が10～30mg KOH/gであり、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000～50000である、熱硬化性樹脂組成物。

[0008] [2] 前記微粒子ゴムは、コアシェルポリマー粒子から構成される、上記

[1]に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[0009] [3] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記微粒子ゴムと前記非固形のエポキシ樹脂の質量部数が15～40質量部である、上記[1]又は[2]に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[0010] [4] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの質量部数が50～100質量部である、上記[1]から[3]のいずれかに記載の熱硬化性樹脂組成物。

[0011] [5] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記無機充填剤の質量部数が60～150質量部である、上記[1]から[4]のいずれかに記載の熱硬化性樹脂組成物。

[0012] [6] 基材と前記基材の片面に積層された接着材層とから構成され、前記接着材層の接着材が上記[1]から[5]のいずれかに記載の熱硬化性樹脂組成物から構成される、カバーレイフィルム。

[0013] [7] 接着シートが上記[1]から[5]のいずれかに記載の熱硬化性樹脂組成物から構成される、接着シート。

[0014] [8] 配線が形成された基板と、基材と前記基材の片面に積層された接着材層とから構成されるカバーレイフィルムと、を備え、前記基板の前記配線が形成された面に前記接着材層が接するように前記カバーレイフィルムが設けられたフレキシブルプリント配線板であって、前記カバーレイフィルムが上記[6]に記載のカバーレイフィルムである、フレキシブルプリント配線板。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、クイックプレスができ、BHASTにおいて優れた電気絶縁信頼性を有する熱硬化性樹脂組成物、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]本発明の熱硬化性樹脂組成物を用いたフレキシブルプリント配線板の特性評価試験において採用した配線パターンを示す平面図である。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明を実施するための形態（以下、実施形態という。）について詳細に説明する。以下の実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明を以下の内容に限定する趣旨ではない。本発明は、その要旨の範囲内で適宜に変形して実施できる。

[0018] （熱硬化性樹脂組成物）

本発明の熱硬化性樹脂組成物は、主に、カバーレイフィルム、接着シート、及びフレキシブルプリント配線板等の電子材料の樹脂組成物として好適に用いられる。

[0019] 実施形態の熱硬化性樹脂組成物は、25℃において固形のエポキシ樹脂と、25℃において非固形のエポキシ樹脂と、非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムと、硬化剤と、無機充填剤と、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンと、を含む。固形のエポキシ樹脂及び非固形のエポキシ樹脂の全質量部数に対して、微粒子ゴムの含有量が3～15質量部であり、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が10～30mgKOH/gであり、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000～50000である。

[0020] （エポキシ樹脂）

実施形態の熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂は、熱硬化性樹脂組成物を均一に混合させる観点、配線間の微細な溝に樹脂を行き渡らせる（以下、配線埋まり性ともいう。）観点、熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の電気絶縁信頼性を高める観点、及び耐熱性を付与する観点から、25℃において固形のエポキシ樹脂と25℃において非固形のエポキシ樹脂の両方を含む。

[0021] 25℃において固形のエポキシ樹脂は、反応性を高める観点、及び熱硬化

性樹脂組成物が硬化した後の電気絶縁信頼性を高める観点から、一分子中にエポキシ基を2つ以上持ち、エポキシ当量が150~500 g/e qであることが好ましく、150~350 g/e qであることがより好ましい。エポキシ樹脂としては、エポキシ当量が前述のエポキシ当量の範囲内にある、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、アミン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂が挙げられる。電気絶縁信頼性及び難燃性の観点から、ビスフェノールA型エポキシ樹脂が好ましく、ビフェニル型エポキシ樹脂がより好ましい。2種以上のエポキシ樹脂を用いてもよい。また、25℃において固形のエポキシ樹脂は、熱硬化性樹脂組成物に含まれる他の材料との混合を容易にするために、予め有機溶媒で溶解されていてもよい。なお、エポキシ樹脂のエポキシ当量は、JIS K7236 2001に準拠して測定することができる。

[0022] 25℃において固形のエポキシ樹脂の含有量は、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂（25℃において固形のエポキシ樹脂及び25℃において非固形のエポキシ樹脂）の合計を100質量部としたとき、好ましくは60~85質量部である。25℃において固形のエポキシ樹脂の含有量が60~85質量部の範囲内にあることで、例えば、熱硬化性樹脂組成物をシート状に加工し、熱硬化性樹脂組成物の硬化状態を半硬化状態（Bステージ）とした際にタック性（べたつき性）を抑制することができる。さらに、クイックプレスの際に混入するエア（気泡）を減らすことができる。ここで、本発明で用いる質量部は、不揮発分換算の質量部を意味する。不揮発分換算の質量部とは、例えば、樹脂に含まれる有機溶剤のような揮発成分を除いた樹脂（不揮発分）の質量部をいう。また、半硬化状態（Bステージ）とは、熱硬化性樹脂組成物の硬化反応が途中まで進んでいるものの、完全に進んでいない状態をいう。

[0023] 25℃において非固形のエポキシ樹脂とは、25℃において流動性のあるエポキシ樹脂を意味する。25℃において非固形のエポキシ樹脂は、微粒子

ゴムの分散性を高める観点、及び熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を高める観点から、一分子中にエポキシ基を2つ以上持ち、エポキシ当量が100~400 g/eqであることが好ましく、150~350 g/eqであることがより好ましい。エポキシ樹脂としては、エポキシ当量が前述の範囲内にある、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、アミン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂が挙げられる。2種以上のエポキシ樹脂を用いてもよい。耐熱性の観点から、ビスフェノールA型エポキシ樹脂が好ましく、フェノールノボラック型エポキシ樹脂がより好ましい。また、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度等の物理特性を発現させる観点から、熱硬化性樹脂組成物を調製する前に、微粒子ゴムを25℃において非固形のエポキシ樹脂に均一に分散させたものを用いることが好ましい。

[0024] 25℃において非固形のエポキシ樹脂の含有量は、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂（25℃において固形のエポキシ樹脂及び25℃において非固形のエポキシ樹脂）の合計を100質量部としたとき、好ましくは15~40質量部であり、より好ましくは15~35質量部であり、更に好ましくは15~30質量部である。25℃において非固形のエポキシ樹脂の含有量が15~40質量部の範囲内にあることで、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を高い状態で維持できる。

[0025] (微粒子ゴム)

微粒子ゴムは、コア層とその表面を覆うシェル層から構成されるコアシェルポリマー粒子であることが好ましい。

[0026] コア層を構成するポリマーは、ゴム状弾性を有するポリマーである。ゴム状弾性を有するポリマーとしては、ジエン系ゴム、アクリルゴム、スチレンゴム、ポリシロキサンゴムが挙げられる。2種以上のポリマーから構成されていてもよい。

[0027] シェル層を構成するポリマーとしては、(メタ)アクリル酸エステル系単

量体、芳香族ビニル系単量体、シアン化ビニル系単量体、不飽和酸誘導体、(メタ)アクリルアミド誘導体、及びマレイミド誘導体より選ばれる1種以上の成分を共重合して得られる(共)重合体が挙げられる。また、シェル層を構成するポリマーは、コア層を構成するポリマーとグラフト重合により結合している。これにより、コア層の表面の一部又は全体がシェル層で安定的に覆われ、コアシェルポリマー粒子同士の再凝集を防ぐことができる。

[0028] シェル層を構成するポリマーには、エポキシ樹脂との相溶性の観点から、熱硬化性樹脂組成物に含まれる樹脂又は硬化剤と反応する官能基が導入されていることが好ましい。官能基としては、例えば水酸基、カルボキシル基、エポキシ基が挙げられ、エポキシ樹脂との相溶性を向上させる観点から、エポキシ基が好ましい。

[0029] 微粒子ゴムの大きさは、分散性を良好にする観点から、平均粒径で0.05~1 μ mであることが好ましい。

[0030] 微粒子ゴムの含有量は、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂(25 $^{\circ}$ Cにおいて固形のエポキシ樹脂及び25 $^{\circ}$ Cにおいて非固形のエポキシ樹脂)の合計を100質量部としたとき、好ましくは3~15質量部であり、より好ましくは3~13質量部であり、更に好ましくは3~10質量部である。微粒子ゴムの含有量が3~15質量部の範囲内にあることで、熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の電気絶縁信頼性を低下させることなく、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を高い状態で維持できる。

[0031] 微粒子ゴムは、熱硬化性樹脂組成物中に均一に分散させる観点から、25 $^{\circ}$ Cにおいて非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムを用いることが好ましい。

[0032] 25 $^{\circ}$ Cにおいて非固形のエポキシ樹脂に分散している微粒子ゴムとしては、カネカ社製のMX-136、MX-153、MX-154、MX-170、MX-217、MX-257、MX-416、MX-451、MX-551、MX-960、MX-965等が挙げられる。

[0033] (硬化剤)

硬化剤は、エポキシ樹脂を硬化させるものであることが好ましい。硬化剤としては、例えば、ジアミノジフェニルメタン (DDM)、ジアミノジフェニルスルホン (DDS)、ジアミノジフェニルエーテル (DDE)、ヘキサメチレンジアミン、ジシアンジアミド、フェノールノボラックが挙げられる。これらの中でも、硬化反応の制御のし易さの観点から、ジシアンジアミドが好ましく、ジアミノジフェニルスルホンがより好ましい。2種以上の硬化剤を用いてもよい。

[0034] 硬化剤の当量は、配線埋まり性を良好にする観点、及び熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の電気絶縁信頼性を高める観点から、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂 (25℃において固形のエポキシ樹脂及び25℃において非固形のエポキシ樹脂) のエポキシ基1当量に対して、好ましくは0.3~0.8当量であり、より好ましくは0.3~0.6当量である。

[0035] (無機充填剤)

無機充填剤としては、例えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、シリカが挙げられる。これらの中でも、難燃性及び配線埋まり性を良好にする観点、及びクイックプレスで求められるタックフリー性を付与する観点から、水酸化マグネシウムが好ましく、水酸化アルミニウムがより好ましい。2種以上の無機充填剤を用いてもよい。

[0036] 無機充填剤の含有量は、難燃性及び配線埋まり性を良好にする観点、及びタックフリー性を付与する観点から、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂 (25℃において固形のエポキシ樹脂及び25℃において非固形のエポキシ樹脂) の合計を100質量部としたとき、好ましくは60~150質量部であり、より好ましくは60~120質量部であり、更に好ましくは70~100質量部である。

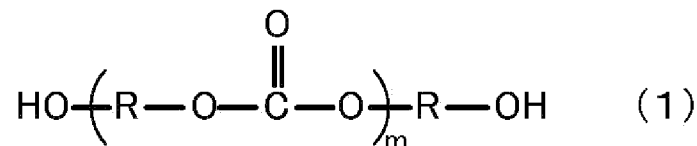
[0037] (ポリカーボネートジオール由来のポリウレタン)

実施形態の熱硬化性樹脂組成物に含まれるポリカーボネートジオール由来のポリウレタンは、分子中に少なくとも1以上のポリカーボネート骨格を有

する。ポリカーボネート骨格の数は、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンである限り、特に限定されない。ポリウレタンの分子中に少なくとも1以上のポリカーボネート骨格を有することで、熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の高温及び高湿の環境においてポリウレタンの加水分解が抑制される。これにより、熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の高い電気絶縁信頼性を確保することができる。また、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンを含むことで膜性が付与される。これにより、カバーレイフィルム、接着シートなどのシート状の電子材料に必要な柔軟性が付与される。

[0038] ポリカーボネートジオールとしては、下記一般式(1)で表されるポリカーボネートジオールが挙げられる。

[0039] [化1]



(Rは、炭素数1～10のアルキレン基を示し、mは1～20の整数を示す。)

[0040] 熱硬化性樹脂組成物が硬化した後の高温及び高湿の環境においてポリウレタンの加水分解を抑制する観点、及び熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を向上させる観点から、一般式(1)のRの炭素数が1～10、mが1～20であることが好ましい。

[0041] ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンは、一般式(1)で表されるポリカーボネートジオールとポリイソシアネートとを重合させることで得られる。ポリイソシアネートとしては、一般式(1)で表されるポリカーボ

ネートジオールと反応してポリウレタンを形成し得るポリイソシアネートであれば特に限定はされない。ポリイソシアネートとしては、例えば、トリレン-2, 4-ジイソシアネート、4-メトキシ-1, 3-フェニレンジイソシアネート、2, 4-ジイソシアネートジフェニルエーテル、4, 4'-メチレンビス(フェニレンジイソシアネート)(MDI)、2, 4'-メチレンビス(フェニレンジイソシアネート)、トリレンジイソシアネート(TDI)、キシリレンジイソシアネート(XDI)、1, 5-ナフタレンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート；メチレンジイソシアネート、1, 6-ヘキサレンジイソシアネート(HDI)等の脂肪族ジイソシアネート；1, 4-シクロヘキシレンジイソシアネート、4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルジイソシアネート)、イソホロンジイソシアネート(IPDI)等の脂環族ジイソシアネートが挙げられる。

[0042] ポリイソシアネートは、これらイソシアネート化合物と低分子量のポリオール又はポリアミンとを反応させて、末端の官能基をイソシアネート基にした化合物であってもよい。ポリイソシアネートは、単独で用いてもよいし、2種類以上のポリイソシアネートを組み合わせて用いてもよい。耐熱性、可撓性及び反応性の観点から、イソホロンジイソシアネートが好ましい。

[0043] ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンは、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を向上させる観点から、酸性であることが好ましい。酸性のポリカーボネートジオール由来のポリウレタンとしては、ポリウレタンの分子鎖(主に側鎖)中にヒドロキシル基、スルホ基、カルボキシル基を有していることが好ましく、エポキシ樹脂との反応性を向上させる観点、及び硬化後の熱硬化性樹脂組成物の電気特性を向上させる観点から、カルボキシル基を有することがより好ましい。なお、酸性は、酸価によって示すことができる。

[0044] ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価は、10~30 mg KOH/gであり、好ましくは、10~25 mg KOH/gである。ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が、10~30 mg KOH/g

gであることにより、配線埋まり性が良好となり、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度が向上する。

- [0045] なお、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価は、JIS K0070に準拠して測定することができる。
- [0046] ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの含有量は、熱硬化性樹脂組成物から構成されるシート状の電子材料のピール強度を高める観点から、熱硬化性樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂（25℃において固形のエポキシ樹脂及び25℃において非固形のエポキシ樹脂）の合計を100質量部としたとき、好ましくは50～100質量部であり、より好ましくは60～90質量部であり、更に好ましくは70～80質量部である。
- [0047] ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量は、好ましくは150000～50000であり、より好ましくは20000～45000であり、更に好ましくは25000～40000である。ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000～50000であると硬化後の熱硬化性樹脂組成物の柔軟性が向上し、配線埋まり性が良好となる。なお、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量は、平均分子量が約500～約100万の標準ポリスチレンを用いて、ゲル浸透クロマトグラフィー（Gel Permeation Chromatography：GPC）により測定することができる。
- [0048] （その他成分）
- 実施形態の熱硬化性樹脂組成物は、他の添加剤等を更に含有してもよい。他の添加剤としては、2-メチルイミダゾール、N-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール等のイミダゾール系促進剤、三フッ化ホウ素モノエチルアミン等のルイス酸錯体、ポリアミン、メラミン樹脂等の硬化促進剤、分散剤、軟化剤、老化防止剤、顔料、染料、シランカップリング剤等が挙げられる。
- [0049] （カバーレイフィルム）
- カバーレイフィルムは、例えば、基板に形成された配線を保護するために

使用される。カバーレイフィルムは、基材と基材の片面に積層された接着材層とから構成される。なお、接着材層は、フィルム状の基材の両面に設けられていてもよい。この構成を有するカバーレイフィルムによれば、複数の基板の配線面を1つのカバーレイフィルムで保護することができる。さらに基板を多層化することができる。

[0050] カバーレイフィルムを構成する基材は、フィルム状の基材である。基材の厚さは2～75 μm である。

[0051] カバーレイフィルムの基材としては、例えば、ポリイミド（PI）系基材、ポリアミド（PA）系基材、ポリエチレンナフタレート（PEN）系基材、ポリアミドイミド（PAI）系基材、ポリエチレンテレフタレート（PET）系基材、ポリフェニレンサルファイド（PPS）系基材、液晶（LCP）系基材等が挙げられる。難燃性、電気絶縁信頼性、耐熱性、及び弾性率の観点から、ポリイミド（PI）系基材が好ましい。また、基材の表面に、コロナ処理やプラズマ処理等といった表面改質処理を施すこともできる。これにより、基材の表面が改質され、接着材層と基材との密着性が向上する。

[0052] 接着材層は、実施形態の熱硬化性樹脂組成物から構成される。接着材層の厚さは、乾燥後の厚さが5～50 μm である。接着材層を構成する熱硬化性樹脂組成物の硬化状態は半硬化状態（Bステージ）である。

[0053] カバーレイフィルムは以下の手順で作製される。熱硬化性樹脂組成物を有機溶媒に溶解させた熱硬化性樹脂組成物を含む溶液を準備する。その溶液をフィルム状の基材の上に塗布する。次に、熱硬化性樹脂組成物が半硬化状態（Bステージ）になるまで、加熱する。冷却後、熱硬化性樹脂組成物から構成される接着材層がフィルム状の基材に形成されたカバーレイフィルムを得る。加熱条件は、100～250℃、5秒～30分であり、塗布厚さにより調整する。

[0054] 有機溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール等のアルコール類；エチレングリコール、プロピレングリコール等のグリコール類；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等の

グリコールモノアルキルエーテル類；エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル等のグリコールジアルキルエーテル；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、アセト酢酸メチル、アセト酢酸メチル等のアルキルエステル類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素類；ヘキサン、シクロヘキサン、オクタン等の脂肪族炭化水素類；ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン等のアミド類；テトラヒドロフラン、ジオキサン等の環状エーテル類等が挙げられる。

[0055] 塗布装置については、特に限定されず、公知のコータを用いることができる。例えば、ダイコータ、コンマコータ、グラビアコータ等である。

[0056] カバーレイフィルムを構成する接着材層の厚さが5 μm 以下である場合は、以下の手順で、カバーレイフィルムを作製することができる。まず、離型処理が施された離型フィルムの表面に、乾燥後の厚さが5 μm となるように接着材層を形成する。その後、カバーレイフィルムに使用するフィルム状の基材を別に準備し、その基材の表面と接着材層の表面が合わさるように積層する。次に、この得られた積層体を加熱加圧した後に、離型フィルムのみを剥離する。これにより、接着材層の厚さが5 μm であるカバーレイフィルムを得ることができる。

[0057] (接着シート)

接着シートは、実施形態の熱硬化性樹脂組成物から構成される接着材をシート状にしたものである。

[0058] 接着シートを構成する接着材層の厚さは5～50 μm である。

[0059] 接着シートは以下の手順で作製される。熱硬化性樹脂組成物を有機溶媒に溶解させた熱硬化性樹脂組成物を含む溶液を準備する。その溶液を離型処理が施されたフィルム状の基材の離型処理面に塗布する。次に、熱硬化性樹脂組成物が半硬化状態（Bステージ）になるまで、加熱する。冷却後、熱硬化性樹脂組成物から構成される接着材層がフィルム状の基材に形成された接着

シートを得る。加熱条件は、100～250℃、5秒～30分であり、塗布厚さにより調整する。使用時にフィルム状の基材を接着材層から剥がして使用する。

[0060] 離型処理が施された基材に用いられる離型処理の処理剤としては、例えば、シリコン系の処理剤、フッ素系の処理剤が挙げられる。

[0061] 接着シートの別の構成としては、剛性や電気絶縁信頼性を高める観点から、例えば、フィルム状の基材の両面に接着材層が設けられた構成が挙げられる。

[0062] さらに接着シートの別の構成として、剛性や電気絶縁信頼性を高める観点から、織物、不織布などの基材に、熱硬化性樹脂組成物を含浸させたプリプレグが挙げられる。プリプレグは以下の手順で作製される。まず、基材として、ガラス繊維等の繊維から構成される織物又は不織布を準備する。次に、熱硬化性樹脂組成物を有機溶媒に溶解させた熱硬化性樹脂組成物を含む溶液を準備する。その溶液に基材を含浸させる。その溶液から引き上げた基材を、付着した熱硬化性樹脂組成物がBステージになるまで加熱する。冷却後、Bステージのプリプレグを得る。

[0063] 接着シートは、フレキシブルプリント配線板等の基板同士を接着する層間接着材として利用することができる。また、接着シートが配線を覆うことにより、配線を保護することができる。

[0064] (フレキシブルプリント配線板)

フレキシブルプリント配線板は、配線が形成された基板と、基材と基材の片面に積層された接着材層とから構成されるカバーレイフィルムとを備え、基板の配線が形成された面に接着材層が接するようにカバーレイフィルムが設けられている。

[0065] 基板に形成された配線は、例えば、銅メッキ積層板又は銅張り積層板の銅層をエッチング処理することにより形成された配線である。別の基板に形成された配線として、導電性のインクを利用したインクジェット方式の印刷により形成された配線であってもよい。配線の素材は、銅に変えて銀、亜鉛等

の他の金属で構成されてもよい。

[0066] フレキシブルプリント配線板に用いられる基板の厚さは、特に限定はされないが、基板が柔軟性を有する観点から15～200 μm である。

[0067] フレキシブルプリント配線板は以下の手順で作製される。配線が形成された基板と、基材と基材の片面に積層された接着材層とから構成されるカバーレイフィルムを準備する。次に基板の配線が形成された面に接着材層が接するようにカバーレイフィルムを積層し、加熱加圧する。これにより、フレキシブルプリント配線板を得る。加熱加圧の条件は、120～250 $^{\circ}\text{C}$ 、5秒～120分、1～10MPaであり、積層構成により設定する。

実施例

[0068] 以下の実施例により本発明を更に詳しく説明する。本発明は以下の実施例により何ら限定されるものではない。

[0069] 実施例及び比較例における樹脂組成物に含まれる各成分として、以下のものを用いた。

(エポキシ樹脂)

(1) エポキシ樹脂A：25 $^{\circ}\text{C}$ において固形のビフェニル型エポキシ樹脂、エポキシ当量290g/eq（日本化薬社製、NC3000H）、

(2) エポキシ樹脂B：25 $^{\circ}\text{C}$ において非固形のビスフェノールA型エポキシ樹脂、エポキシ当量190g/eq（DIC社製、エピクロン850）、

(3) エポキシ樹脂C：25 $^{\circ}\text{C}$ において非固形の微粒子ゴム分散型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型タイプ）、エポキシ当量231g/eq、微粒子ゴム（ポリブタジエンゴム、平均粒径0.1 μm ）を全固形分100質量部中25質量部含有したもの（カネカ社製、MX-217）、

(4) エポキシ樹脂D：25 $^{\circ}\text{C}$ において非固形の微粒子ゴム分散型エポキシ樹脂（ビスフェノールA型タイプ）、エポキシ当量294g/eq、微粒子ゴム（ポリブタジエンゴム、平均粒径0.1 μm ）を全固形分100質量部中37質量部含有したもの（カネカ社製、MX-257）。

[0070] (硬化剤)

ジアミノジフェニルスルフォン：アミン価62g/eq（小西化学工業社製、3、3'-DAS）。

[0071] (無機充填剤)

水酸化アルミニウム（日本軽金属社製、BF013）。

[0072] (ポリカーボネートジオール由来のポリウレタン)

[ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンAの合成]

攪拌機、温度計及び冷却管を備えた1リットルのフラスコに、(a) カーボネート系ポリオール（宇部興産社製、エタナコール（登録商標）UH-100（水酸基価112mgKOH/g））を250.0g、(b) ジメチロールプロパン酸を32.1g、(c) イソホロンジイソシアネートを104.2g、を加えた。さらに溶剤として、(a)、(b)、(c)の合計量の10質量%分に相当するジメチルアセトアミドと、(a)、(b)、(c)の合計量の45質量%分に相当するトルエンを加え、100℃で攪拌した。その後、NCO基がなくなるまで反応させた後、(a)、(b)、(c)の合計量の45質量%分に相当するメチルエチルケトンを加えて、樹脂分45質量%のポリウレタン樹脂溶液を得た。

[0073] 以下、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンB~Iを、表1に示すように、各成分の添加量を変えて、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンAの合成と同様の方法により合成した。

[0074]

[表1]

	合成例1	合成例2	合成例3	合成例4	合成例5	合成例6	合成例7	合成例8	合成例9
	ポリウレタンA	ポリウレタンB	ポリウレタンC	ポリウレタンD	ポリウレタンE	ポリウレタンF	ポリウレタンG	ポリウレタンH	ポリウレタンI
(a)ポリカーボネートジオール	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0
(b)ジメチロールプロパン酸	32.1	26.4	16.7	7.7	4.0	16.7	16.7	16.7	16.7
(c)イソホロンジイソシアネート	104.2	95.2	79.8	65.4	59.6	70.6	74.8	81.4	82.3
NCO/OH	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96	0.85	0.90	0.98	0.99
数平均分子量	24,000	20,000	21,000	16,000	15,000	8,000	10,300	29,500	35,000
重量平均分子量	46,000	37,000	38,000	29,000	24,000	14,000	15,200	49,500	63,000
酸価 (mgKOH/g)	35.1	29.5	21.0	10.2	5.5	20.9	20.4	20.5	20.4

表中(a)、(b)、(c)の値は、質量(g)を示す。

[0075] (その他の柔軟成分)

- (1) ポリエステル系ポリウレタンJ：数平均分子量13000、酸価35 mg KOH/g (東洋紡社製、UR-3500)、
- (2) アクリルニトリルブタジエンゴムK：酸価40 mg KOH/g (JSR社製、JSR XER-32C)。

[0076] 実施例及び比較例において各評価方法及び測定方法は以下の方法により行った。

[0077] <引き剥がし強度 (ピール強度) >

(1) サンプルの作製手順

(1-1) カバーレイフィルムの作製

厚さ12.5 μmのポリイミドフィルム (カネカ社製、アピカル12.5 NPI) の片面に、接着材層となる樹脂組成物を、乾燥後の厚さが25 μmとなるように塗布し、160℃、10分の条件で半硬化状態 (Bステージ) になるまで乾燥させた。その後、接着材層側に離型PETフィルムを100℃でラミネートすることにより、離型PETフィルム付きカバーレイフィルムを得た。

[0078] (1-2) 測定用サンプルの作製

(1-1) で作製したカバーレイフィルムから離型PETフィルムを剥がし、接着材層の面と、圧延銅箔（JX日鉱日石金属社製、BHY-22B-T、厚さ $35\mu\text{m}$ ）の光沢面とを貼り合わせ、 185°C 、 3.0MPa 、 60 秒の条件で加熱加圧した。その後、 160°C のオーブンで1時間加熱することで測定用サンプルを得た。

[0079] (2) 測定方法

(1-2) で作製した測定用サンプルを幅 10mm ×長さ 100mm にカットし、島津製作所社製オートグラフAGS-500を用いて、 180° 方向（測定用サンプルの面に対して平行な方向）における引き剥がし強度を以下の測定条件にて測定した。

測定条件は、銅箔引きで、テストスピードを $50\text{mm}/\text{min}$ とした。

評価基準は、以下の通りとした。

Excellent：引き剥がし強度が $10\text{N}/\text{cm}$ 以上。

Good：引き剥がし強度が $7\text{N}/\text{cm}$ 以上 $10\text{N}/\text{cm}$ 未満。

Poor：引き剥がし強度が $7\text{N}/\text{cm}$ 未満。

[0080] <電気絶縁信頼性（BHA ST）>

(1) サンプルの作製手順

(1-1) カバーレイフィルムの作製

厚さ $12.5\mu\text{m}$ のポリイミドフィルム（カネカ社製、アピカル12.5NPI）の片面に、接着材層となる樹脂組成物を、乾燥後の厚さが $15\mu\text{m}$ となるように塗布し、 160°C 、 10 分の条件で半硬化状態（Bステージ）になるまで乾燥させた。その後、接着材層側に離型PETフィルムを 100°C でラミネートすることにより、離型PETフィルム付きカバーレイフィルムを得た。

[0081] (1-2) 被着体の作製

2層基板（有沢製作所社製、PNS H0509RAC）の銅箔光沢面をエッチング処理して、図1に示す配線の幅（L）と間隔（S）がそれぞれ $20\mu\text{m}$ である配線パターン（以下、 $L/S=20/20$ と表現する。）が形成

された被着体を得た。

[0082] (1-3) 測定用サンプルの作製

(1-1) で作製したカバーレイフィルムから離型PETフィルムを剥がし、接着材層の面と、(1-2) で作製した被着体の配線が形成された面とが対向するように積層し、185℃、3.0MPa、60秒の条件で加熱加圧した。その後160℃のオーブンで1時間加熱することで測定用サンプルを得た。

[0083] (2) 測定方法

配線パターンに電圧がかかるように配線の一端と他端をそれぞれ、機器の配線に接続した。接続後、110℃、85%RH、DC50Vの条件にて200時間後の短絡及びデントライト等の外観変化の有無を目視により確認し評価した。

評価基準は以下の通りとした。

Excellent: 200時間後、短絡及び外観変化がなかった。

Good: 200時間後、短絡はなかったが、外観変化があった。

Poor: 200時間に到達する前に短絡し、外観変化もあった。

[0084] <配線埋まり性>

(1) サンプルの作製手順

(1-1) カバーレイフィルムの作製

厚さ12.5μmのポリイミドフィルム(カネカ社製、アピカル12.5NPI)の片面に、接着材層となる樹脂組成物を、乾燥後の厚さが15μmとなるように塗布し、160℃、10分の条件で半硬化状態(Bステージ)になるまで加熱した。その後、接着材層側に離型PETフィルムを100℃でラミネートすることにより、離型PETフィルム付きカバーレイフィルムを得た。

[0085] (1-2) 被着体の作製

被着体として、電解銅箔(JX日鉱日石金属社製、厚さ18μm)の粗面に厚さ25μ

mのポリイミド層が形成された2層基板の銅箔光沢面をエッチング処理して、L/S=50/50、60/60、70/70、80/80、90/90、100/100の配線パターンがそれぞれ形成されたものを得た。

[0086] (2) 評価方法

(1-1) で作製したカバーレイフィルムから離型PETフィルムを剥がし、接着材層の面と、(1-2) で作製した被着体の配線が形成された面とが対向するように積層し、185℃、3.0MPa、30秒の条件、及び185℃、3.0MPa、60秒の条件でそれぞれ熱圧着加工（クイックプレス）した。その後160℃のオーブンで1時間加熱した。そして、貼り合わせたサンプルを冷却した後、配線の長手方向と直交するようにサンプルを切断した。その切断面を研磨した後、光学顕微鏡にて観察し、配線埋まり性が良好かどうかを評価した。

評価基準は以下の通りとした。

Excellent：クイックプレスの成型時間が30秒で、配線間の溝に樹脂が行き渡った。

Good：クイックプレスの成型時間が30秒では、配線間の溝に樹脂が行き渡らなかったが、60秒で樹脂が行き渡った。

Poor：クイックプレスの成型時間が30秒の条件及び60秒の条件のいずれの場合も、配線間の溝に樹脂が行き渡らなかった。

[0087] (実施例1)

容器に、エポキシ樹脂Aを70質量部、エポキシ樹脂Cを30質量部加え、エポキシ樹脂の合計質量部を100質量部とした。これに、硬化剤を10.4質量部、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンAを75質量部、水酸化アルミニウムを90質量部、ジアミノジフェニルスルフォンを10.4質量部、有機溶媒としてメチルエチルケトンに400質量部加えた。その後、これらを室温で攪拌し熱硬化性樹脂組成物を得た。

[0088] (実施例2)～(実施例12)、(比較例1)～(比較例11)

表2及び3に示すように、各成分の種類及び含有量を変えて実施例1と同

様の方法により調整し、熱硬化性樹脂組成物を得た。表中の含有量の単位は特に明記がない限りは質量部である。

[0089] [表2]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
エポキシ樹脂(A)	70	70	70	70	85	60	60	70	70	70	70	70
エポキシ樹脂(B)												
エポキシ樹脂(C)	30	30	30	30	15	40		30	30	30	30	30
エポキシ樹脂(D)							40					
微粒子ゴム(エポキシ樹脂に含まれる部数)	7.5	7.5	7.5	7.5	3.8	10.0	14.8	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
硬化剤	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq
質量部(*)	10.4	10.4	10.4	10.4	10.0	10.5	8.5	10.4	10.4	10.4	10.4	10.4
無機充填剤	90	90	90	90	90	90	90	60	150	90	90	90
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンA												
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンB	75											
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンC		50	75	100	75	75	75	75	75			
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンD										75		
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンE												
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンF												
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンG											75	75
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンH												
ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンI												
ポリエステル系ポリウレタンJ												
アクリルニトリルブタジエンゴムK												
ビニル強度	Excellent	Good	Excellent	Excellent	Good	Excellent	Excellent	Excellent	Good	Excellent	Good	Excellent
電気絶縁信頼性(BHAST)	Excellent	Excellent	Excellent	Excellent	Excellent	Good	Good	Excellent	Excellent	Good	Excellent	Excellent
配線埋まり性	Good	Good	Excellent	Good	Excellent	Good	Good	Good	Good	Excellent	Excellent	Good

(*) エポキシ樹脂1当量に対する硬化剤の当量が0.45eqとなる様、硬化剤の質量部を調整する。

[0090] [表3]

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11
エポキシ樹脂(A)	70	70	70	70	70	70	90		100	70	70
エポキシ樹脂(B)											30
エポキシ樹脂(C)	30	30	30	30	30	30	10	100		30	
エポキシ樹脂(D)											
微粒子ゴム(エポキシ樹脂に含まれる部数)	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	2.5	25.0	0.0	7.5	0.0
硬化剤	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq	0.45eq
	10.4	10.4	10.4	10.4	10.4	10.4	9.9	12.1	9.6	10.4	11.2
無機充填剤	90	90	90	90	90	90	90	90	90		90
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンA	75										
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンB											
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンC							75	75	75	75	75
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンD											
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンE		75									
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンF			75								
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンG											
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンH											
ポリカポネートジオール由来のポリウレタンI				75							
ポリエステル系ポリウレタンJ					75						
アクリルニトリルブタジエンゴムK						75					
ピール強度	Excellent	Poor	Poor	Excellent	Excellent	Excellent	Poor	Excellent	Poor	Good	Poor
電気絶縁信頼性(BHAST)	Excellent	Good	Poor	Excellent	Good	Poor	Excellent	Good	Excellent	Good	Excellent
	Poor	Excellent	Good	Poor	Poor	Good	Excellent	Poor	Excellent	Poor	Excellent
配線埋まり性											

(*) エポキシ樹脂当量に対する硬化剤の当量が0.45eqとなる様、硬化剤の質量部を調整する。

[0091] 表2に示すように、実施例1～12の熱硬化性樹脂組成物は、クイックP

レスによる加工性（配線埋まり性）に優れ、B H A S Tにおける電気絶縁信頼性にも優れていた。また、実施例1～12は、はんだ耐熱性評価において、260℃、60秒以上はんだ浴に接触させても、膨れや剥がれは認められず、優れたはんだ耐熱性を有していた。また、いずれの実施例もシート状の電子材料に要求される難燃性評価である、UL94規格 V-0グレードを有していた。

[0092] はんだ耐熱性の評価は、＜引き剥がし強さ（ピール強度）＞（1）サンプルの作製手順により作製した測定用サンプル（積層板）を、積層板の銅箔面が260℃に設定したはんだ浴に接するようにはんだ浴に浮かべた。その状態を60秒以上維持し、膨れ及び剥がれの有無を目視により確認することにより行った。

[0093] 本発明は、本発明の広義の精神と範囲を逸脱することなく、様々な実施形態及び変形が可能とされるものである。また、上述した実施形態は、この発明を説明するためのものであり、本発明の範囲を限定するものではない。すなわち、本発明の範囲は、実施形態ではなく、請求の範囲によって示される。そして、請求の範囲内及びそれと同等の発明の意義の範囲内で施される様々な変形が、この発明の範囲内とみなされる。

[0094] 本出願は、2020年7月22日に出願された、日本国特許出願特願2020-124865号に基づく。本明細書中に日本国特許出願特願2020-124865号の明細書、特許請求の範囲、図面全体を参照して取り込むものとする。

請求の範囲

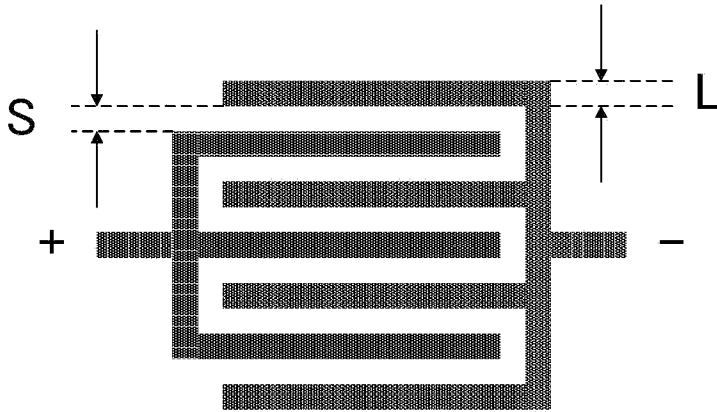
- [請求項1] 25℃において固形のエポキシ樹脂と、25℃において非固形のエポキシ樹脂と、前記非固形のエポキシ樹脂に分散された微粒子ゴムと、硬化剤と、無機充填剤と、ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンと、を含み、
- 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数に対して、前記微粒子ゴムの含有量が3～15質量部であり、
- 前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの酸価が10～30mg KOH/gであり、
- 前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの重量平均分子量が15000～50000である、熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項2] 前記微粒子ゴムは、コアシェルポリマー粒子から構成される、請求項1に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項3] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記微粒子ゴムと前記非固形のエポキシ樹脂の質量部数が15～40質量部である、請求項1又は2に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項4] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記ポリカーボネートジオール由来のポリウレタンの質量部数が50～100質量部である、請求項1から3のいずれか1項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項5] 前記固形のエポキシ樹脂及び前記非固形のエポキシ樹脂の全質量部数を100質量部としたとき、前記無機充填剤の質量部数が60～150質量部である、請求項1から4のいずれか1項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項6] 基材と前記基材の片面に積層された接着材層とから構成され、前記接着材層の接着材が請求項1から5のいずれか1項に記載の熱硬化性樹脂組成物から構成される、カバーレイフィルム。

[請求項7] 接着シートが請求項1から5のいずれか1項に記載の熱硬化性樹脂組成物から構成される、接着シート。

[請求項8] 配線が形成された基板と、基材と前記基材の片面に積層された接着材層とから構成されるカバーレイフィルムと、を備え、前記基板の前記配線が形成された面に前記接着材層が接するように前記カバーレイフィルムが設けられたフレキシブルプリント配線板であって、

前記カバーレイフィルムが請求項6に記載のカバーレイフィルムである、フレキシブルプリント配線板。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/025253

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
Int. Cl. C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J11/08(2006.01)i, C08L51/04(2006.01)i, C08L75/06(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, C09J175/06(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, C08G18/44(2006.01)i, C08K3/013(2018.01)i, C09J7/30(2018.01)i, H05K3/28(2006.01)i FI: C08L63/00 C, C08L51/04, C08K3/013, C08L75/06, C08G18/44, C09J7/30, C09J163/00, C09J11/08, C09J11/06, C09J11/04, C09J175/06, H05K3/28 F 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) Int. Cl. C09J11/04, C09J11/06, C09J11/08, C08L51/04, C08L75/06, C09J163/00, C09J175/06, C08L63/00, C08C18/44, C08K3/013, C09J7/30, H05K3/28		
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)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-204715 A (TOYOBO CO., LTD.) 16 August 2007 (2007-08-16)	1-8
A	JP 2009-96940 A (TOYO INK MANUFACTURING CO., LTD.) 07 May 2009 (2009-05-07)	1-8
A	JP 2013-176965 A (TOYOBO CO., LTD.) 09 September 2013 (2013-09-09)	1-8
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 24.08.2021		Date of mailing of the international search report 14.09.2021
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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/025253

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2007-204715 A	16.08.2007	(Family: none)	
JP 2009-96940 A	07.05.2009	(Family: none)	
JP 2013-176965 A	09.09.2013	US 2013/0310486 A1	
		EP 2716674 A1	
		CN 103443158 A	
		KR 10-2014-0015351 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C09J 11/04(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 11/08(2006.01)i; C08L 51/04(2006.01)i; C08L 75/06(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; C09J 175/06(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08G 18/44(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C09J 7/30(2018.01)i; H05K 3/28(2006.01)i</p> <p>FI: C08L63/00 C; C08L51/04; C08K3/013; C08L75/06; C08G18/44; C09J7/30; C09J163/00; C09J11/08; C09J11/06; C09J11/04; C09J175/06; H05K3/28 F</p>														
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C09J11/04; C09J11/06; C09J11/08; C08L51/04; C08L75/06; C09J163/00; C09J175/06; C08L63/00; C08G18/44; C08K3/013; C09J7/30; H05K3/28</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年													
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <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>A</td> <td>JP 2007-204715 A（東洋紡績株式会社）16.08.2007（2007 - 08 - 16）</td> <td>1-8</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2009-96940 A（東洋インキ製造株式会社）07.05.2009（2009 - 05 - 07）</td> <td>1-8</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2013-176965 A（東洋紡株式会社）09.09.2013（2013 - 09 - 09）</td> <td>1-8</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	A	JP 2007-204715 A（東洋紡績株式会社）16.08.2007（2007 - 08 - 16）	1-8	A	JP 2009-96940 A（東洋インキ製造株式会社）07.05.2009（2009 - 05 - 07）	1-8	A	JP 2013-176965 A（東洋紡株式会社）09.09.2013（2013 - 09 - 09）	1-8
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	JP 2007-204715 A（東洋紡績株式会社）16.08.2007（2007 - 08 - 16）	1-8												
A	JP 2009-96940 A（東洋インキ製造株式会社）07.05.2009（2009 - 05 - 07）	1-8												
A	JP 2013-176965 A（東洋紡株式会社）09.09.2013（2013 - 09 - 09）	1-8												
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>														
<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														
<p>国際調査を完了した日</p> <p>24.08.2021</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>14.09.2021</p>													
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP)</p> <p>〒100-8915</p> <p>日本国</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>中落 臣諭 4J 1202</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>													

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/JP2021/025253

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2007-204715 A	16.08.2007	(ファミリーなし)	
JP 2009-96940 A	07.05.2009	(ファミリーなし)	
JP 2013-176965 A	09.09.2013	US 2013/0310486 A1 EP 2716674 A1 CN 103443158 A KR 10-2014-0015351 A	