

(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
2020年6月4日(04.06.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/111178 A1

(51) 国際特許分類:

C07C 233/18 (2006.01) G03F 7/027 (2006.01)
C08F 20/34 (2006.01) G03F 7/037 (2006.01)
C08F 290/14 (2006.01) G03F 7/20 (2006.01)
C08G 73/10 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/046558

(22) 国際出願日: 2019年11月28日(28.11.2019)

(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 2018-223424 2018年11月29日(29.11.2018) JP
特願 2019-112666 2019年6月18日(18.06.2019) JP

(71) 出願人: 日産化学株式会社(NISSAN CHEMICAL CORPORATION) [JP/JP]; 〒1036119 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 平 佐 田 一 樹 (HIRASADA Kazuki); 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町4 8 8 番地6 日産化学株式会社 材料科学研究所内 Chiba (JP). 服部 隼人(HATTORI Hayato); 〒9392792 富山県富山市婦中町笹倉6 3 5 日産化学株式会社 材料科学研究所内 Toyama (JP). 遠藤 雅久(ENDO Masahisa); 〒9392792 富山県

富山市婦中町笹倉6 3 5 日産化学株式会社 材料科学研究所内 Toyama (JP).

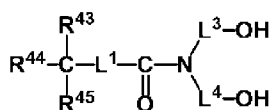
(74) 代理人: 特許業務法人英明国際特許事務所(PATENT PROFESSIONAL CORPORATION EI-MEI PATENT OFFICE); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目1 6 番 1 2 号 銀座大塚ビル2階 Tokyo (JP).

(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, 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, 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,

(54) Title: ALCOHOL COMPOUND

(54) 発明の名称: アルコール化合物



[A]

(57) Abstract: An alcohol compound represented by formula [A] is provided. (In formula [A], R⁴³ and R⁴⁴ each independently represent an alkyl group having 1-27 carbon atoms and R⁴⁵ represents a hydrogen atom or an alkyl group having 1-25 carbon atoms, provided that the -CR⁴³R⁴⁴R⁴⁵ group has 10-31 carbon atoms in total; L¹ represents a single bond or *-CH₂O- (where * indicates the end combining with the -CR⁴³R⁴⁴R⁴⁵ group); and L³ and L⁴ each independently represent an alkylene group having 2-8 carbon atoms and optionally containing an ether bond.)

(57) 要約: 式 [A] で表されるアルコール化合物を提供する。(式 [A] 中、R⁴³ 及び R⁴⁴ は、それぞれ独立して、炭素原子数 1 ~ 27 のアルキル基を表し、R⁴⁵ は、水素原子又は炭素原子数 1 ~ 25 のアルキル基を表し、ただし、-CR⁴³R⁴⁴R⁴⁵ 基の炭素原子数の合計は 10 ~ 31 であり、L¹ は、単結合又は *-CH₂O- を表し (ここで * は、-CR⁴³R⁴⁴R⁴⁵ 基に結合する端を示す。)、L³ 及び L⁴ は、それぞれ独立して、エーテル結合を含んでもよい炭素原子数 2 ~ 8 のアルキレン基を表す。)

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).

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： アルコール化合物

技術分野

[0001] 本発明は、分岐鎖アルキル基を含有するアルコール化合物に関する。

背景技術

[0002] 従来、電子部品の絶縁材料、及び半導体装置のパッシベーション膜、表面保護膜、層間絶縁膜等には、優れた耐熱性、電気特性及び機械特性を併せ持つポリイミド樹脂が用いられている。このポリイミド樹脂の中でも、感光性ポリイミド前駆体の形態で供されるものは、該前駆体の塗布、露光、現像、及びキュアによる熱イミド化処理によって、耐熱性のレリーフパターン被膜を容易に形成することができる。このような感光性ポリイミド前駆体は、従来の非感光型ポリイミド樹脂と比較して、大幅な工程短縮を可能にするという特徴を有している。

[0003] 一方、半導体装置の微細化が進むことで、配線遅延の問題が顕在化している。半導体装置の配線抵抗を改善する手段として、これまで使用されてきた金又はアルミニウム配線から、より抵抗の低い銅又は銅合金の配線への変更が行われている。さらに、配線間の絶縁性を高めることで配線遅延を防ぐ方法も採用されている。近年、この絶縁性の高い材料として低誘電率材料が半導体装置を構成することが多いが、一方で低誘電率材料は脆く、壊れ易い傾向にあり、例えば半田リフロー工程を経て半導体チップとともに基板上に実装されたときには、温度変化による収縮で低誘電率材料部分が破壊されるという問題が存在している。

[0004] この問題を解決する手段として、特許文献1には、ポリイミド前駆体における側鎖の一部にエチレングリコール構造を有する炭素数5～30の脂肪族基を導入することにより、ポリイミド前駆体を含む感光性樹脂組成物を形成したときの透明性が向上し、さらに熱硬化後に硬化膜のヤング率が向上する感光性樹脂組成物が開示されている。

[0005] しかし、特許文献 1 に記載のポリイミド前駆体からなる感光性樹脂組成物は、透明性が高く、かつ熱硬化後にはヤング率の高い硬化体を与えるものの、上記の用途に使用される場合、誘電率や誘電正接のさらなる低減化が求められていた。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：再表 2 0 1 3 - 1 6 8 6 7 5 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、前記事情に鑑みなされたものであり、誘電率や誘電正接のさらなる低減化された硬化体を与える感光性樹脂組成物に使用できる（メタ）アクリル化合物の原料となるアルコール化合物を提供することを課題とする。

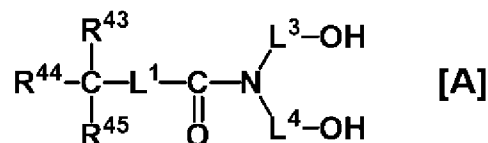
課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、前記の課題を達成すべく鋭意検討を重ねた結果、特定の分岐鎖アルキル基を含有する新規なアルコール化合物が、感光性樹脂組成物に用いる（メタ）アクリル化合物の原料として有用であり、当該アルコール化合物から合成された（メタ）アクリル化合物を配合した感光性樹脂組成物が、電気特性に優れる硬化膜を与えるものであることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0009] 即ち、本発明は、下記のアルコール化合物を提供する。

1. 式 [A] で表されるアルコール化合物。

[化1]



（式 [A] 中、 R^{43} 及び R^{44} は、それぞれ独立して、炭素原子数 1 ～ 27 のアルキル基を表し、 R^{45} は、水素原子又は炭素原子数 1 ～ 25 のアルキル基を表

し、ただし、 $-CR^{43}R^{44}R^{45}$ 基の炭素原子数の合計は10～31であり、 L^1 は、単結合又は $*-CH_2O-$ を表し（ここで*は $-CR^{43}R^{44}R^{45}$ 基に結合する端を示す。）、 L^3 及び L^4 は、それぞれ独立して、エーテル結合を含んでもよい炭素原子数2～8のアルキレン基を表す。）

2. 前記 L^3 及び L^4 が、それぞれ独立して、エチレン基、3-オキシペンタン-1, 5-ジイル基、3, 6-ジオキシオクタン-1, 8-ジイル基、及び3, 6, 9-トリオキシウンデカン-1, 11-ジイル基からなる群から選ばれるいずれかの基である1のアルコール化合物。

3. 前記 L^3 及び L^4 が、エチレン基である2のアルコール化合物。

4. 前記 L^1 が、単結合を表し、前記 $-CR^{43}R^{44}R^{45}$ 基が、ペンタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-9-イル基、3, 13-ジメチルペンタデカン-7-イル基、2, 2, 4, 8, 10, 10-ヘキサメチルウンデカン-5-イル基、2, 3, 13, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、2, 6, 10, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、及びペンタコサン-12-イル基からなる群から選ばれるいずれかの基である1～3のいずれかのアルコール化合物。

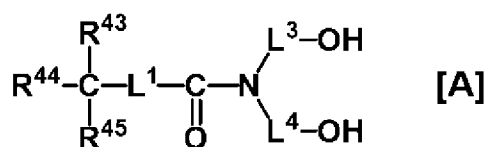
発明の効果

[0010] 本発明によれば、特にネガ型感光性樹脂組成物に用いる（メタ）アクリル化合物の原料として有用である新規なアルコール化合物を提供することができる。当該アルコール化合物から合成された（メタ）アクリル化合物を配合した感光性樹脂組成物は、電気特性に優れた硬化膜を与えるものである。

発明を実施するための形態

[0011] 本発明の分岐鎖アルキル基を含有するアルコール化合物は、下記式[A]で表される構造を有する。

[0012] [化2]



[0013] 式中、 R^{43} 及び R^{44} は、それぞれ独立して、炭素原子数1～27のアルキル基を表し、 R^{45} は、水素原子又は炭素原子数1～25のアルキル基を表し、ただし、 $-CR^{43}R^{44}R^{45}$ 基の炭素原子数の合計は10～31であり、 L^1 は、単結合又は $*-CH_2O-$ を表し（ここで $*$ は、 $-CR^{43}R^{44}R^{45}$ 基に結合する端を示す。）、 L^3 及び L^4 は、それぞれ独立して、エーテル結合を含んでいてもよい炭素原子数2～8のアルキレン基を表す。

[0014] 炭素原子数1～27のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基（アミル基）、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、*tert*-ペンチル基、*sec*-イソアミル基、イソヘキシル基、ネオヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、4,5-ジメチルヘキシル基、1-エチルヘキシル基、2-エチルヘキシル基、3-エチルヘキシル基、4-エチルヘキシル基、2-エチルペンチル基、ヘプタン-3-イル基、ヘプタン-4-イル基、4-メチルヘキサ-2-イル基、3-メチルヘキサ-3-イル基、2,3-ジメチルペンタン-2-イル基、2,4-ジメチルペンタン-2-イル基、4,4-ジメチルペンタン-2-イル基、6-メチルヘプチル基、2-エチルヘキシル基、オクタン-2-イル基、6-メチルヘプタン-2-イル基、6-メチルオクチル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、ノナン-4-イル基、2,6-ジメチルヘプタン-3-イル基、3,6-ジメチルヘプタン-3-イル基、3-エチルヘプタン-3-イル基、3,7-ジメチルオクチル基、6,7-ジメチルオクチル基、8-メチルノニル基、3-メチルノナン-3-イル基、4-エチルオクタン-4-イル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-*tert*-ブチルシクロヘキシル基、1,6-ジメチルシクロヘキシル基、メンチル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、ビスクロ〔2,2,1

] ヘプタン-2-イル基、ボルニル基、イソボルニル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、トリシクロ[5.2.1.0^{2,6}]デカン-4-イル基、及びトリシクロ[5.2.1.0^{2,6}]デカン-8-イル基等の脂環式アルキル基が挙げられる。

[0015] 炭素原子数2～8のアルキレン基としては、例えば、置換又は無置換のエチレン基、プロピレン基、ブチレン基等が挙げられる。また、エーテル結合を含む炭素原子数2～8のアルキレン基としては、例えば、 $-\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}_2\text{H}_4-\text{O}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{O}-\text{C}_2\text{H}_4-$ 、3-オキシペンタン-1,5-ジイル基、3,6-ジオキシオクタン-1,8-ジイル基、及び3,6,9-トリオキシウンデカン-1,11-ジイル基等が挙げられる。

[0016] L^1 としては、単結合が好ましい。

[0017] L^3 及び L^4 としては、それぞれ独立して、エチレン基、3-オキシペンタン-1,5-ジイル基、3,6-ジオキシオクタン-1,8-ジイル基、及び3,6,9-トリオキシウンデカン-1,11-ジイル基からなる群から選ばれるいずれかの基であることが好ましい。また、 L^3 及び L^4 は、同一の基であることが好ましく、本発明では、 L^3 及び L^4 のいずれもがエチレン基であることが最も好ましい。

[0018] R^{43} 及び R^{44} としては、炭素原子数1～20のアルキル基が好ましく、炭素原子数1～15のアルキル基がより好ましい。また、 R^{43} 及び R^{44} は、直鎖状アルキル基又は分岐鎖状アルキル基であることが好ましい。

[0019] R^{45} としては、水素原子又は炭素原子数1～15のアルキル基が好ましく、水素原子又は炭素原子数1～10のアルキル基がより好ましく、水素原子がより一層好ましい。

[0020] 前記 R^{43} 、 R^{44} 及び R^{45} を有する基： $-\text{CR}^{43}\text{R}^{44}\text{R}^{45}$ 基は、その炭素原子数の合計が10～31であり、好ましくは炭素原子数14～26の基であり、特に好ましくは炭素原子数14～20の基である。

[0021] 前記 $-\text{CR}^{43}\text{R}^{44}\text{R}^{45}$ 基の具体例としては、3-メチルノナン-3-イル基、4-エチルオクタン-4-イル基、ウンデカン-5-イル基、3-エチルノ

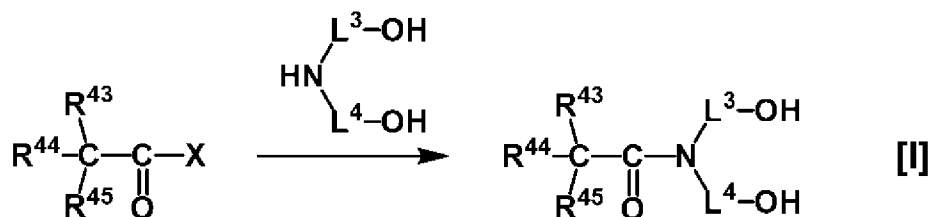
ナン-3-イル基、5-エチルノナン-5-イル基、2, 2, 4, 5, 5-ペンタメチルヘキサン-4-イル基、トリデカン-6-イル基、トリデカン-7-イル基、7-エチルウンデカン-2-イル基、3-エチルウンデカン-3-イル基、5-エチルウンデカン-5-イル基、ペンタデカン-7-イル基、ペンタデカン-8-イル基、ヘプタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-8-イル基、ヘプタデカン-9-イル基、3, 13-ジメチルペンタデカン-7-イル基、2, 2, 4, 8, 10, 10-ヘキサメチルウンデカン-5-イル基、ノナデカン-9-イル基、ノナデカン-10-イル基、2, 3, 13, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、2, 6, 10, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、ヘンイコサン-10-イル基、トリコサン-11-イル基、ペンタコサン-12-イル基、ペンタコサン-13-イル基、2, 22-ジメチルトリコサン-11-イル基、3, 21-ジメチルトリコサン-11-イル基、9, 15-ジメチルトリコサン-11-イル基、ヘプタコサン-13-イル基、及びノナコサン-14-イル基等が挙げられる。

[0022] 好ましい $-C R^{43} R^{44} R^{45}$ 基としては、ペンタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-9-イル基、3, 13-ジメチルペンタデカン-7-イル基、2, 2, 4, 8, 10, 10-ヘキサメチルウンデカン-5-イル基、2, 3, 13, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、2, 6, 10, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、及びペンタコサン-12-イル基等が挙げられる。

[0023] 式[A]で表されるアルコール化合物は、その製造方法は特に制限されないが、例えば、カルボン酸類又はアルコール、及びアミノアルコール類を出発原料として、従来公知の合成方法によって製造可能である。

[0024] 式[A]において L^1 が単結合である場合、そのアルコール化合物は、例えば、 $R^{43} R^{44} R^{45} C-COOH$ で表されるカルボン酸又はその活性化体（酸ハロゲン化物、酸無水物、酸アジド及び活性エステルなど）と、ジアルカノールアミンとを反応させて得ることができる。

[0025] [化3]

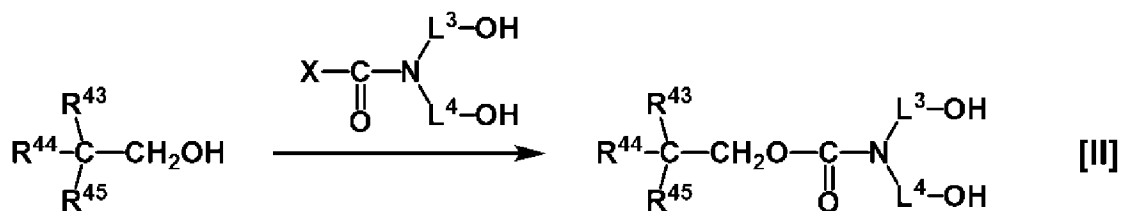


[0026] 式 [I] において、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 L^3 及び L^4 は、前記と同じ意味を表す。また、 X としては、アミド結合を生成できる基であれば特に制限されないが、ヒドロキシ基；メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基；塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；アセトキシ基等のアシルオキシ基；アジド基；2，5－ジオキソピロリジン－1－イルオキシ基などが挙げられる。

[0027] $\text{R}^{43}\text{R}^{44}\text{R}^{45}\text{C}-\text{COOH}$ で表されるカルボン酸又はその活性化体としては、市販のカルボン酸又はその活性化体を使用できる。例えば、日産化学（株）製 ファインオキソコール（登録商標）イソパルミチン酸、同イソパルミチン酸K S、同イソステアリン酸、同イソステアリン酸N、同イソステアリン酸T、同イソアラキン酸、及び同イソアラキン酸E C等の多分岐型高級カルボン酸、又は該カルボン酸の誘導体が挙げられる。

[0028] また、式 [A] において L^1 が $^*\text{-CH}_2\text{O-}$ である場合、そのアルコール化合物は、例えば、 $\text{R}^{43}\text{R}^{44}\text{R}^{45}\text{C}-\text{CH}_2\text{OH}$ で表されるアルコールと、ヒドロキシ基を有するカルバミン酸又はその活性化体（酸ハロゲン化物、酸無水物、酸アジド及び活性エステルなど）とを反応させて得ることができる。

[0029] [化4]



[0030] 式 [II] において、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 L^3 、 L^4 及び X は、前記と同じ意味を表す。

[0031] $\text{R}^{43}\text{R}^{44}\text{R}^{45}\text{C}-\text{CH}_2\text{OH}$ で表されるアルコールとしては、脂肪族アルコー

ルを二量化して分岐アルコールとする従来公知の方法（例えば、国際公開第2016/194800号及び特開2009-167183号公報等に記載されている方法）で製造できる。また、市販のアルコールを使用することもでき、そのような市販品としては、例えば、日産化学（株）製 ファインオキシコール（登録商標）1600、同1600K、同180、同180N、同180T、及び同2000等の多分岐型高級アルコールが挙げられる。

[0032] 本発明の分岐鎖アルキル基を含有するアルコール化合物は、（メタ）アクリレート原料としての用途以外にも、ポリエステル原料、ポリウレタン原料、ポリカーボネート原料、ジカルボン酸原料、ジエステル原料、界面活性剤、洗浄剤、化粧品添加剤、乳化剤、消泡剤、増粘剤、皮膚外用組成物、潤滑油添加剤、インキ、トナー及び防腐殺菌剤等として好適に使用できる。

実施例

[0033] 本明細書の下記参考合成例に示す重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（以下、本明細書ではGPCと略称する。）による測定結果である。測定には東ソー（株）製GPC装置（HLC-8320GPC）を用いた。測定条件等は、次のとおりである。

GPCカラム：Shodex（登録商標）GPC KD-803，同KD-805（昭和電工（株）製）

カラム温度：50℃

溶媒：N，N-ジメチルホルムアミド（関東化学（株）製，特級），臭化リチウム水和物（関東化学（株）製，鹿特級）（30mM）／リン酸（Aldrich社製）（30mM）／テトラヒドロフラン（関東化学（株）製，特級）（1％）

流量：1.0mL／分

標準試料：ポリスチレン（ジーエルサイエンス（株）製）

[0034] [実施例1]

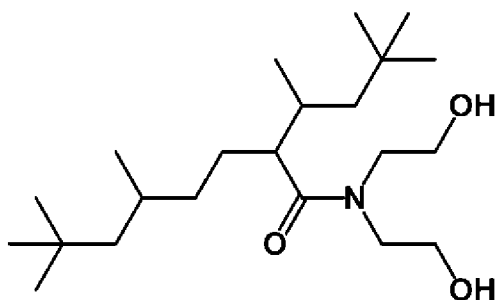
2-（4，4-ジメチルペンタン-2-イル）-5，7，7-トリメチルオクタン酸〔日産化学（株）製 ファインオキシコール（登録商標）イソス

テアリン酸] 200 g (702 mmol)、N, N-ジメチルホルムアミド 1.5 g (20 mmol)、及びジクロロメタン 800 g を混合し、0℃に冷却した。この溶液へ、塩化チオニル〔純正化学(株)製〕100 g (844 mmol) を5℃以下で滴下した後、室温(およそ23℃)で16時間攪拌した。この反応混合物から揮発分をエバポレーターで留去し、残渣にジクロロメタン 800 g を加えることで、カルボン酸クロリド溶液を得た。

ジエタノールアミン〔東京化成工業(株)製〕294 g (2.8 mol)、及びジクロロメタン 1,200 g を混合し、0℃に冷却した。この溶液へ、上述のカルボン酸クロリド溶液全量を5℃以下で滴下した後、室温(およそ23℃)で15時間攪拌した。この反応混合物を静置し、分離したジエタノールアミン(上層)を分液し除去した。残った有機層を水 1 L で3回洗浄し、溶媒を留去することで、下記式で表されるイソステアリン酸ジエタノールアミン 234 g (得率90%、純度98%)を得た。

^1H NMR (500 MHz, CDCl_3): $\delta = 3.9 \sim 3.5$ (m, 10H), $2.4 \sim 2.3$ (m, 1H), $1.7 \sim 0.9$ (m, 34H) (ppm)

[0035] [化5]



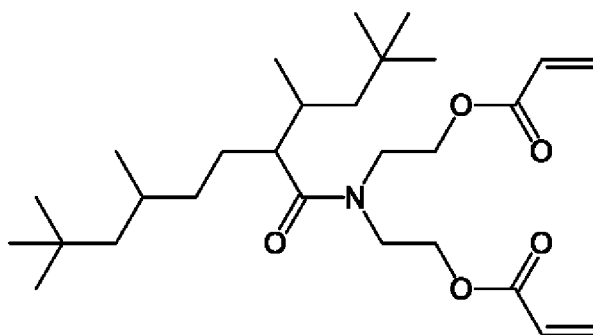
[0036] <参考合成例1>

実施例1で合成したイソステアリン酸ジエタノールアミン(100 g、269 mmol)、ヒドロキノン(500 mg、5 mmol)、トリエチルアミン(60 g、592 mmol)、ジクロロメタン(400 g)を混合し、0℃に冷却した後にアクリル酸クロライド(51 g、565 mmol)を10℃以下で滴下した。室温で1時間反応した後、5%食塩水(400 g)を

加えて分液した。有機層を1 N塩酸水（400 g）で分液洗浄した後、5 %炭酸水素ナトリウム水溶液（400 g）で分液洗浄した。得られた有機層へ硫酸マグネシウムを加えて脱水した後、無機塩を濾別した。ろ液をエバポレーターで濃縮することで、下記式で表される（（2-（4，4-ジメチルペンタン-2-イル）-5，7，7-トリメチルオクタノイル）アザンジイル）ビス（エタン-2，1-ジイル）ジアクリレート（110 g、純度98 %）を得た。

$^1\text{H-NMR}$ （500 MHz， CDCl_3 ）： δ =0.9~1.7（m，34 H），2.3~2.4（m，1 H），3.6~3.8（m，4 H），4.3~4.4（m，4 H），5.8~5.9（m，2 H），6.1~6.2（m，2 H），6.4~6.5（m，2 H）

[0037] [化6]

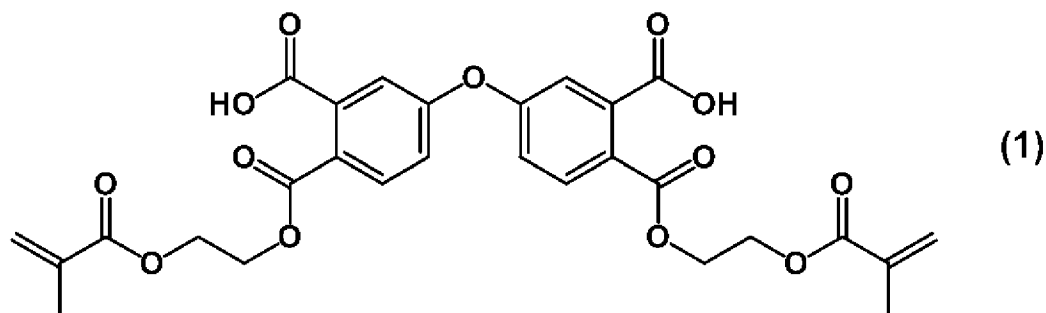


[0038] <参考製造例1> ジカルボン酸ジエステル（1）の合成

4，4'-オキシジフタル酸二無水物（東京化成工業（株）製）280.00 g（0.903 mol）を2リットル容量の四口フラスコに入れ、2-ヒドロキシエチルメタクリレート（Aldrich社製）232.50 g（0.181 mol）とヒドロキノン（東京化成工業（株）製）0.98 g（0.009 mol）とγ-ブチロラクトン（関東化学（株）製，鹿特級）840 gを入れて23℃で攪拌し、ピリジン（関東化学（株）製，脱水）142.78 g（1.805 mol）を加えた後に50℃まで昇温し、50℃で2時間攪拌することで、下記式（1）で表される化合物を含む溶液を得た。

[0039]

[化7]



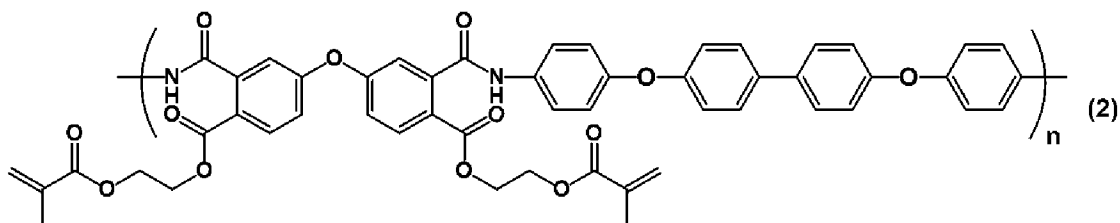
[0040] <参考製造例2> ポリイミド前駆体としてのポリマー（2）の合成

参考製造例1で調製した溶液43.68g（0.026mol）とγ-ブチロラクトン34.57gを200ミリリットル容量の四口フラスコに入れ、5℃以下において、N,N'-ジイソプロピルカルボジイミド（DIC，東京化成工業（株）製）6.43g（0.053mol）をγ-ブチロラクトン15gに溶解した溶液を攪拌しながら20分かけて反応液に滴下し、続いて4,4'-ビス（4-アミノフェノキシ）ビフェニル（セイカ（株）製）8.74g（0.03mol）をN-メチル-2-ピロリジノン（関東化学（株）製，鹿特級）15gに溶解したものを攪拌しながら20分かけて滴下した。その後、23℃に昇温し、26.5時間攪拌した後、エタノール（関東化学（株）製，特級）2.25gを加えて1時間攪拌した。

[0041] 得られた反応混合物を375gのメタノール（関東化学（株）製，特級）に加えて粗ポリマーからなる沈殿物を生成した。上澄み液をデカンテーションして粗ポリマーを分離し、テトラヒドロフラン60.0g、N-メチル-2-ピロリジノン15.0gに溶解して粗ポリマー溶液を得た。得られた粗ポリマー溶液を750gの水に滴下してポリマーを沈殿させ、得られた沈殿物を濾別した後、メタノール75gで二回洗浄し、真空乾燥して繊維状のポリマー（2）を得た。ポリマー（2）の分子量をGPC（標準ポリスチレン換算）で測定したところ、重量平均分子量（Mw）は12,059であった。収率は74.7%であった。この反応生成物は、下記式（2）で表される繰り返し単位構造を有する。

[0042]

[化8]



[0043] <参考製造例3> (ポリイミド前駆体としてのポリマー (3) の合成)

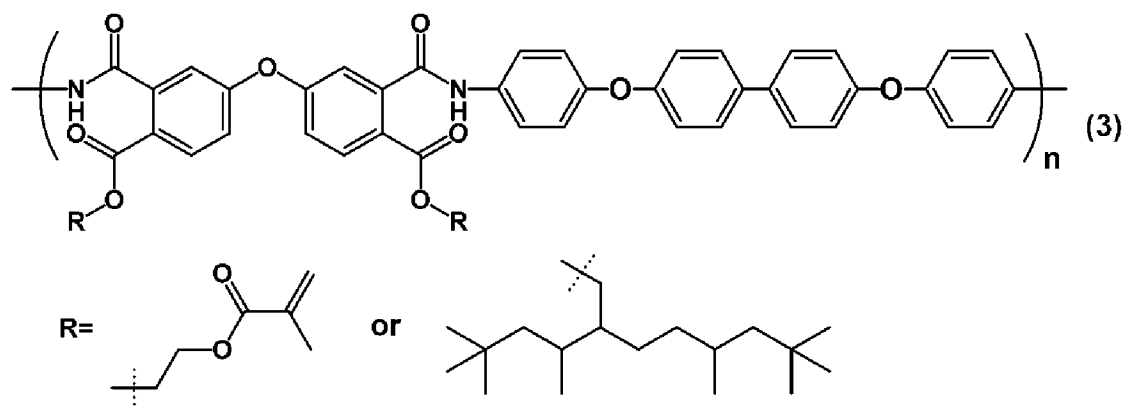
4, 4'-オキシジフタル酸二無水物 (東京化成工業 (株) 製) 40.00 g (0.129 mol) を1リットル容量の四口フラスコに入れ、2-ヒドロキシエチルメタクリレート (Aldrich社製) 26.43 g (0.206 mol) とファインオキシコール (登録商標) 180 (日産化学 (株) 製) 13.67 g (0.052 mol) とγ-ブチロラクトン (関東化学 (株) 製, 鹿特級) 116 g を入れて10℃以下に冷却して攪拌し、ピリジン (関東化学 (株) 製, 脱水) 20.89 g (0.264 mol) を加えた後に23℃まで昇温し、24時間攪拌した。

[0044] 次に、5℃以下において、N, N'-ジイソプロピルカルボジイミド (東京化成工業 (株) 製) 32.88 g (0.258 mol) をγ-ブチロラクトン80 g に溶解した溶液を攪拌しながら50分かけて反応液に滴下し、4, 4'-ビス (4-アミノフェノキシ) ビフェニル (セイカ (株) 製) 44.46 g (0.122 mol) をN-メチル-2-ピロリジノン (関東化学 (株) 製, 鹿特級) 120 g に溶解した溶液を80分かけて滴下した。滴下後、23℃に昇温して2時間攪拌した後、エタノール (関東化学 (株) 製, 特級) 6.0 g を加えて1時間攪拌した。反応液に生じた沈殿物をろ過により取り除き、反応混合物を得た。

[0045] 得られた反応混合物を600 g のエタノール (関東化学 (株) 製, 特級) に加えて粗ポリマーからなる沈殿物を生成した。沈殿物をろ過し、テトラヒドロフラン (THF, 関東化学 (株) 製, 特級) 340 g に溶解して粗ポリマー溶液を得た。得られた粗ポリマー溶液を7.2 kg の水に滴下してポリマーを沈殿させ、得られた沈殿物を濾別した後、真空乾燥してポリマーを得

た。このポリマーの分子量をGPC（標準ポリスチレン換算）で測定したところ、重量平均分子量（M_w）は15,457であった。収率は63.3%であった。このポリマーは、下記式（3）で表される繰り返し単位構造を有する。

[0046] [化9]

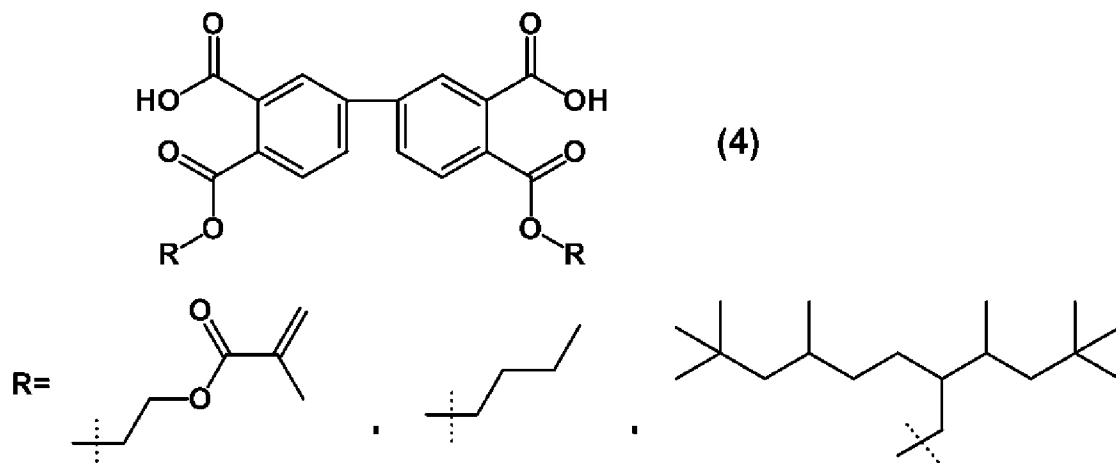


[0047] <参考製造例4> ジカルボン酸ジエステル（4）の合成

4,4'-ビフタル酸二無水物（東京化成工業（株）製）40.00g（0.14mol）を四口フラスコに入れ、2-ヒドロキシエチルメタクリレート（Aldrich社製）10.46g（0.082mol）と1-ブタノール（東京化成工業（株）製）10.08g（0.14mol）とイソステアリルアルコール（日産化学（株）製，製品名：ファインオキシコール（登録商標）180，グレード：FO-180）14.42g（0.054mol）とγ-ブチロラクトン（関東化学（株）製，鹿特級）120gを入れて23℃で攪拌し、10℃に冷却した後、ピリジン（関東化学（株）製，脱水）22.05g（0.28mol）を滴下した。25℃に昇温し、88時間攪拌することで、下記式（4）で表される化合物を含む溶液を得た。

[0048]

[化10]

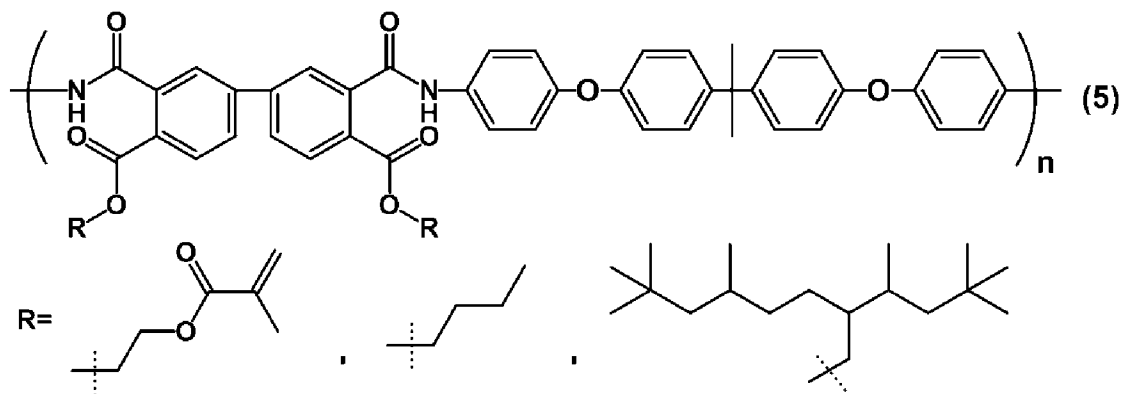


[0049] <参考製造例5> ポリイミド前駆体としてのポリマー（5）の合成

参考製造例4で調製した溶液を5℃に冷却し、N，N′-ジシクロヘキシルカルボジイミド（DCC，富士フィルム和光純薬（株）製）57.87g（0.27mol）をγ-ブチロラクトン80gに溶解した溶液を攪拌しながら0.5時間かけて反応液に滴下し、滴下後、0.5時間攪拌した。続いて2，2-ビス〔4-（4-アミノフェノキシ）フェニル〕プロパン（東京化成工業（株）製）53.02g（0.13mol）をN-メチル-2-ピロリジノン（関東化学（株）製，鹿特級）80gに溶解したものを攪拌しながら0.5時間かけて滴下した。その後、約25℃に昇温し、2時間攪拌した後、エタノール（関東化学（株）製，特級）6.0gを加えて1時間攪拌した。

[0050] 得られた反応混合物へN-メチル-2-ピロリジノン（関東化学（株）製，鹿特級）60g、テトラヒドロフラン（東京化成工業（株）製）140gを加え、ろ過した。ろ液を4,000gのイソプロパノールに滴下してポリマーを沈殿させ、得られた沈殿物を濾別した後、メタノール1,000gで二回洗浄し、真空乾燥して粉状のポリマー（5）を得た。ポリマー（5）の分子量をGPC（標準ポリエチレングリコール換算）で測定したところ、重量平均分子量（Mw）は13,749であった。収率は48.0%であった。この反応生成物は、下記式（5）で表される繰り返し単位構造を有する。

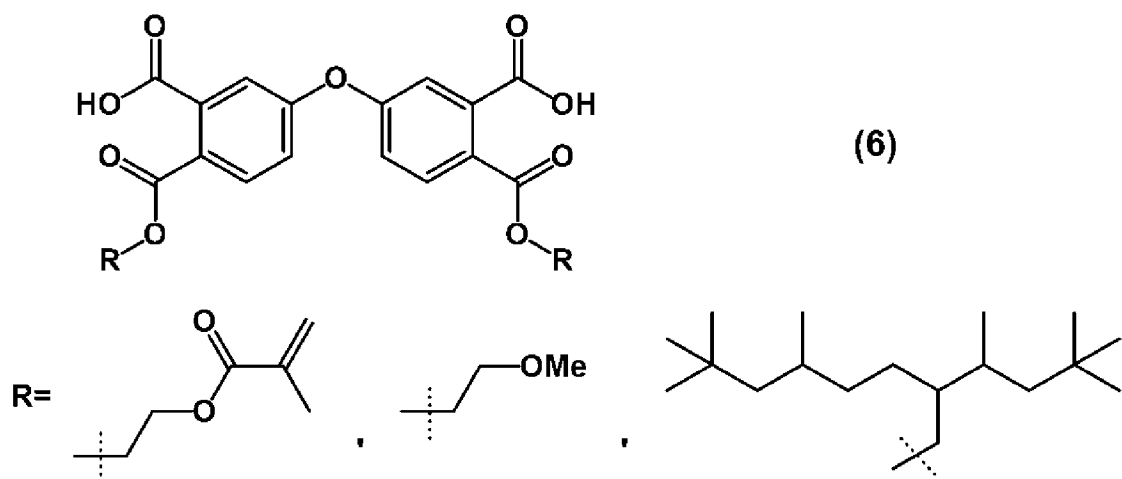
[0051] [化11]



[0052] <参考製造例6> ジカルボン酸ジエステル(6)の合成

4, 4'-オキシジフタル酸無水物(東京化成工業(株)製)40.00g(0.13mol)を四口フラスコに入れ、2-ヒドロキシエチルメタクリレート(Aldrich社製)16.53g(0.13mol)と2-メトキシエタノール(東京化成工業(株)製)5.83g(0.077mol)とイソステアリルアルコール(日産化学(株)製, 製品名: ファインオキソコール(登録商標)180, グレード: FO-180)13.67g(0.052mol)とγ-ブチロラクトン(関東化学(株)製, 鹿特級)120gを入れて23℃で攪拌し、10℃に冷却した後、ピリジン(関東化学(株)製, 脱水)20.91g(0.26mol)を滴下した。25℃に昇温し、15時間攪拌することで、下記式(6)で表される化合物を含む溶液を得た。

[0053] [化12]

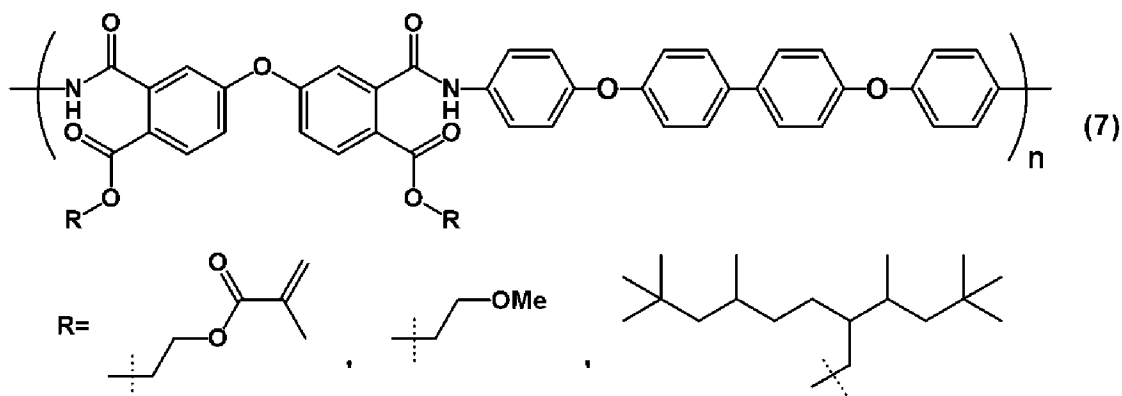


[0054] <参考製造例 7> ポリイミド前駆体としてのポリマー (7) の合成

参考製造例 6 で調製した溶液を 5℃ に冷却し、N, N' -ジシクロヘキシルカルボジイミド (DCC, 富士フイルム和光純薬 (株) 製) 54.89 g (0.26 mol) を γ -ブチロラクトン 80 g に溶解した溶液を攪拌しながら 0.5 時間かけて反応液に滴下し、滴下後、0.5 時間攪拌した。続いて 4, 4' -ビス (4-アミノフェノキシ) ビフェニル (セイカ (株) 製) 44.68 g (0.12 mol) を N-メチル-2-ピロリジノン (関東化学 (株) 製, 鹿特級) 80 g に溶解したものを攪拌しながら 0.5 時間かけて滴下した。その後、約 25℃ に昇温し、2 時間攪拌した後、エタノール (関東化学 (株) 製, 特級) 6.0 g を加えて 1 時間攪拌した。

[0055] 得られた反応混合物へ N-メチル-2-ピロリジノン (関東化学 (株) 製, 鹿特級) 60 g、テトラヒドロフラン (東京化成工業 (株) 製) 140 g を加え、ろ過した。ろ液を 4,000 g のイソプロパノールに滴下してポリマーを沈殿させ、得られた沈殿物を濾別した後、メタノール 1,000 g で二回洗浄し、真空乾燥して粉状のポリマー (7) を得た。ポリマー (7) の分子量を GPC (標準ポリエチレングリコール換算) で測定したところ、重量平均分子量 (Mw) は 19,690 であった。収率は 65.1% であった。この反応生成物は、下記式 (7) で表される繰り返し単位構造を有する。

[0056] [化13]



[0057] <参考例 1>

参考製造例 2 で得られたポリマー (2) を 32.00 g、IRGACUR

E (登録商標) OXE01 (BASF社製) 0.64 g、参考合成例1で得られた化合物6.40 g、信越シリコン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.48 g、及びIRGANOX (登録商標) 3114 (BASF社製) 0.48 gを、シクロヘキサノン48.00 g、エチルラクテート12.00 gに溶解させ組成物を調製した。その後、孔径5 μ mのポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物1を調製した。

[0058] <参考例2>

参考製造例3で得られたポリマー (3) を29.63 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF社製) 0.59 g、参考合成例1で得られた化合物5.93 g、信越シリコン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.44 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF社製) 0.44 g、及びVestanat (登録商標) B 1358 A (EVONIK社製) 2.96 gを、シクロヘキサノン48.00 g、エチルラクテート12.00 gに溶解させ組成物を調製した。その後、孔径5 μ mのポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物2を調製した。

[0059] <参考例3>

参考製造例3で得られたポリマー (3) を29.41 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF社製) 0.59 g、参考合成例1で得られた化合物5.88 g、信越シリコン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.44 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF社製) 0.44 g、Vestanat (登録商標) B 1358 A (EVONIK社製) 2.94 g、及びフタル酸 (東京化成工業 (株) 製) 0.29 gを、シクロヘキサノン48.00 g、エチルラクテート12.00 gに溶解させ組成物を調製した。その後、孔径5 μ mのポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物3を調製した。

[0060] <参考例 4>

参考製造例 5 で得られたポリマー (5) を 25.00 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF 社製) 1.50 g、参考合成例 1 で得られた化合物 7.50 g、信越シリコーン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.38 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF 社製) 0.38 g、カレンズ (登録商標) AOI-BM (昭和電工 (株) 製) 5.00 g、及びフタル酸 (東京化成工業 (株) 製) 0.25 g を、シクロヘキサノン 48.00 g、エチルラクテート 12.00 g に溶解させ組成物を調製した。その後、孔径 5 μ m のポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物 4 を調製した。

[0061] <参考例 5>

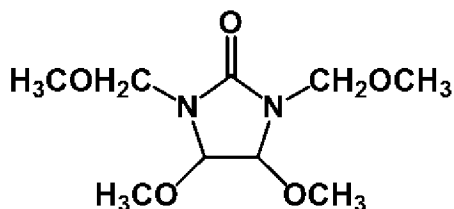
参考製造例 7 で得られたポリマー (7) を 26.67 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF 社製) 1.60 g、参考合成例 1 で得られた化合物 5.33 g、信越シリコーン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.40 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF 社製) 0.40 g、カレンズ (登録商標) AOI-BM (昭和電工 (株) 製) 5.33 g、及びフタル酸 (東京化成工業 (株) 製) 0.27 g を、シクロヘキサノン 48.00 g、エチルラクテート 12.00 g に溶解させ組成物を調製した。その後、孔径 5 μ m のポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物 5 を調製した。

[0062] <参考比較例 1>

参考製造例 2 で得られたポリマー (2) を 29.63 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF 社製) 0.59 g、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート (製品名: A-DCP, 新中村化学工業 (株) 製) 5.93 g、信越シリコーン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.44 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF 社製) 0.44 g、及びニカラック (登録商標) MX-280 ((株) 三和ケミカル製) 2.96 g を、シクロヘキサノン 48.00 g、エチルラク

テート 12.00 g に溶解させ組成物を調製した。その後、孔径 5 μm のポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物 6 を調製した。

[0063] [化14]



ニカラックMX-280

[0064] <参考比較例 2>

参考製造例 3 で得られたポリマー (3) を 29.63 g、IRGACURE (登録商標) OXE01 (BASF 社製) 0.59 g、A-DCP (新中村化学工業 (株) 製) 5.93 g、信越シリコン (登録商標) KBM-5103 (信越化学工業 (株) 製) 0.44 g、IRGANOX (登録商標) 3114 (BASF 社製) 0.44 g、及び Vestanat (登録商標) B 1358 A (EVONIK 社製) 2.96 g を、シクロヘキサノン 48.00 g、エチルラクトート 12.00 g に溶解させ組成物を調製した。その後、孔径 5 μm のポリプロピレン製マイクロフィルターを用いてろ過して、ネガ型感光性樹脂組成物 7 を調製した。

[0065] [電気特性試験]

参考例及び参考比較例で調製したネガ型感光性樹脂組成物を、アルミニウムを積層させたシリコンウェハー上にスピンコーターを用いて塗布し、100℃でプリベークし、アライナー (PLA-501, キヤノン (株) 製) を用い露光 (i 線、露光量: 500 mJ/cm²)、さらに 115℃でベーク後、さらに 230℃でベークし膜厚 10 μm の膜を形成した。その後 6 N 塩酸中に浸漬させた。アルミニウムが溶解し膜が浮き上がったところを回収し、縦 3 cm、横 9 cm にカットし自立膜を得た。この自立膜を用いて摂動方式空洞共振器法 (装置: TMR-1A, キーコム (株) 製) にて 1 GHz にお

ける比誘電率、誘電正接を算出した。測定方法の詳細は以下の通りである。

[0066] (測定方法)

摂動方式空洞共振器法

(装置構成)

ベクトルネットワークアナライザ : FieldFox N9926A

(キーサイト・テクノロジー (株) 製)

空洞共振器 : モデル TMR-1A (キーコム (株) 製)

キャビティ容積 : 1192822 mm³

測定周波数 : 約 1 GHz (サンプルの共振周波数に依存)

サンプルチューブ : PTFE 製 内径 ; 3 mm 長さ ; 約 30 mm

測定結果を以下の表 1 に示す。

[0067] [表1]

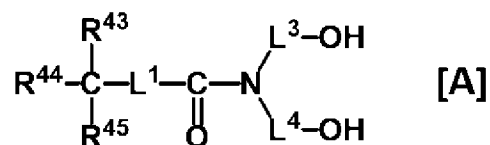
	ポリイミド 前駆体	(メタ)アクリル化合物 (又は比較化合物)	イソシアネート 化合物	カルボン酸 化合物	比誘電率	誘電正接
参考例 1	参考製造例 2	参考合成例 1	-	-	2.88	0.0118
2	参考製造例 3	参考合成例 1	Vestanat B	-	3.02	0.0123
3	参考製造例 3	参考合成例 1	Vestanat B	フタル酸	3.04	0.0124
4	参考製造例 5	参考合成例 1	AOI-BM	フタル酸	2.90	0.0040
5	参考製造例 7	参考合成例 1	AOI-BM	フタル酸	3.04	0.0143
参考比較例 1	参考製造例 2	A-DCP	ニカラック MX-280	-	3.31	0.0214
2	参考製造例 3	A-DCP	Vestanat B	-	3.25	0.0284

[0068] 本発明に係るアルコール化合物から得られる (メタ) アクリル化合物を用いた参考例 1 ~ 5 は、参考比較例 1、2 に比べ、比誘電率は同等でありながら、誘電正接が顕著に低減されている。

請求の範囲

[請求項1] 式 [A] で表されるアルコール化合物。

[化1]



(式 [A] 中、 R^{43} 及び R^{44} は、それぞれ独立して、炭素原子数 1 ～ 27 のアルキル基を表し、 R^{45} は、水素原子又は炭素原子数 1 ～ 25 のアルキル基を表し、ただし、 $-\text{C R}^{43} \text{R}^{44} \text{R}^{45}$ 基の炭素原子数の合計は 10 ～ 31 であり、 L^1 は、単結合又は $*-\text{CH}_2\text{O}-$ を表し（ここで $*$ は、 $-\text{C R}^{43} \text{R}^{44} \text{R}^{45}$ 基に結合する端を示す。）、 L^3 及び L^4 は、それぞれ独立して、エーテル結合を含んでもよい炭素原子数 2 ～ 8 のアルキレン基を表す。)

[請求項2] 前記 L^3 及び L^4 が、それぞれ独立して、エチレン基、3-オキシペンタン-1, 5-ジイル基、3, 6-ジオキシオクタン-1, 8-ジイル基、及び 3, 6, 9-トリオキシウンデカン-1, 11-ジイル基からなる群から選ばれるいずれかの基である請求項1記載のアルコール化合物。

[請求項3] 前記 L^3 及び L^4 が、エチレン基である請求項2記載のアルコール化合物。

[請求項4] 前記 L^1 が、単結合を表し、前記 $-\text{C R}^{43} \text{R}^{44} \text{R}^{45}$ 基が、ペンタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-7-イル基、ヘプタデカン-9-イル基、3, 13-ジメチルペンタデカン-7-イル基、2, 2, 4, 8, 10, 10-ヘキサメチルウンデカン-5-イル基、2, 3, 13, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、2, 6, 10, 14-テトラメチルペンタデカン-7-イル基、及びペンタコサン-12-イル基からなる群から選ばれるいずれかの基である請求項1～3のいずれか1項記載のアルコール化合物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/046558

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C07C233/18 (2006.01) i, C08F20/34 (2006.01) i, C08F290/14 (2006.01) i, C08G73/10 (2006.01) i, G03F7/027 (2006.01) i, G03F7/037 (2006.01) i, G03F7/20 (2006.01) i

FI: C07C233/18CSP, G03F7/027502, G03F7/027514, G03F7/20501, G03F7/20521, C08F20/34, C08G73/10, C08F290/14, G03F7/037501

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. C07C233/18, C08F20/34, C08F290/14, C08G73/10, G03F7/027, G03F7/037, G03F7/20

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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

CAplus (STN), 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	FR 1393057 A (JERSEY PRODUCTION RESEARCH COMPANY) 08 February 1965, page 2, right column	1
X	HAYES, M. E. et al., Journal of Dispersion Science and Technology, 1980, 1(3), 297-321, ISSN 0193-2691, pp. 301, 302, fig. 1	1-3
A	WO 2013/168675 A1 (ASAHI KASEI E MATERIALS CORPORATION) 14 November 2013, entire text	1-4
P, X	JP 2019-147919 A (JXTG NIPPON OIL & ENERGY CORPORATION) 05 September 2019, paragraphs [0065], [0068], [0069]	1-4
P, X	JP 2019-147920 A (JXTG NIPPON OIL & ENERGY CORPORATION) 05 September 2019, paragraph [0104]	1-4



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
15.01.2020

Date of mailing of the international search report
28.01.2020

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/JP2019/046558

FR 1393057 A	08 February 1965	(Family: none)
WO 2013/168675 A1	14 November 2013	CN 104285184 A entire text KR 10-2014-0148451 A entire text TW 201351047 A entire text
JP 2019-147919 A	05 September 2019	(Family: none)
JP 2019-147920 A	05 September 2019	(Family: none)

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C07C 233/18(2006.01)i; C08F 20/34(2006.01)i; C08F 290/14(2006.01)i; C08G 73/10(2006.01)i; G03F 7/027(2006.01)i; G03F 7/037(2006.01)i; G03F 7/20(2006.01)i FI: C07C233/18 CSP; G03F7/027 502; G03F7/027 514; G03F7/20 501; G03F7/20 521; C08F20/34; C08G73/10; C08F290/14; G03F7/037 501</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>C07C233/18; C08F20/34; C08F290/14; C08G73/10; G03F7/027; G03F7/037; G03F7/20</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>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table> <p>国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）</p> <p>CAPLUS (STN); REGISTRY (STN)</p>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2020年	日本国実用新案登録公報	1996-2020年	日本国登録実用新案公報	1994-2020年										
日本国実用新案公報	1922-1996年																			
日本国公開実用新案公報	1971-2020年																			
日本国実用新案登録公報	1996-2020年																			
日本国登録実用新案公報	1994-2020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>X</td> <td>FR 1393057 A (JERSEY PRODUCTION RESEARCH COMPANY) 08.02.1965 (1965-02-08) 2頁右欄</td> <td>1</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>M. E. HAYES et al., Journal of Dispersion Science and Technology, 1980, 1(3), 297-321, ISSN 0193-2691 301-302頁、Fig. 1.</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2013/168675 A1 (旭化成イーマテリアルズ株式会社) 14.11.2013 (2013-11-14) 全文</td> <td>1-4</td> </tr> <tr> <td>P, X</td> <td>JP 2019-147919 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0065]、[0068]、[0069]</td> <td>1-4</td> </tr> <tr> <td>P, X</td> <td>JP 2019-147920 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0104]</td> <td>1-4</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	X	FR 1393057 A (JERSEY PRODUCTION RESEARCH COMPANY) 08.02.1965 (1965-02-08) 2頁右欄	1	X	M. E. HAYES et al., Journal of Dispersion Science and Technology, 1980, 1(3), 297-321, ISSN 0193-2691 301-302頁、Fig. 1.	1-3	A	WO 2013/168675 A1 (旭化成イーマテリアルズ株式会社) 14.11.2013 (2013-11-14) 全文	1-4	P, X	JP 2019-147919 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0065]、[0068]、[0069]	1-4	P, X	JP 2019-147920 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0104]	1-4
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	FR 1393057 A (JERSEY PRODUCTION RESEARCH COMPANY) 08.02.1965 (1965-02-08) 2頁右欄	1																		
X	M. E. HAYES et al., Journal of Dispersion Science and Technology, 1980, 1(3), 297-321, ISSN 0193-2691 301-302頁、Fig. 1.	1-3																		
A	WO 2013/168675 A1 (旭化成イーマテリアルズ株式会社) 14.11.2013 (2013-11-14) 全文	1-4																		
P, X	JP 2019-147919 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0065]、[0068]、[0069]	1-4																		
P, X	JP 2019-147920 A (JXTGエネルギー株式会社) 05.09.2019 (2019-09-05) 段落 [0104]	1-4																		
<p>☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p>☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																				
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>																				
<p>国際調査を完了した日</p> <p>15.01.2020</p>		<p>国際調査報告の発送日</p> <p>28.01.2020</p>																		
<p>名称及びあて先</p> <p>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</p>		<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>水島 英一郎 4H 3968</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3443</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/JP2019/046558

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
FR	1393057	A	08.02.1965	(ファミリーなし)	
WO	2013/168675	A1	14.11.2013	CN 104285184 A	
				全文	
				KR 10-2014-0148451 A	
				全文	
				TW 201351047 A	
				全文	
JP	2019-147919	A	05.09.2019	(ファミリーなし)	
JP	2019-147920	A	05.09.2019	(ファミリーなし)	