(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
2024年7月25日(25.07.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/154780 A1

(51) 国際特許分類:
G03F 7/027 (2006.01) *C08G 73/12* (2006.01)
C08F 290/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/001290

(22) 国際出願日： 2024年1月18日(18.01.2024)

(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 2023-006401 2023年1月19日(19.01.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社レゾナック (**RESONAC CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目９番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 河内 史彦 (**KAWAUCHI Fumihiko**); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目９番１号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). フェルナンデス ギジェルモ (**FERNANDEZ Guillermo**); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目９番１号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 牧野 竜也(**MAKINO Tatsuya**); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目９番１号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹，外(**HASEGAWA Yoshiki** et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目１番１号丸の内 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（明治安田生命ビル） ９階 創英国際特許法律事務所 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, 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: PHOTOSENSITIVE RESIN COMPOSITION, CURED PRODUCT, AND SEMICONDUCTOR ELEMENT

(54) 発明の名称： 感光性樹脂組成物、硬化物、及び半導体素子

(57) Abstract: A photosensitive resin composition according to the present disclosure contains a maleimide compound, a crosslinking agent, and a photopolymerization initiator. The maleimide compound is a reaction product of a tetracarboxylic dianhydride (a1), a diamine (a2), a triamine (a3), and maleic anhydride (a4). The diamine (a2) includes a dimer diamine.

(57) 要約：本開示に係る感光性樹脂組成物は、マレイミド化合物と、架橋剤と、光重合開始剤と、を含有し、マレイミド化合物が、テトラカルボン酸二無水物（ａ１）、ジアミン（ａ２）、トリアミン（ａ３）、及び無水マレイン酸（ａ４）の反応物であり、ジアミン（ａ２）が、ダイマージアミンを含む。

WO 2024/154780 A1

明　細　書

発明の名称 ： 感光性樹脂組成物、硬化物、及び半導体素子

技術分野

[0001]　本開示は、感光性樹脂組成物、硬化物、及び半導体素子に関する。

背景技術

[0002]　半導体素子の高集積化、小型化、及び微細化に伴い、半導体素子の表面保護層、層間絶縁層、再配線層等に用いられる絶縁膜には、より優れた電気特性、耐熱性、機械特性等を有することが求められている。このような特性を併せ持つ絶縁膜を形成するための材料として、アルカリ可溶性樹脂を含有する感光性樹脂組成物が開発されている（例えば、特許文献１、２及び３参照）。これらの感光性樹脂組成物を基板上に塗布及び乾燥して樹脂膜を形成し、該樹脂膜を露光及び現像することでパターン樹脂膜（パターン形成された樹脂膜）が得られる。そして、上記パターン樹脂膜を加熱硬化することでパターン硬化膜（パターン形成された硬化膜）を形成でき、該パターン硬化膜は絶縁膜として用いることができる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２００８－３０９８８５号公報

特許文献2：特開２００７－０５７５９５号公報

特許文献3：国際公開第２０１０／０７３９４８号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　再配線層等の絶縁膜を形成するための感光性樹脂組成物には、微細加工性、機械特性、及び誘電特性（低比誘電率及び低誘電正接）のバランスに優れることが求められている。そこで、本開示は、微細加工性、機械特性、及び誘電特性のバランスに優れる絶縁膜を形成することができる感光性樹脂組成物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

[0005] 本開示の一態様は、以下の感光性樹脂組成物、該感光性樹脂組成物の硬化物、及び半導体素子に関する。

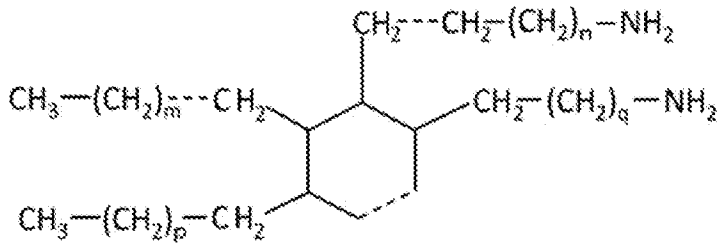
［１］マレイミド化合物と、架橋剤と、光重合開始剤と、を含有し、マレイミド化合物が、テトラカルボン酸二無水物（ａ１）、ジアミン（ａ２）、トリアミン（ａ３）、及び無水マレイン酸（ａ４）の反応物であり、ジアミン（ａ２）が、ダイマージアミンを含む、感光性樹脂組成物。

［２］ジアミン（ａ２）が、ダイマージアミン以外の第２のジアミンを含む、上記［１］に記載の感光性樹脂組成物。

［３］第２のジアミンが、脂環式ジアミン又は芳香族ジアミンである、上記［２］に記載の感光性樹脂組成物。

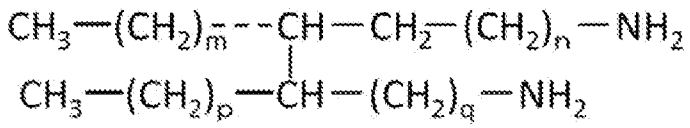
［４］ダイマージアミンが、下記一般式（１）で表される化合物及び下記一般式（２）で表される化合物のうちの少なくとも一種を含有する、上記［１］～［３］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

[化1]



(1)

[化2]



(2)

［式（１）及び（２）中、ｍ、ｎ、ｐ及びｑはそれぞれ、ｍ＋ｎ＝６～１７、ｐ＋ｑ＝８～１９となるように選ばれる１以上の整数を表し、破線で示した結合は、炭素－炭素単結合又は炭素－炭素二重結合を意味する。但し、破線で示した結合が炭素－炭素二重結合である場合、式（１）及び（２）は、炭素－炭素二重結合を構成する各炭素原子に結合する水素原子の数を、式（

１）及び（２）に示した数から１つ減じた構造となる。］

［５］テトラカルボン酸二無水物（ａ１）が、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物、３，３’，４，４’－ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物、４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタル酸無水物、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロフリル）－３－メチル－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物、ジシクロヘキシル－３，４，３’，４’－テトラカルボン酸二無水物、ビシクロ［２．２．２］オクタン－２，３，５，６－テトラカルボン酸２，３：５，６－二無水物、５，５’－ビス－２－ノルボルネン－５，５’，６，６’－テトラカルボン酸－５，５’，６，６’－二無水物、及び３，４’－ビフタル酸無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含有する、上記［１］～［４］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［６］トリアミン（ａ３）の含有量が、ジアミン（ａ２）及びトリアミン（ａ３）の総量を基準として５～３５モル％である、上記［１］～［５］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［７］マレイミド化合物の重量平均分子量が、３０００～４００００である、上記［１］～［６］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［８］マレイミド化合物が、フルオレン骨格を有する、上記［１］～［７］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［９］架橋剤が、（メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤を含む、上記［１］～［８］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［１０］架橋剤が、アリル基又はビニル基を有する重合性架橋剤を含む、上記［１］～［９］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［１１］熱重合開始剤を更に含有する、上記［１］～［１０］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物。

［１２］上記［１］～［１１］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物の硬化物。

［１３］上記［１］～［１１］のいずれかに記載の感光性樹脂組成物の硬化物を含む再配線層を有する、半導体素子。

発明の効果

[0006] 本開示によれば、微細加工性、機械特性、及び誘電特性のバランスに優れる絶縁膜を形成することができる感光性樹脂組成物、微細加工性、機械特性、及び誘電特性のバランスに優れる硬化物、及び該硬化物を含む再配線層を有する半導体素子を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0007] 以下、本開示の好適な実施形態について詳細に説明する。ただし、本発明は以下の実施形態に限定されるものではなく、その要旨の範囲内で種々変形して実施することができる。

[0008] 本明細書において、「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。本明細書に段階的に記載されている数値範囲において、ある段階の数値範囲の上限値又は下限値は、他の段階の数値範囲の上限値又は下限値と任意に組み合わせることができる。本明細書に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。「Ａ又はＢ」とは、Ａ及びＢのどちらか一方を含んでいればよく、両方とも含んでいてもよい。本明細書に例示する材料は、特に断らない限り、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。組成物中の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。

[0009] 本明細書において、「層」及び「膜」は、平面図として観察したときに、全面に形成されている形状の構造に加え、一部に形成されている形状の構造も包含される。「工程」との語は、独立した工程だけでなく、他の工程と明確に区別できない場合であっても、その工程の所期の目的が達成されれば、

本用語に含まれる。

[0010] 本明細書において、「（メタ）アクリロイル」とは、「アクリロイル」及びそれに対応する「メタクリロイル」の少なくとも一方を意味し、（メタ）アクリル酸、（メタ）アクリレート等の他の類似表現についても同様である。本明細書において、「固形分」とは、感光性樹脂組成物に含まれる揮発する物質（水、溶剤等）を除いた不揮発分を指し、室温（２５℃付近）で液状、水飴状、又はワックス状の成分も含む。

[0011] ［感光性樹脂組成物］

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、特定の構造を有するマレイミド化合物と、架橋剤と、光重合開始剤とを必須成分として含有する。上記マレイミド化合物は、テトラカルボン酸二無水物（ａ１）、ジアミン（ａ２）、トリアミン（ａ３）、及び無水マレイン酸（ａ４）の反応物であり、ジアミン（ａ２）が、ダイマージアミンを含む。

[0012] 本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、必要に応じて、熱重合開始剤、カップリング剤、防錆剤、重合禁止剤等を更に含有してもよい。本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、ネガ型の感光性樹脂組成物であり、感光性樹脂組成物の硬化物は、再配線層用の絶縁膜として好適に用いることができる。以下、本実施形態の感光性樹脂組成物で用いられる各成分についてより詳細に説明する。

[0013] （マレイミド化合物）

本実施形態に係るマレイミド化合物（以下、「（Ａ）成分」ともいう。）は、テトラカルボン酸二無水物（ａ１）（以下、「（ａ１）成分」ともいう。）、ジアミン（ａ２）（以下、「（ａ２）成分」ともいう。）、トリアミン（ａ３）（以下、「（ａ３）成分」ともいう。）、及び無水マレイン酸（ａ４）（以下、「（ａ４）成分」ともいう。）を反応させて得ることができる。すなわち、（Ａ）成分は、（ａ１）成分、（ａ２）成分、（ａ３）成分、及び（ａ４）成分を反応させてなるマレイミド化合物である。ここで、上記（ａ２）成分はダイマージアミンを含む。（Ａ）成分は、マレイミド基を

２以上有する多官能のマレイミド化合物である。（Ａ）成分は１種単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

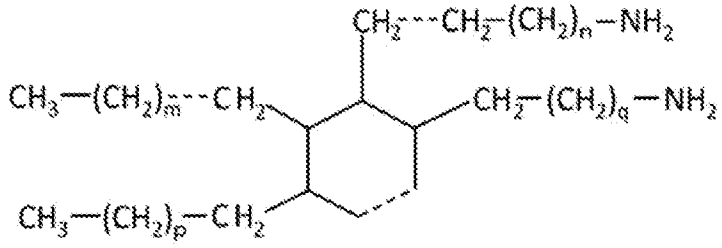
[0014] （ａ１）成分のテトラカルボン酸二無水物としてはポリイミドの原料として公知のものを使用できる。（ａ１）成分としては、例えば、無水ピロメリット酸、４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタル酸無水物、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、３，３’，４，４’－ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、３，３’，４，４’－ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、３，３’，４，４’－ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物、１，２，３，４－ブタンテトラカルボン酸二無水物、１，２，３，４－シクロブタンテトラカルボン酸二無水物、１，２，３，４－シクロペンタンテトラカルボン酸二無水物、１，２，３，４－テトラメチル－１，２，３，４－シクロブタンテトラカルボン酸二無水物、ビシクロ［２．２．２］オクト－７－エン－２，３，５，６－テトラカルボン酸二無水物、ビス（１，３－ジオキソ－１，３－ジヒドロイソベンゾフラン－５－カルボン酸）１，４－フェニレン、９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物、４，４’－（エチン－１，２－ジイル）ジフタル酸無水物、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロフリル）－３－メチル－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物、ジシクロヘキシル－３，４，３’，４’－テトラカルボン酸二無水物、３，４’－オキシジフタル酸無水物、４，４’－オキシジフタル酸無水物、３，４’－ビフタル酸無水物、ノルボルナン－２－スピロ－α－シクロペンタノン－α’－スピロ－２’’－ノルボルナン－５，５’’，６，６’’－テトラカルボン酸二無水物、５，５’－ビス－２－ノルボルネン－５，５’，６，６’－テトラカルボン酸－５，５’，６，６’－二無水物、及び９，９－ビス［４－（３，４－ジカルボキシフェノキシ）フェニル］フルオレン二無水物が挙げられる。

[0015] 低誘電特性又は高Ｔｇの観点から、（ａ１）成分は、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物、３，３’，４，４’－ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物、４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタル酸無水物、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロフリル）－３－メチル－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物、ジシクロヘキシル－３，４，３’，４’－テトラカルボン酸二無水物、ビシクロ［２．２．２］オクタン－２，３，５，６－テトラカルボン酸２，３：５，６－二無水物、５，５’－ビス－２－ノルボルネン－５，５’，６，６’－テトラカルボン酸－５，５’，６，６’－二無水物、及び３，４’－ビフタル酸無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含有することが好ましく、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物、及び４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタル酸無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含有することがより好ましい。

[0016] （ａ２）成分は、ダイマージアミン（第１のジアミン）を必須成分として含有する。ダイマージアミンは、例えば、特開平９－１２７１２号公報に記載されているように、オレイン酸等の不飽和脂肪酸の二量体であるダイマー酸から誘導される化合物である。（ａ２）成分としてダイマージアミンを用いることで、誘電特性に優れる硬化物を得ることができる。本実施形態では、公知のダイマージアミンを特に制限なく使用できる。（ａ２）成分は、例えば下記一般式（１）で表される化合物及び下記一般式（２）で表される化合物のうちの少なくとも一種を含むことが好ましい。

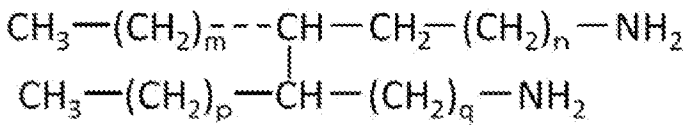
[0017]

[化3]



(1)

[化4]

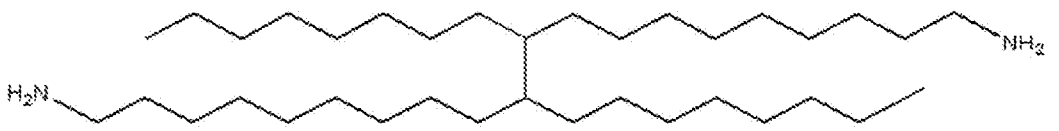


(2)

[0018] 式（１）及び（２）中、ｍ、ｎ、ｐ及びｑはそれぞれ、ｍ＋ｎ＝６～１７、ｐ＋ｑ＝８～１９となるように選ばれる１以上の整数を表し、破線で示した結合は、炭素－炭素単結合又は炭素－炭素二重結合を意味する。但し、破線で示した結合が炭素－炭素二重結合である場合、式（１）及び（２）は、炭素－炭素二重結合を構成する各炭素原子に結合する水素原子の数を、式（１）及び（２）に示した数から１つ減じた構造となる。

[0019] ダイマージアミンとしては、有機溶剤への溶解性、耐熱性、耐熱接着性、低粘度等の観点より、上記一般式（２）で表されるジアミンであってよく、特に下記式（３）で表される化合物であってよい。

[化5]



(3)

[0020] ダイマージアミンの市販品としては、例えば、ＰＲＩＡＭＩＮＥ１０７５、ＰＲＩＡＭＩＮＥ１０７４（いずれもクローダジャパン（株）製）等が挙げられる。

[0021] （ａ２）成分は、第２のジアミンとして、ダイマージアミン以外のジアミンを更に含んでもよい。第２のジアミンとして脂環式ジアミンを使用することで、誘電率をより低くすることができる。第２のジアミンとして芳香族ジ

アミンを使用することで、硬化物の弾性率及びＴｇを向上させることができる。

[0022] 第２のジアミンは、上述したダイマージアミンに該当しないジアミンである。第２のジアミンとしては、例えば、１，３－ジアミノプロパン、ノルボルナンジアミン、４，４－メチレンジアニリン、１，３－ビス［２－（４－アミノフェニル）－２－プロピル］ベンゼン、４，４’－ジアミノ－２，２’－ビス（トリフルオロメチル）ビフェニル、２，２－ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］ヘキサフルオロプロパン、９，９－ビス（４－アミノフェニル）フルオレン、９，９－ビス［３－フルオロ－４－アミノフェニル］フルオレン、９，９－ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］フルオレン、１，３－ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、１，４－ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、ビス（アミノメチル）ノルボルナン、４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジアニリン、３（４），８（９）－ビス（アミノメチル）トリシクロ［５．２．１．０^{2,6}］デカン、１，３－シクロヘキサンジアミン、１，４－シクロヘキサンジアミン、イソホロンジアミン、４，４’－メチレンビス（シクロヘキシルアミン）、４，４’－メチレンビス（２－メチルシクロヘキシルアミン）、１，１－ビス（４－アミノフェニル）シクロヘキサン、２，７－ジアミノフルオレン、４，４’－エチレンジアニリン、４，４’－メチレンビス（２，６－ジエチルアニリン）、４，４’－メチレンビス（２－エチル－６－メチルアニリン）、２，２－ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］プロパン、ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］メタン、４，４’－ビス（４－アミノフェノキシ）ビフェニル、ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］エーテル、ビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］ケトン、１，３－ビス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、１，４－ビス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、２，２’－ジメチルビフェニル－４，４’－ジアミン、（４，４’－ジアミノ）ジフェニルエーテル、（３，３’－ジアミノ）ジフェニルエーテ、パラフェニレンジアミン、オルトフェニレンジアミン、

メタフェニレンジアミン、４，４’－ジアミノ－２，２’－ジエチルビフェニル、４，４’－ジアミノ－３，３’－ジメチルビフェニル、４，４’－ジアミノ－３，３’－ジエチルビフェニル、４，４’－ジアミノ－３，３’，５，５’－テトラメチルビフェニル、４，４’－ジアミノ－３，３’，５，５’－テトラエチルビフェニル、４，４’－ジアミノ－２，２’－ジメトキシビフェニル、４，４’－ジアミノ－３，３’－ジメトキシビフェニル、メタキシリレンジアミン、４，４’－ジアミノジフェニルメタン、４，４’－ジアミノジフェニルエーテル、３，３’－ジアミノジフェニルエーテル、１，４’－ビス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、ビス［４－（３－アミノフェノキシ）フェニル］スルホン、及びビス［４－（４－アミノフェノキシ）フェニル］スルホンが挙げられる。

[0023] （ａ２）成分中、第２のジアミンのモル比（第２のジアミンのモル数／（ダイマージアミンのモル数＋第２のジアミンのモル数））は、７０モル％以下であってもよく、５０モル％以下であってもよい。この比が７０モル％以下であると、より低誘電特性を有する硬化物を形成することができる。

[0024] （ａ３）成分のトリアミンとしては公知のものを使用できる。（ａ３）成分としては、例えば、トリス（２－アミノメチル）アミン、トリス（２－アミノエチル）アミン、トリス（２－アミノプロピル）アミン、２－（アミノメチル）－２－メチル－１，３－プロパンジアミン、トリマートリアミン、３，４，４’－トリアミノジフェニルエーテル、１，２，４－トリアミノベンゼン、１，３，５－トリアミノベンゼン、１，２，３－トリアミノベンゼン、１，３，５－トリアジン－２，４，６－トリアミン、２，４，６－トリアミノピリミジン、１，３，５－トリス（４－アミノフェニル）ベンゼン、１，３，５－トリス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、及びトリス（４－アミノフェニル）メタンが挙げられる。これらの内、合成したマレイミド化合物の有機溶剤への溶解性の観点から、脂肪族のトリアミンが好ましく、更に、炭素数が少ないトリス（２－アミノメチル）アミン、トリス（２－アミノエチル）アミンが高Ｔｇ化の観点でより好ましい。

[0025] （ａ３）成分の含有量は、（ａ２）成分及び（ａ３）成分の総量を基準として、５モル％以上、８モル％以上、又は１０モル％以上であってもよく、５０モル％以下、４０モル％以下、又は、３５モル％以下であってもよい。この比が５モル％以上であると、硬化物の弾性率及びＴｇをより向上させることができ、５０モル％以下であると、溶剤に溶解し易く合成し易くなる。上記観点から、（ａ３）成分の含有量は、（ａ２）成分及び（ａ３）成分の総量を基準として、５～５０モル％であってもよく、５～３５モル％であってもよい。

[0026] ジアミンとしてダイマージアミンを用いることで、より低誘電特性を有する硬化物を形成することができる。一方で、ジアミンとしてダイマージアミンのみを用いた場合、硬化物の弾性率及びＴｇが低下することとなる。これに対し、トリアミンをダイマージアミンと併用することで、硬化物の誘電特性を維持したまま弾性率及びＴｇを向上させることができる。更に、第２のジアミンをダイマージアミンと併用することで、硬化物の誘電特性を維持したまま弾性率及びＴｇをより向上させることができる。

[0027] マレイミド化合物が、フルオレン骨格を有することができる。この場合、上述した（ａ１）成分及び（ａ２）成分の少なくとも一方は、フルオレン骨格を有する化合物を含んでもよい。マレイミド化合物を構成する（ａ１）成分及び（ａ２）成分の少なくとも一方がフルオレン骨格を有する化合物を含むことで、当該マレイミド化合物を用いて得られる硬化物は、低誘電率及び低誘電正接が十分に維持されつつ、高弾性率化及び高Ｔｇ化されたものとなる。

[0028] （Ａ）成分は、各種公知の方法により製造できる。例えば、先ず、（ａ１）成分、（ａ２）成分、及び（ａ３）成分を６０～１２０℃程度、好ましくは７０～９０℃の温度において、通常０．１～２時間程度、好ましくは０．１～１．０時間重付加反応させる。次いで、得られた重付加物を更に８０～２５０℃程度、好ましくは１００～２００℃の温度において、０．５～３０時間程度、好ましくは０．５～１０時間イミド化反応、即ち脱水閉環反応さ

せる。続いて、脱水閉環反応させた物と（ａ４）成分とを６０～２５０℃程度、好ましくは８０～２００℃の温度において、０．５～３０時間程度、好ましくは０．５～１０時間マレイミド化反応、即ち脱水閉環反応させることにより、目的とする（Ａ）成分が得られる。

[0029] イミド化反応又はマレイミド化反応において、各種公知の反応触媒、脱水剤、及び有機溶剤を使用できる。

[0030] 反応触媒としては、例えば、トリエチルアミン等の脂肪族第３級アミン類、ジメチルアニリン等の芳香族第３級アミン類、ピリジン、ピコリン、イソキノリン等の複素環式第３級アミン類、及びメタンスルホン酸、パラトルエンスルホン酸一水和物等の有機酸が挙げられる。脱水剤としては、例えば、無水酢酸等の脂肪族酸無水物、及び無水安息香酸等の芳香族酸無水物が挙げられる。

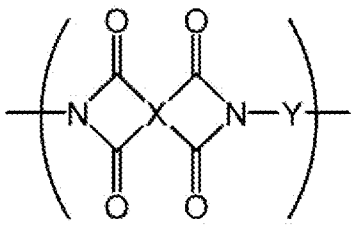
[0031] 有機溶剤としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン、プソイドクメン等の芳香族炭化水素系溶剤；メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、プロパンジオール、フェノール等のアルコール系溶剤；アニソール等のエーテル系溶剤；アセトン、メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトン、ペンタノン、ヘキサノン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、イソホロン、アセトフェノン等のケトン系溶剤；メチルセルソルブ、エチルセルソルブ等のセルソルブ類、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、ギ酸ブチル、γ－ブチロラクトン等のエステル系溶剤；エチレングリコールモノ－ｎ－ブチルエーテル、エチレングリコールモノ－ｉｓｏ－ブチルエーテル、エチレングリコールモノ－ｔｅｒｔ－ブチルエーテル、ジエチレングリコールモノ－ｎ－ブチルエーテル、ジエチレングリコールモノ－ｉｓｏ－ブチルエーテル、トリエチレングリコールモノ－ｎ－ブチルエーテル、テトラエチレングリコールモノ－ｎ－ブチルエーテ等のグリコールエーテル系溶剤；及びＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチル－２－ピロリドン、Ｎ－エチル－２－ピロリドン、３－メトキシ

－Ｎ，Ｎ－ジメチルプロパンアミド、３－ブトキシ－Ｎ，Ｎ－ジメチルプロパンアミド等のアミド系溶剤が挙げられる。有機溶剤は１種単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

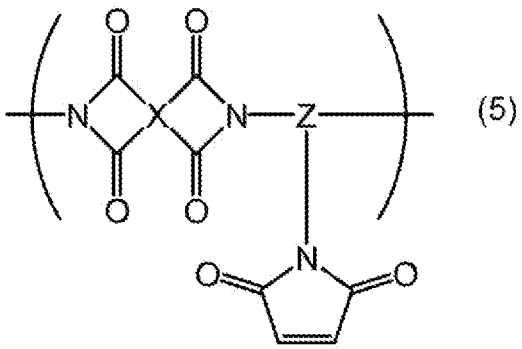
[0032] （Ａ）成分は各種公知の方法により精製でき、純度を上げることができる。例えば、先ず、有機溶剤に溶かした（Ａ）成分と純水とを分液ロートに入れる。次いで、分液ロートを振り、静置させる。続いて、水層と有機層とが分離した後、有機層のみを回収することで、（Ａ）成分を精製できる。

[0033] 上記方法により製造される（Ａ）成分は、下記一般式（４）～（６）で表される構造単位のうちの一種以上を含んでいてもよい。（Ａ）成分の官能基数（マレイミド基の数）の範囲としては、トリアミンの含有量によるが、１分子あたり２～６個の官能基数を有すると想定される。（Ａ）成分は、異なる構造又は異なる官能基数を有する複数の化合物の混合物であってよい。（Ａ）成分は、下記一般式（５）～（６）で表される構造単位のうちの一種以上を含む、１分子あたり３個以上の官能基を有する化合物を含有していてよい。

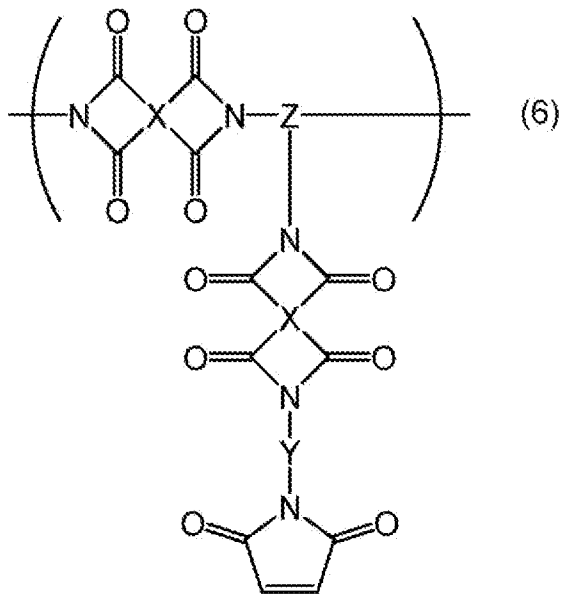
[0034] [化6]



[化7]



[化8]

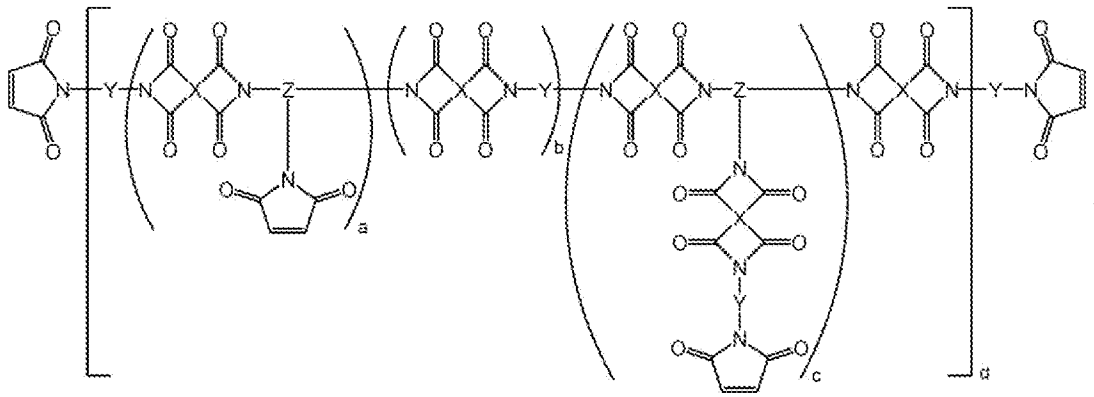


(6)

[0035] 式（４）～（６）中、Ｘは各々独立に４価の有機基を示し、Ｙは各々独立に２価の有機基を示し、Ｚは各々独立に３価の有機基を示す。Ｘ、Ｙ及びＺは、脂肪族基、脂環構造又は芳香族環を有する有機基であってよく、それらはヘテロ原子を含んでいてもよい。Ｙはダイマージアミンに由来する有機基であってよく、Ｚはトリアミン（ａ３）に由来する有機基であってよい。

[0036] 上記方法により製造される（Ａ）成分の想定される構造の一例を下記一般式（７）に示す。

[化9]



(7)

[0037] 式（７）中のＸ、Ｙ及びＺは、一般式（４）～（６）中のＸ、Ｙ及びＺと同義である。また、ａは０～２０の整数を示し、ｂは０～３０、ｃは０～２０、ｄは１～３０の整数を示す。一般式（７）において、符号ａが付された

構造単位（上記一般式（５）で表される構造単位）、符号ｂが付された構造単位（上記一般式（４）で表される構造単位）、及び、符号ｃが付された構造単位（上記一般式（６）で表される構造単位）の位置は互いに入れ替わっていてもよい。（Ａ）成分は、ａ及びｃの少なくとも一方が１以上の整数である、１分子あたり３個以上の官能基を有する化合物を含んでいてよい。

[0038] （Ａ）成分の分子量は、（ａ１）成分と（ａ２）成分と（ａ３）成分のモル数で制御することができ、（ａ１）成分のモル数が（ａ２）成分と（ａ３）成分を合わせたモル数より小さいほど、分子量を小さくすることができる。本開示の効果を達成し易くする目的において、通常、〔（ａ１）成分のモル数〕／〔（ａ２）成分のモル数＋（ａ３）成分のモル数〕が０．３０～１．００程度、好ましくは０．３０～０．９５、より好ましくは０．３０～０．９０、更に好ましくは０．５０～０．８０の範囲がよい。

[0039] （Ａ）成分の分子量としては、重量平均分子量（Ｍｗ）で３０００以上、５０００以上、６０００以上、又は７０００以上であってもよく、４００００以下、３８０００以下、３５０００以下、３３０００以下、３００００以下、２５０００以下、又は２００００以下であってもよい。重量平均分子量が４００００以下であると有機溶剤への溶解性が良好となり、３０００以上であると、耐熱性を向上させる効果が十分に得られる傾向がある。Ｍｗは、溶剤への溶解性及び耐熱性の観点から、３０００～４００００であってよく、３０００～３００００が好ましく、５０００～２５０００がより好ましく、６０００～２３０００が更に好ましく、７０００～２００００が特に好ましい。Ｍｗは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）によって測定し、標準ポリスチレンの検量線を用いて換算することができる。

[0040] （架橋剤）

架橋剤（以下「（Ｂ）成分」ともいう。）は、重合性架橋剤であってよい。重合性基は、光重合性基であってもよく、熱重合性基であってもよい。重合性基としては、例えば、（メタ）アクリロイル基、アリル基、及びビニル基が挙げられる。（Ｂ）成分は、重合性基を２以上有する多官能化合物であ

ってよい。架橋剤は、例えば、感光層の露光時に架橋剤同士だけでなく、（Ａ）成分とも架橋することができる。また、架橋剤は、例えば、パターン形成後の樹脂膜の加熱時に重合性架橋剤同士で架橋することができる。（Ｂ）成分は１種単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0041] 本実施形態に係る樹脂組成物は、誘電特性の観点から、架橋剤として（メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤を含有してもよい。（メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤は、感光層の露光時に架橋剤同士だけでなく、（Ａ）成分とも架橋することができる。（メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤は、アクリレート化合物又はメタクリレート化合物であってもよい。（Ｂ）成分は、誘電特性の観点から、メタクリレート化合物を含んでもよい。

[0042] （メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤としては、例えば、トリシクロデカンジメタノールジ（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、ジオキサングリコールジ（メタ）アクリレート、アルコキシ化グリセリントリ（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、アルコキシ化トリメチロールプロパントリ（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、アルコキシ化ペンタエリスリトールテトラ（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、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、１，１０－デカンジオールジ（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、エトキシ化ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート、プロポキシ化エトキシ化ビスフェノールＡ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールポリ（メタ）アクリレート、アルコキシ化ジペンタエリスリトールポリ（メタ）アクリレート、エトキシ化イソシアヌル酸トリ（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、及びポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0043] （メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤は、耐熱性、誘電特性、及び微細加工性の観点から、トリシクロデカンジメタノールジ（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、及びジオキサングリコールジ（メタ）アクリレートからなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよく、耐熱性及び誘電特性の観点から、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含んでもよい。

[0044] 本実施形態に係る樹脂組成物は、架橋剤として、誘電特性及び耐熱性の観点から、アリル基又はビニル基を有する重合性架橋剤を含有してもよい。アリル基又はビニル基を有する重合性架橋剤は、パターン形成後の樹脂膜の加熱時に重合性架橋剤同士で架橋することができる。

[0045] アリル基を有する重合性架橋剤としては、例えば、１，３，４，６－テトラアリルグリコールウリル、トリアリルイソシアヌレート、ジアリルモノグリシジルイソシアヌレート、ジアリルモノメチルイソシアヌレート、ジアリルイソシアヌレート、トリアリルトリメリテート、及びオルトギ酸トリアリルが挙げられる。

[0046] ビニル基を有する重合性架橋剤としては、例えば、ポリビニルベンジル化合物及びポリビニルベンジルエーテル化合物が挙げられる。

[0047] アリル基又はビニル基を有する重合性架橋剤は、誘電特性及び微細加工性の観点から、１，３，４，６－テトラアリルグリコールウリル、トリアリルイソシアヌレート、ジアリルイソシアヌレート、及びポリビニルベンジルエーテル化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよく、誘電特性の観点から、１，３，４，６－テトラアリルグリコールウリル又はトリアリルイソシアヌレートを含んでもよい。

[0048] 低誘電特性と微細加工性とのバランスをより高める観点から、（Ｂ）成分の含有量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量を１００質量部としたときに、５０質量部未満が好ましく、１～４５質量部、５～４０質量部、８～３０質量部、又は１０～２０質量部であってもよい。

[0049]（光重合開始剤）

光重合開始剤（以下「（Ｃ）成分」ともいう。）としては、活性光線（紫外線等）の照射によって重合を開始させる化合物であれば特に制限はないが、例えば、アルキルフェノン系光重合開始剤、アシルホスフィンオキサイド系光重合開始剤、分子内水素引き抜き型光重合開始剤、及びオキシムエステル系光重合開始剤が挙げられる。

[0050] アルキルフェノン系光重合開始剤は、例えば、ＩＧＭ Ｒｅｓｉｎｓ Ｂ．Ｖ．製のＯｍｎｉｒａｄ ６５１、Ｏｍｎｉｒａｄ １８４、Ｏｍｎｉｒａｄ １１７３、Ｏｍｎｉｒａｄ ２９５９、Ｏｍｎｉｒａｄ １２７、Ｏｍｎｉｒａｄ ９０７、Ｏｍｎｉｒａｄ ３６９、Ｏｍｎｉｒａｄ ３７９ＥＧ等として購入可能である。アシルホスフィンオキサイド系光重合開始剤は、例えば、ＩＧＭ Ｒｅｓｉｎｓ Ｂ．Ｖ．製のＯｍｎｉｒａｄ ８１９、Ｏｍｎｉｒａｄ ＴＰＯ Ｈ等として購入可能である。分子内水素引き抜き型光重合開始剤は、例えば、ＩＧＭ Ｒｅｓｉｎｓ Ｂ．Ｖ．製のＯｍｎｉｒａｄ ＭＢＦ、Ｏｍｎｉｒａｄ ７５４等として購入可能である。オキシムエステル系光重合開始剤は、例えば、ＢＡＳＦジャパン株式会社製のＩｒｇａｃｕｒｅ ＯＸＥ０１、Ｉｒｇａｃｕｒｅ ＯＸＥ０２等として購入可能である。光反応を促進するために、チタノセン系の光重合開始剤（例えば、ＢＡＳＦジャパン株式会社製のＩｒｇａｃｕｒｅ ７８４）を併用してもよい。

[0051] （Ｃ）成分の含有量は、優れた微細加工性が得られ易いことから、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して０．１～１０．０質量部、０．５～８．０質量部、０．８～６．０質量部、又は１．０～５．０質量部であってもよい。

[0052]（熱重合開始剤）

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、熱重合性基の重合反応を促進する観点から、（Ｄ）成分として熱重合開始剤を更に含有してもよい。（Ｄ）成分としては、硬化時の加熱により分解してラジカルを発生し、（Ａ）成分及

び（Ｂ）成分の重合反応を促進する化合物が好ましい。（Ｄ）成分として、例えば、有機過酸化物が挙げられる。

[0053] 有機過酸化物としては、例えば、メチルエチルケトンパーオキサイド、メチルシクロヘキサノンパーオキサイド、メチルアセトアセテートパーオキサイド、アセチルアセトンパーオキサイド、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ヘキシルパーオキシ）シクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ヘキシルパーオキシ）－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）シクロヘキサン、２，２－ビス（４，４－ジ－ｔ－ブチルパーオキシシクロヘキシル）プロパン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）シクロドデカン、ｎ－ブチル－４，４－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）バレレート、２，２－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ブタン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）－２－メチルシクロヘキサン、ｔ－ブチルハイドロパーオキサイド、ｐ－メンタンハイドロパーオキサイド、１，１，３，３－テトラメチルブチルハイドロパーオキサイド、ｔ－ヘキシルハイドロパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、α，α’－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ジイソプロピルベンゼン、ｔ－ブチルクミルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキシン－３、イソブチリルパーオキサイド、３，５，５－トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、桂皮酸パーオキサイド、ｍ－トルオイルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス（４－ｔ－ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート、ジ－３－メトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ－２－エチルヘキシルパーオキシジカーボネート、ジ－ｓｅｃ－ブチルパーオキシジカーボネート、ジ（３－メチル－３－メトキシブチル）パーオキシジカーボネート、ジ（４－ｔ－ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート、α，α’－ビス（ネオデカ

ノイルパーオキシ）ジイソプロピルベンゼン、クミルパーオキシネオデカノエート、１，１，３，３，－テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシネオデカノエート、ｔ－ヘキシルパーオキシネオデカノエート、ｔ－ブチルパーオキシネオデカノエート、ｔ－ヘキシルパーオキシピバレート、ｔ－ブチルパーオキシピバレート、２，５－ジメチル－２，５－ビス（２－エチルヘキサノイルパーオキシ）ヘキサン、１，１，３，３－テトラメチルブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、ｔ－ヘキシルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、ｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、ｔ－ブチルパーオキシイソブチレート、ｔ－ブチルパーオキシマレイックアシッド、ｔ－ブチルパーオキシラウレート、ｔ－ブチルパーオキシ－３，５，５－トリメチルヘキサノエート、ｔ－ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、ｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキシルモノカーボネート、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ベンゾイルパーオキシ）ヘキサン、ｔ－ブチルパーオキシアセテート、ｔ－ヘキシルパーオキシベンゾエート、ｔ－ブチルパーオキシ－ｍ－トルオイルベンゾエート、ｔ－ブチルパーオキシベンゾエート、ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）イソフタレート、ｔ－ブチルパーオキシアリルモノカーボネート、及び３，３’，４，４’－テトラ（ｔ－ブチルパーオキシカルボニル）ベンゾフェノンが挙げられる。

[0054] （Ｄ）成分の含有量は、特に限定されないが、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して、０．１～１０．０質量部、０．３～８．０質量部、０．５～５．０質量部、０．７～３．０質量部、又は０．７～２．０質量部であってもよい。

[0055] （カップリング剤）

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、感光性樹脂組成物の硬化物の密着性を向上する観点から、カップリング剤を更に含有してもよい。カップリング剤は、シランカップリング剤であってよい。シランカップリング剤は、例

えば、ビニル基、エポキシ基、スチリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、アミノ基、ウレイド基、イソシアネート基、イソシアヌレート基、メルカプト基等の基を有していてよい。

[0056] ビニル基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－１００３、ＫＢＥ－１００３（信越化学工業株式会社製の商品名。以下同様。）等が挙げられる。エポキシ基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－３０３、４０２、４０３、ＫＢＥ－４０２、４０３、Ｘ－１２－９８１Ｓ、Ｘ－１２－９８４Ｓ等が挙げられる。スチリル基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－１４０３等が挙げられる。メタクリロイル基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－５０２、５０３、ＫＢＥ－５０２、５０３等が挙げられる。アクリロイル基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－５１０３、Ｘ－１２－１０４８、Ｘ－１２－１０５０等が挙げられる。アミノ基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－６０２、６０３、９０３、５７３、５７５、ＫＢＥ－９０３、９１０３Ｐ、Ｘ－１２－９７２Ｆ等が挙げられる。ウレイド基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＥ－５８５等が挙げられる。イソシアネート基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＥ－９００７、Ｘ－１２－１１５９Ｌ等が挙げられる。イソシアヌレート基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－９６５９等が挙げられる。メルカプト基を有するシランカップリング剤としては、ＫＢＭ－８０２、８０３、Ｘ－１２－１１５４、Ｘ－１２－１１５６等が挙げられる。シランカップリング剤は、メタクリロイル基を有するシランカップリング剤であってもよい。シランカップリング剤は、１種単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0057] シランカップリング剤の含有量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して、０．０１～１０．０質量部、０．１～８．０質量部、０．３～６．０質量部、０．５～５．０質量部、又は１．０～３．０質量部であってもよい。

[0058] （防錆剤）

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、銅配線の腐食を抑制又は変色を防止する観点から、防錆剤を更に含有してもよい。防錆剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール等のトリアゾール誘導体、テトラゾール誘導体などが挙げられる。防錆剤は１種単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせてもよい。

[0059] 防錆剤の含有量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して、０．０１～１０．０質量部、０．１～５．０質量部、０．３～４．０質量部、０．５～３．０質量部、又は１．０～３．０質量部であってよい。

[0060] （重合禁止剤）

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、保存安定性の観点から、重合禁止剤を更に含有してもよい。

[0061] 重合禁止剤としては、例えば、４－ｔｅｒｔ－ブチルカテコール、４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－１－オキシラジカル、ｐ－メトキシフェノール、ジフェニル－ｐ－ベンゾキノン、ベンゾキノン、ハイドロキノン、ピロガロール、フェノチアジン、レゾルシノール、オルトジニトロベンゼン、パラジニトロベンゼン、メタジニトロベンゼン、フェナントラキノン、Ｎ－フェニル－２－ナフチルアミン、クペロン、２，５－トルキノン、タンニン酸、パラベンジルアミノフェノール、トリス（４－ｔｅｒｔ－ブチル－３－ヒドロキシ－２，６－ジメチルベンジル）イソシアヌル酸、及びニトロソアミン類が挙げられる。重合禁止剤は１種単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせてもよい。

[0062] 重合禁止剤の含有量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して、０．０１～１０．０質量部、０．０５～５．０質量部、０．１０～２．０質量部、又は０．１０～１．０質量部であってもよい。

[0063] （増感剤）

感光性樹脂組成物は、広範囲の露光量における残膜率の維持と良好な解像性との両立の観点から、増感剤を更に含有してもよい。

[0064] 増感剤としては、例えば、ミヒラーズケトン、ベンゾイン、２－メチルベ

ンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインブチルエーテル、２－ｔ－ブチルアントラキノン、１，２－ベンゾ－９，１０－アントラキノン、アントラキノン、メチルアントラキノン、４，４’－ビス（ジエチルアミノ）ベンゾフェノン、アセトフェノン、ベンゾフェノン、チオキサントン、１，５－アセナフテン、２，２－ジメトキシ－２－フェニルアセトフェノン、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、２－メチル－［４－（メチルチオ）フェニル］－２－モルフォリノ－１－プロパノン、ジアセチルベンジル、ベンジルジメチルケタール、ベンジルジエチルケタール、ジフェニルジスルフィド、アントラセン、フェナンスレンキノン、リボフラビンテトラブチレート、アクリジンオレンジ、エリスロシン、フェナンスレンキノン、２－イソプロピルチオキサントン、２，６－ビス（ｐ－ジエチルアミノベンジリデン）－４－メチル－４－アザシクロヘキサノン、６－ビス（ｐ－ジメチルアミノベンジリデン）－シクロペンタノン、２，６－ビス（ｐ－ジエチルアミノベンジリデン）－４－フェニルシクロヘキサノン、アミノスチリルケトン、３－ケトクマリン化合物、ビスクマリン化合物、Ｎ－フェニルグリシン、Ｎ－フェニルジエタノールアミン、及び３，３’，４，４’－テトラ（ｔ－ブチルパーオキシカルボニル）ベンゾフェノンが挙げられる。増感剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせてもよい。

[0065] 感光性樹脂組成物が増感剤を含有する場合、その含有量は、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分の総量１００質量部に対して、０．１～２．０質量部が好ましく、０．２～１．５質量部がより好ましい。

[0066]（溶剤）

本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、各成分を溶解・分散させるための溶剤を含有することにより、基板上への塗布を容易にし、均一な厚さの塗膜を形成できる。溶剤は１種単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせてもよい。

[0067] 溶剤としては、例えば、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、シクロ

ペンタノン等のケトン系溶剤；トルエン、キシレン、テトラメチルベンゼン、メシチレン、プソイドクメン等の芳香族炭化水素系溶剤；メチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、メチルカルビトール、ブチルカルビトール、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エチルエーテル、ジプロピレングリコールジメチルエーテル、ジプロピレングリコールジエチルエーテル、トリエチレングリコールモノエチルエーテル等のグリコールエーテル系溶剤；酢酸エチル、酢酸ブチル、ブチルセロソルブアセテート、カルビトールアセテート、γ－ブチロラクトン等のエステル系溶剤；及びＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチル－２－ピロリドン、Ｎ－エチル－２－ピロリドン、３－メトキシ－Ｎ，Ｎ－ジメチルプロパンアミド、３－ブトキシ－Ｎ，Ｎ－ジメチルプロパンアミド等のアミド系溶剤が挙げられる。

[0068] 溶剤の配合量は、特に限定されないが、感光性樹脂組成物中の固形分量が５～６０質量％、１０～５０質量％、又は１５～４０質量％となるような量であってもよい。

[0069] 感光性樹脂組成物の調製手段、条件等は、特に限定されない。例えば、所定配合量の各主成分をミキサー等によって十分に均一に撹拌及び混合した後、ミキシングロール、押出機、ニーダー、ロール、エクストルーダー等を用いて混練する方法が挙げられる。混練方法は、特に限定されない。

[0070] 本実施形態に係る感光性樹脂組成物の硬化物の１０ＧＨｚでの比誘電率は、２．８０以下、２．７５以下、又は２．７０以下であってもよい。感光性樹脂組成物の硬化物の１０ＧＨｚでの誘電正接は、０．００６０以下、０．００５０以下、０．００４５以下、又は０．００４０以下であってもよい。比誘電率及び誘電正接は、感光性樹脂組成物の硬化膜を用いて、実施例に記載の方法で測定することができる。

[0071] 本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、微細なパターンを形成することが可能である。本実施形態に係る感光性樹脂組成物は、低誘電特性を示すと共に絶縁信頼性に優れる絶縁膜を形成可能である。上述の感光性樹脂組成物の

硬化物から形成された層間絶縁層を備える半導体素子、該半導体素子を含む電子デバイスを作製することができる。半導体素子は、本実施形態に係る感光性樹脂組成物の硬化物を含む再配線層を有することで、高周波特性を向上することができる。半導体素子は、例えば、多層配線構造、再配線構造等を有する、メモリ、パッケージ等であってよい。電子デバイスとしては、例えば、携帯電話、スマートフォン、タブレット型端末、パソコン、及びハードディスクサスペンションが挙げられる。本実施形態の感光性樹脂組成物により形成されるパターン硬化膜を備えることで、信頼性に優れた半導体素子及び電子デバイスを提供することができる。

実施例

[0072] 以下、実施例により本開示を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0073] （合成例１）

冷却器、窒素導入管、熱伝対、攪拌機を備えた０．３Ｌのフラスコ容器に、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物（ＳＡＢＩＣ製、商品名「ＢＩＳＤＡ－１０００」）３０．７９質量部、Ｔ－ＳＯＬ　１００（商品名、ＥＮＥＯＳ株式会社製、芳香族系高沸点溶剤）１３１．２８質量部、及びソルミックスＡ－１１（商品名、日本アルコール販売株式会社製、アルコール系溶剤）３６．３３質量部を投入した。投入後、８０℃に昇温し、０．５時間保温し、ダイマージアミン（商品名「ＰＲＩＡＭＩＮＥ１０７５」、クローダジャパン株式会社製）２９．１５質量部を滴下した。滴下後、トリス（２－アミノエチル）アミン（東京化成工業株式会社製）１．４４質量部、ノルボルナンジアミン（三井化学ファイン株式会社製）４．５７質量部を順に滴下し、滴下後８０℃で０．５時間保温した。保温後、メタンスルホン酸水溶液（ＢＡＳＦジャパン株式会社製、商品名「Ｌｕｔｒｏｐｕｒ　ＭＳＡ」）３．５２質量部を加えた。その後、反応液中のアルコールを除去しながら１６０℃に昇温した。昇温後にトルエン（山一化学工業株式会社製）４０．００質量部を添加し、１６０℃で２時間脱水

閉環反応を行い、反応液中の水とアルコールを除去し、中間体のポリイミド樹脂を得た。続いて、得られたポリイミド樹脂を１３０℃に冷却し、無水マレイン酸（扶桑化学工業株式会社製）１１．６１質量部を加え、１６０℃に昇温し、１６０℃で４時間脱水閉環反応を行い、反応液中の水を除去し、マレイミド化合物を得た。

[0074] 得られたマレイミド化合物を分液ロートに入れ、純水５００質量部を投入し、分液ロートを振り混ぜ、静置させた。静置後、水層と有機層が分離した後、有機層のみを回収した。回収した有機層を冷却器、窒素導入管、熱伝対、攪拌機、真空ポンプを備えた０．３Ｌのガラス製容器に投入し、８８～９３℃に昇温し、水を除去した後、１００℃に昇温し、大気圧から０．１ＭＰａ減圧した状態で０．５時間溶剤を一部除去し、（Ａ）成分であるマレイミド化合物（Ａ－１）の溶液を得た。

[0075]（合成例２）

４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物を９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物（ＪＦＥケミカル株式会社製、商品名「ＢＰＡＦ」）に変更し、各成分の配合量を表１に示すように変更したこと以外は合成例１と同様にして、マレイミド化合物（Ａ－２）に溶液を得た。

[0076]（合成例３）

トリス（２－アミノエチル）アミンを１，３，５－トリス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン（セイカ株式会社製、商品名「ＴＡＰＯＢ」）に変更し、各成分の配合量を表１に示すように変更したこと以外は合成例１と同様にして、マレイミド化合物（Ａ－３）の溶液を得た。

[0077]（不揮発分）

マレイミド化合物の溶液を金属シャーレに精密天秤で０．７５ｇ±０．２５ｇ量り取った後、熱風乾燥機で１５０℃、０．５時間乾燥させ、次式より不揮発分（ＮＶ）を算出した。

ＮＶ（質量％）＝｛（Ｗ３－Ｗ１）／Ｗ２｝×１００

Ｗ１：空の金属シャーレの質量（ｇ）

Ｗ２：乾燥前のマレイミド化合物の溶液の質量（ｇ）

Ｗ３：乾燥後の金属シャーレ＋マレイミド化合物の質量（ｇ）

[0078]（重量平均分子量）

マレイミド化合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は、ＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）により測定した。テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）にマレイミド化合物を濃度３質量％となるように溶解させたサンプルを、３０℃に加温されたカラム（ＧＬ－Ｒ４２０×１本、ＧＬ－Ｒ４３０×１本、ＧＬ－Ｒ４４０×１本（いずれも株式会社日立ハイテクフィールディング製）に５０μＬ注入し、展開溶媒としてＴＨＦを用い、流速１．６ｍＬ／分の条件で測定を行った。なお、検出器には、Ｌ－３３５０　ＲＩ検出器（株式会社日立製作所製）を用い、溶出時間から標準ポリスチレン（東ソー株式会社製）を用いて作成した分子量／溶出時間曲線によりＭｗを換算した。

[0079] [表1]

		A－1	A－2	A－3
(a1)成分	BISDA－1000	30.79	-	29.8
	BPAF	-	26.27	-
(a2)成分	ダイマージアミン	29.15	28.20	28.21
	ノルボルナンジアミン	4.57	4.42	4.42
(a3)成分	トリス(2－アミノエチル)アミン	1.44	1.40	-
	TAPOB	-	-	3.82
(a4)成分	無水マレイン酸	11.61	11.24	11.24
酸触媒	メタンスルホン酸溶液	3.52	3.41	2.39
溶剤	T－SOL	131.28	120.56	125.89
	ソルミックスA－11	36.33	32.15	32.08
	トルエン	40.00	40.00	40.00
NV(質量%)		52.0	47.6	52.5
Mw		16600	13600	8300

[0080]　（Ｂ）成分として、以下の化合物を準備した。

Ａ－９３００：トリス－（２－アクリロイルオキシエチル）イソシアヌレート（新中村化学工業株式会社製、商品名）

ＴＡ－Ｇ：１，３，４，６－テトラアリルグリコールウリル（四国化成工業

株式会社製、商品名）

ＴＡＩＣ：トリアリルイソシアヌレート（株式会社新菱製、商品名）

[0081] （Ｃ）成分、（Ｄ）成分、カップリング剤、重合禁止剤、防錆剤、及び溶剤として、以下の化合物を準備した。

（Ｃ）成分：オキシムエステル系光重合開始剤（ＢＡＳＦジャパン株式会社製、商品名「Ｉｒｇａｃｕｒｅ　ＯＸＥ０１」及び「Ｉｒｇａｃｕｒｅ　ＯＸＥ０２」）

（Ｄ）成分：α，α’－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ジイソプロピルベンゼン（日油株式会社製、商品名「パーブチルＰ」）

カップリング剤：３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業株式会社社製、商品名「ＫＢＭ－５０３」）

重合禁止剤：４－ヒドロキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－１－オキシラジカル（ＴＥＭＰＯＬ）（東京化成工業株式会社製）

防錆剤：１，２，３－ベンゾトリアゾール（城北化学工業株式会社製、商品名「ＢＴ－１２０」）

溶剤：メシチレン（東洋合成株式会社製）

[0082] ［感光性樹脂組成物］

表２又は表３に示す配合量（質量部、固形分）の各成分と溶剤２１０質量部を混合し、２５℃で３０分間以上攪拌した後、目開き０．５μｍのフィルターでろ過して、実施例の感光性樹脂組成物を調製した。

[0083] （誘電特性）

感光性樹脂組成物を銅箔上にナイフコーターを用いて塗工した後、１５分風乾し、乾燥機で９０℃、１５分間乾燥して塗膜を形成した。塗膜に対して、高圧水銀灯で露光（露光量：１０００ｍＪ／ｃｍ^2）及びホットプレートで露光後ベーク（１００℃、１分間）を行い、１００μｍの厚みを有する樹脂膜を形成した。その後、樹脂膜を窒素雰囲気下、クリーンオーブンを用いて２００℃で２時間硬化させた。続いて、銅箔を過硫酸アンモニウムにて溶解除去して硬化膜を得た。

[0084] 硬化膜を長さ８０ｍｍ、幅８０ｍｍに切り出し、評価サンプルを作製した。評価サンプルについて、ＳＰＤＲ誘電体共振器（ＱＷＥＤ社製）及びアナライザ（Ａｇｉｌｅｎｔ　Ｔｅｃｈｎｏｌｏｇｉｅｓ製、商品名「ＰＮＡ　Ｎｅｔｗｏｒｋ　Ａｎａｌｙｚｅｒ　Ｎ５２２７Ａ」）を用い、室温で１０ＧＨｚの比誘電率（Ｄｋ）及び誘電正接（Ｄｆ）を測定した。

[0085]（機械特性）

硬化膜を長さ４０ｍｍ、幅２ｍｍに切り出し、評価サンプルを作製した。評価サンプルについて、熱機械分析装置（ティー・エイ・インスツルメント・ジャパン株式会社製、商品名「Ｑ－４００」）を用い、窒素雰囲気下、引張りモード、荷重５ｍＮ、測定温度範囲－５０～２２０℃、昇温速度１０℃／分、チャック間距離１０ｍｍの条件で測定し、０～４０℃の変位量から線膨張係数（ＣＴＥ）を算出した。

[0086]（５％重量減少温度）

硬化膜をオープン型試料容器（株式会社日立ハイテクサイエンス製、商品名「ＧＣＡ－００５５」）に６．０～１０．０ｍｇ計りとり、窒素流量３００ｍＬ／分、開始温度４０℃、昇温速度１０℃／分の条件で、５％重量減少温度（T_{d5}）を測定した。測定装置は、ＮＥＸＴＡ　ＳＴＡ２００ＲＶ（株式会社日立ハイテクサイエンス製）を使用した。

[0087]（微細加工性）

シリコンウェハ上に、感光性樹脂組成物をスピンコートして、ホットプレートを用いて９０℃で５分加熱乾燥して、厚さ７μｍの樹脂膜を形成した。次いで、ｉ線ステッパ露光機（株式会社サーマプレシジョン製、商品名「Ｓｃ６ｋ」）を用いて露光量３００ｍＪ／ｃｍ^{2}の条件で樹脂膜をパターン露光した後、ホットプレートを用いて１００℃で１分の条件で加熱した。その後、現像液（シクロペンタノン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の混合液）を用いて２５℃で３０秒間（１５秒２回）の条件で現像し、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートで洗浄した。現像後の樹脂膜のシリコンウェハからの剥離、樹脂膜のひび割れ、パターン端

部の荒れの有無、及び樹脂膜を現像したパターン底部の残渣の有無を金属顕微鏡で確認した。これらの不具合が確認できなかった最小のビア径が２０μｍ以下の場合を「Ａ」とし、最小のビア径が２０μｍ超の場合を「Ｂ」として評価した。

[0088] [表2]

実施例		1	2	3	4	5
(A)成分	A-1	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0
(B)成分	A-9300	15.0	10.0	7.5	5.0	-
	TA-G	-	5.0	7.5	10.0	15.0
(C)成分	OXE01	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
(D)成分		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
カップリング剤		1.7	1.7	1.7	1.7	1.7
重合禁止剤		0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
防錆剤		1.7	1.7	1.7	1.7	1.7
Dk		2.65	2.66	2.67	2.65	2.69
Df		0.0037	0.0034	0.0033	0.0031	0.0028
Td5(℃)		409	410	410	415	420
CTE(ppm／℃)		88	95	96	101	100
ビア径評価		A	A	A	A	A

[0089] [表3]

実施例		6	7	8	9	10	11
(A)成分	A-2	85.0	85.0	85.0	85.0	85.0	-
	A-3	-	-	-	-	-	85.0
(B)成分	A-9300	15.0	10.0	7.5	5.0	-	5.0
	TA-G	-	5.0	7.5	10.0	15.0	-
	TAIC	-	-	-	-	-	10.0
(C)成分	OXE01	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
	OXE02	-	-	-	-	-	2.0
(D)成分		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	-
カップリング剤		1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7
重合禁止剤		0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
防錆剤		1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7
Dk		2.67	2.70	2.69	2.71	2.69	2.65
Df		0.0041	0.0038	0.0037	0.0034	0.0031	0.0022
Td5(℃)		412	412	415	415	421	422
CTE(ppm／℃)		97	99	101	99	99	96
ビア径評価		A	A	A	A	A	A

請求の範囲

[請求項1] マレイミド化合物と、架橋剤と、光重合開始剤と、を含有し、

前記マレイミド化合物が、テトラカルボン酸二無水物（ａ１）、ジアミン（ａ２）、トリアミン（ａ３）、及び無水マレイン酸（ａ４）の反応物であり、

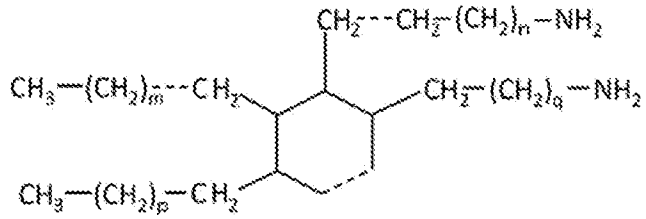
前記ジアミン（ａ２）が、ダイマージアミンを含む、感光性樹脂組成物。

[請求項2] 前記ジアミン（ａ２）が、前記ダイマージアミン以外の第２のジアミンを含む、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

[請求項3] 前記第２のジアミンが、脂環式ジアミン又は芳香族ジアミンである、請求項２に記載の感光性樹脂組成物。

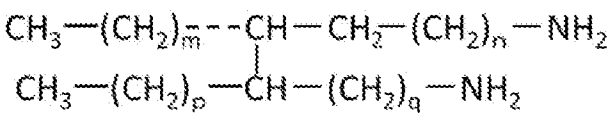
[請求項4] 前記ダイマージアミンが、下記一般式（１）で表される化合物及び下記一般式（２）で表される化合物のうちの少なくとも一種を含有する、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

[化1]



(1)

[化2]



(2)

［式（１）及び（２）中、ｍ、ｎ、ｐ及びｑはそれぞれ、ｍ＋ｎ＝６～１７、ｐ＋ｑ＝８～１９となるように選ばれる１以上の整数を表し、破線で示した結合は、炭素－炭素単結合又は炭素－炭素二重結合を意味する。但し、破線で示した結合が炭素－炭素二重結合である場合、式（１）及び（２）は、炭素－炭素二重結合を構成する各炭素原子

に結合する水素原子の数を、式（１）及び（２）に示した数から１つ減じた構造となる。］

［請求項5］　前記テトラカルボン酸二無水物（ａ１）が、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、９，９－ビス（３，４－ジカルボキシフェニル）フルオレン二無水物、３，３’，４，４’－ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、４，４’－（４，４’－イソプロピリデンジフェノキシ）ジフタル酸無水物、４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタル酸無水物、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロフリル）－３－メチル－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物、ジシクロヘキシル－３，４，３’，４’－テトラカルボン酸二無水物、ビシクロ［２．２．２］オクタン－２，３，５，６－テトラカルボン酸２，３：５，６－二無水物、５，５’－ビス－２－ノルボルネン－５，５’，６，６’－テトラカルボン酸－５，５’，６，６’－二無水物、及び３，４’－ビフタル酸無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含有する、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

［請求項6］　前記トリアミン（ａ３）の含有量が、前記ジアミン（ａ２）及び前記トリアミン（ａ３）の総量を基準として５～３５モル％である、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

［請求項7］　前記マレイミド化合物の重量平均分子量が、３０００～４００００である、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

［請求項8］　前記マレイミド化合物が、フルオレン骨格を有する、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

［請求項9］　前記架橋剤が、（メタ）アクリロイル基を有する重合性架橋剤を含む、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

［請求項10］　前記架橋剤が、アリル基又はビニル基を有する重合性架橋剤を含む、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

[請求項11] 熱重合開始剤を更に含有する、請求項１に記載の感光性樹脂組成物。

[請求項12] 請求項１～１１のいずれか一項に記載の感光性樹脂組成物の硬化物。

[請求項13] 請求項１～１１のいずれか一項に記載の感光性樹脂組成物の硬化物を含む再配線層を有する、半導体素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/001290

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G03F 7/027(2006.01)i; ***C08F 290/06***(2006.01)i; ***C08G 73/12***(2006.01)i
FI: G03F7/027 514; C08G73/12; C08F290/06

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)

G03F7/027; C08F290/06; C08G73/12

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	JP 2022-115907 A (NIPPON KAYAKU KABUSHIKI KAISHA) 09 August 2022 (2022-08-09) paragraphs [0031]-[0080], [0095]-[0121]	1, 5-7, 9, 10, 12, 13
A		2-4, 8, 11
X	JP 2013-83958 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) 09 May 2013 (2013-05-09) paragraphs [0028]-[0050], [0073]-[0074], [0086]-[0109], [0112]-[0113]	1, 6, 7, 9, 10, 12, 13
A		2-5, 8, 11
A	WO 2022/264985 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 22 December 2022 (2022-12-22) paragraphs [0051]-[0092], [0211]-[0259], [0297]-[0306], [0337]-[0373]	1-13
A	WO 2021/154898 A2 (DESIGNER MOLECULES, INC.) 05 August 2021 (2021-08-05) paragraphs [0115]-[0137]	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
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
08 February 2024	**27 February 2024**

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/001290

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2022-115907 A	09 August 2022	US 2022/0179310 A1 paragraphs [0023]-[0061], [0076]-[0112] CN 113677741 A KR 10-2021-0134696 A WO 2020/203834 A1	
JP 2013-83958 A	09 May 2013	(Family: none)	
WO 2022/264985 A1	22 December 2022	KR 10-2023-0128387 A	
WO 2021/154898 A2	05 August 2021	EP 4097756 A2 CN 115362535 A KR 10-2023-0129149 A JP 2023-518144 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/001290

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

G03F 7/027(2006.01)i; C08F 290/06(2006.01)i; C08G 73/12(2006.01)i
FI: G03F7/027 514; C08G73/12; C08F290/06

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））

G03F7/027; C08F290/06; C08G73/12

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）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2022-115907 A (日本化薬株式会社) 09.08.2022 (2022-08-09) [0031]-[0080],[0095]-[0121]	1,5-7,9,10,12,13
A		2-4,8,11
X	JP 2013-83958 A (新日鉄住金化学株式会社) 09.05.2013 (2013-05-09) [0028]-[0050],[0073]-[0074],[0086]-[0109],[0112]-[0113]	1,6,7,9,10,12,13
A		2-5,8,11
A	WO 2022/264985 A1 (三菱瓦斯化学株式会社) 22.12.2022 (2022-12-22) [0051]-[0092],[0211]-[0259],[0297]-[0306],[0337]-[0373]	1-13
A	WO 2021/154898 A2 (DESIGNER MOLECULES,INC) 05.08.2021 (2021-08-05) [0115]-[0137]	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、一般的技術水準を示すもの
"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	国際調査報告の発送日
08.02.2024	27.02.2024

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）

中澤　俊彦 2C 9221

電話番号 03-3581-1101 内線 3221

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/JP2024/001290

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2022-115907 A	09.08.2022	US 2022/0179310 A1 [0023]-[0061],[0076]-[0112] CN 113677741 A KR 10-2021-0134696 A WO 2020/203834 A1	
JP 2013-83958 A	09.05.2013	（ファミリーなし）	
WO 2022/264985 A1	22.12.2022	KR 10-2023-0128387 A	
WO 2021/154898 A2	05.08.2021	EP 4097756 A2 CN 115362535 A KR 10-2023-0129149 A JP 2023-518144 A	