

(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
2023年12月7日(07.12.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/234340 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 101/06 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C08G 59/40 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/020245
- (22) 国際出願日: 2023年5月31日(31.05.2023)
- (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 2022-088784 2022年5月31日(31.05.2022) JP
- (71) 出願人: 住友ベークライト株式会社(SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) [JP/JP];
〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 牧原 康二 (MAKIHARA Koji);
〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).
熊本 玄昭 (KUMAMOTO Tsuneaki); 〒1400002
東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP). 橋詰 正義 (HASHIZUME Masayoshi); 〒1400002
東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 速水 進治 (HAYAMI Shinji); 〒1410031
東京都品川区西五反田7丁目9番2号 KDX五反田ビル9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, 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: EASILY DETACHABLE THERMOSETTING RESIN COMPOSITION AND DETACHING METHOD

(54) 発明の名称: 易解体性熱硬化性樹脂組成物および解体方法

(57) Abstract: An easily detachable thermosetting resin composition according to the present invention contains a thermosetting component; and a cured product which is obtained by thermally curing this thermosetting resin composition has a structure represented by formula (1).

(57) 要約: 本発明の易解体性熱硬化性樹脂組成物は、熱硬化性成分を含み、当該熱硬化性樹脂組成物を熱硬化した後に得られる硬化物が、式(1)で表される構造を有する。



WO 2023/234340 A1

明 細 書

発明の名称： 易解体性熱硬化性樹脂組成物および解体方法

技術分野

[0001] 本発明は、易解体性熱硬化性樹脂組成物および解体方法に関する。より詳細には、易解体性熱硬化性樹脂組成物、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える構造体、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える半導体装置、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物の解体方法、および構造体を構成する材料のリサイクル方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、自動車等の構造物は、軽量化の観点から、鉄に替わってアルミニウム等の軽量の金属、樹脂等を使用する傾向があり、これら金属と熱硬化性樹脂の硬化物との複合化が進んでいる。一方、金属等の資源の有効活用を促進すべく、自動車等に使用された複合部材の廃材等から金属等を分離回収し、再利用するための研究・開発が盛んにおこなわれている。そこで、複合部材から金属の損傷を抑えつつ、熱硬化性樹脂の硬化物を除去して、金属を回収することが重要となる。

[0003] 例えば、特許文献1には、炭素繊維を強化材として用いた炭素繊維強化プラスチックから炭素繊維を回収したり、エポキシ樹脂硬化物（封止樹脂）によって半導体素子を封止することにより得られた半導体パッケージから半導体素子等を回収するため、熱硬化性樹脂組成物の硬化物を低温で効率よく分解および溶解することが可能な処理液が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2020-50689号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、特許文献1に開示されるような熱硬化性樹脂組成物の硬化

物の分解方法は、分解するための処理液に着目したものであり、熱硬化性樹脂組成物そのものの分解性、解体性についての技術的思想を開示するものではなかった。

本発明者は、新たに熱硬化性樹脂組成物自体の解体性に着目し、鋭意検討を行った結果、熱硬化性樹脂組成物の硬化物が所定の構造を有することが有効であることを見出した。すなわち、熱硬化性樹脂組成物の硬化物を溶液処理した際に当該所定の構造部分が離脱

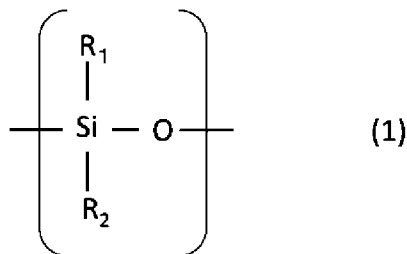
しやすくなることで硬化物中のネットワークが分断され、硬化物が解体されやすくなると考えられた。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は、以下の易解体性熱硬化性樹脂組成物、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える構造体、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える半導体装置、易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物の解体方法、および構造体を構成する材料のリサイクル方法を提供する。

[0007] [1] 熱硬化性成分を含む易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、当該易解体性熱硬化性樹脂組成物を熱硬化した後に得られる硬化物が、以下の式(1)で表される構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[化1]



(式(1)中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。)

[2] [1]に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記熱硬化性成分が $-\text{Si}-\text{O}-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組

成物。

[3] [1] または [2] に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって

、

前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該熱硬化性成分および当該硬化剤がいずれも $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[4] [1] または [2] に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって

、

前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該硬化剤が $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[5] [1] または [2] に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって

、

前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該熱硬化性樹脂が $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[6] [3] 乃至 [5] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記硬化剤が、フェノール系硬化剤を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物

。

[7] [3] 乃至 [6] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、シリコーン樹脂、シアネート樹脂、ビスマレイミド樹脂、およびアクリル樹脂の中から選ばれる 1 種または 2 種以上を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[8] [7] に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物

。

[9] [1] 乃至 [8] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

さらに無機充填材を含み、当該無機充填材の含有量が前記易解体性熱硬化性樹脂組成物全量に対して、10～98質量%である、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[1 0] [1] 乃至 [9] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

シリルエーテル変性ノボラック樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[1 1] [1] 乃至 [1 0] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

重量平均分子量 (M_w) が500～10000のフェノール樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[1 2] [1] 乃至 [1 1] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える、構造体。

[1 3] 半導体素子と、

前記半導体素子を封止する封止材と、
を備え、

前記封止材が [1] 乃至 [1 1] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物からなる、半導体装置。

[1 4] [1] 乃至 [1 1] いずれか一つに記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物の解体方法であって、

前記易解体性熱硬化性樹脂組成物の前記硬化物を溶媒に浸漬して解体する工程を含む、解体方法。

[1 5] [1 4] に記載の解体方法であって、

前記溶媒は、フッ素イオンを含む溶媒である、解体方法。

[1 6] [1 4] または [1 5] に記載の解体方法であって、

前記浸漬は-20～200℃で行われる、解体方法。

[17] [14] 乃至 [16] いずれか一つに記載の解体方法であって、前記浸漬は5～30℃で行われる、解体方法。

[18] [12] に記載の構造体を構成する材料のリサイクル方法であって、

前記構造体を溶媒に浸漬し、前記易解体性熱硬化性樹脂組成物の前記硬化物を解体する工程と、

前記構造体から前記材料を回収する工程と、を含む、リサイクル方法。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、熱硬化性樹脂組成物の硬化物の易解体性により資源のリサイクル性を向上できる。

発明を実施するための形態

[0009] 本明細書中、数値範囲の説明における「a～b」との表記は、特に断らない限り、a以上b以下のことを表す。例えば、「1～5質量%」とは「1質量%以上5質量%以下」を意味する。また、数値範囲の下限値および上限値は、それぞれ他の数値範囲の下限値および上限値と任意に組み合わせられる。

[0010] 本明細書に例示する各成分および材料は、特に断らない限り、1種を単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0011] 本明細書における基（原子団）の表記において、置換か無置換かを記していない表記は、置換基を有しないものと置換基を有するものの両方を包含するものである。例えば「アルキル基」とは、置換基を有しないアルキル基（無置換アルキル基）のみならず、置換基を有するアルキル基（置換アルキル基）をも包含するものである。

また、本明細書における基（原子団）の表記において、直鎖、分岐、環状かを記していない表記は、直鎖、分岐、または環状のいずれであってもよい。

[0012] 本明細書における「有機基」の語は、特に断りが無い限り、有機化合物から1つ以上の水素原子を除いた原子団のことを意味する。例えば、「1価の

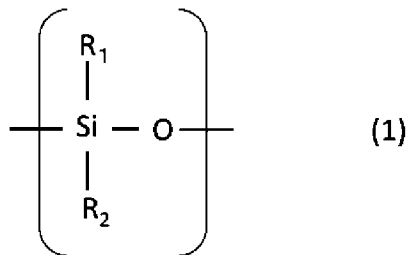
有機基」とは、任意の有機化合物から1つの水素原子を除いた原子団のことを表す。

[0013] 以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

[0014] 1. 易解体性熱硬化性樹脂組成物

本実施形態の易解体性熱硬化性樹脂組成物（以下、単に「樹脂組成物」とも称する。）は、熱硬化性成分を含み、当該樹脂組成物を熱硬化した後に得られる硬化物が、以下の式（1）で表される構造を有するものである。また、上記熱硬化の条件は、175℃で2分とすることがよい。

[0015] [化2]



（式（1）中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。）

[0016] これにより、本実施形態の樹脂組成物の硬化物を溶液処理した際に式（1）の構造が離脱して、硬化物中の架橋構造が崩壊し、易解体性が得られる。式（1）の構造は、熱硬化性成分の熱硬化反応によって生じるものであってもよい。

[0017] 本実施形態において「易解体性」は、硬化物を溶液処理した際に、硬化物がゲル分解し可溶化することを意図する。

また、硬化物中の式（1）で表される構造の有無は、例えばガスクロマトグラフィー、高速液体クロマトグラフィー、薄層クロマトグラフィー、NMR、IR等の通常の実験手段により確認することができる。確認する際の分析対象は硬化物の状態であってもよく、硬化物を分解した後の分解液であってもよい。硬化物の状態から確認できる点から、ガスクロマトグラフィー質

量分析法（GC-MS）が好ましい。また、後述するカップリング剤等による構造と区別しやすくする等の点から、分析対象を硬化物の分解処理液としてもよい。

[0018] また、本実施形態の硬化物は、式（1）の構造を繰り返し単位として有することが好ましい。繰り返し数は特に限定されないが、平均繰り返し数5～1500であってもよい。

[0019] 式（1）中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。

炭素数1～30の炭化水素基は、直鎖状、分岐状、または環状のいずれであってもよく、置換基を有していても有していなくてもよい。

炭素数1～30の炭化水素基は、好ましくは、炭素数1～20の直鎖状アルキル、アルケニル、アルキニル基であり、より好ましくは炭素数1～10の直鎖状アルキル、アルケニル、アルキニル基である。

炭素数3～20の分岐状炭化水素基は、好ましくは炭素数3～20の分岐状アルキル、アルケニル、アルキニル基であり、より好ましくは炭素数3～10の分岐状アルキル、アルケニル、アルキニル基であり、さらに好ましくは炭素数3～6の分岐状アルキル、アルケニル、アルキニル基である。

炭素数3～20の環状炭化水素基は、好ましくは炭素数3～20のシクロアルキル、シクロアルケニル、シクロアルキニル基であり、さらに好ましくは炭素数5～10の、シクロアルケニル、シクロアルキニル基である。具体例として、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

芳香族基は、置換基を有していてもよく、置換基としては例えば、炭化水素基、水酸基、ハロゲン原子、アミノ基等が挙げられる。

炭素数1～30のアルコキシル基は、好ましくは炭素数1～10のアルコキシル基であり、より好ましくは炭素数1～6のアルコキシル基である。具体例として、メトキシ基、エトキシ基、イソプロピルオキシ基等が挙げられ

る。

[0020] 本実施形態の樹脂組成物は熱硬化性成分を含む。熱硬化性成分は、通常、ラジカル等の活性化学種が作用することで重合／架橋する基を含むものであればよく、具体的には、熱硬化性樹脂、または硬化剤のいずれであってもよい。本実施形態の樹脂組成物は、熱硬化性成分を1種のみ含んでもよいし、2種以上を含んでもよい。

[0021] 本実施形態の樹脂組成物は、熱硬化性樹脂、および硬化剤を含むことが好ましい。この場合、熱硬化性樹脂、および硬化剤の少なくともいずれか一方が、 $-Si-O-$ 構造を有することが好ましい。これにより、本実施形態の樹脂組成物の硬化物が式(1)で示される構造を備えることができ、硬化物が溶媒に可溶化することにより、易解体性が得られるようになる。

[0022] 本実施形態の樹脂組成物は、硬化物が式(1)で表される構造を有するように各種成分を組み合わせることができ、具体的には、例えば、以下の形態の樹脂組成物が挙げられる。

[0023] <1> $-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂(P)を含む樹脂組成物。
<2>熱硬化性樹脂と、硬化剤として $-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂(P)と、含む樹脂組成物。
<3> $-Si-O-$ 構造を有するエポキシ樹脂(A)を含む樹脂組成物。
<4>熱硬化性樹脂としてケイ素原子に結合したアルケニル基を1分子中に2個以上有するシリコーン樹脂(オルガノポリシロキサン)(C1)と、硬化剤としてケイ素原子に結合した水素原子を1分子中に2個以上有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン(C2)と、を含む樹脂組成物。
<5> $-Si-O-$ 構造を主鎖に持つ不飽和結合を反応させて得られたアクリル／ビニル樹脂を含む、樹脂組成物。

[0024] 以下、各実施形態の詳細を説明する。

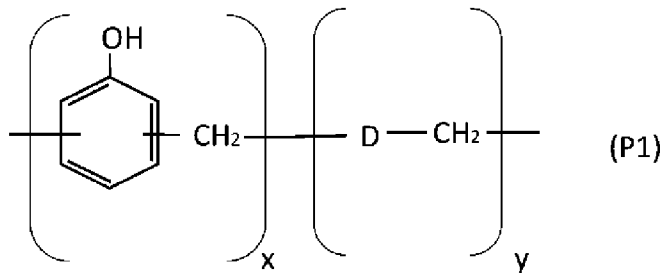
[0025] <第1実施形態>

第1実施形態では、 $-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂(P)を含む樹脂組成物について説明する。この場合、硬化剤としては、 $-Si-O-$

構造を有していないものであってもよく、公知の硬化剤を用いてもよい。公知の硬化剤については後述する。

[0026] -Si-O-構造を有するフェノール樹脂（P）としては、フェノール性水酸基を有するシリルエーテル類により変性されたフェノール樹脂を用いることができる。具体的には、例えば、以下の式（P1）に示されるシリルエーテル変性ノボラック樹脂が挙げられる。

[0027] [化3]

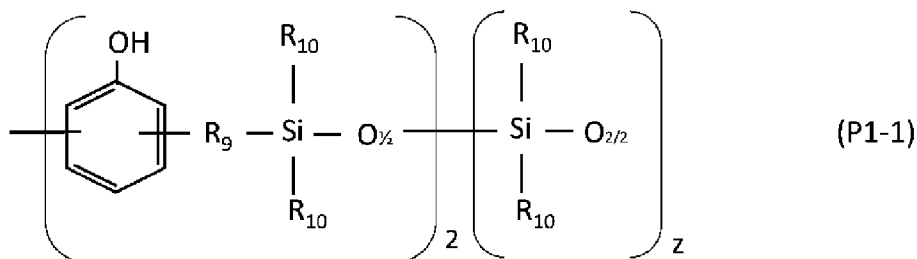


[0028] 式（P1）中、x，yはいずれも整数であり、x+yは2～200である。

また、式（P1）中、良好な解体性や成形性を得る点から、x:y=1:99～99:1であることが好ましく、x:y=2:98～75:25であることがより好ましく、x:y=5:95～50:50であることがさらに好ましい。

また、式（P1）中、Dは、以下の式（P1-1）で表される構造を有する。

[0029] [化4]



[0030] 式（P1-1）中、R₉は炭素数2～10の2価の炭化水素基を示す。R₁₀はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の1価の炭化水素基または

芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。zは0～10の整数である。

なかでも、R₉は、好ましくは炭素数2～5の2価の炭化水素基であり、より好ましくは炭素数2～4の2価の炭化水素基であり、さらに好ましくはプロペニル基である。R₁₀はそれぞれ独立して、炭素数1～20の1価の炭化水素基であることが好ましく、炭素数1～10の1価の炭化水素基であることがより好ましく、また、アルキル基であり、炭素数1～5のアルキル基であることがさらに好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

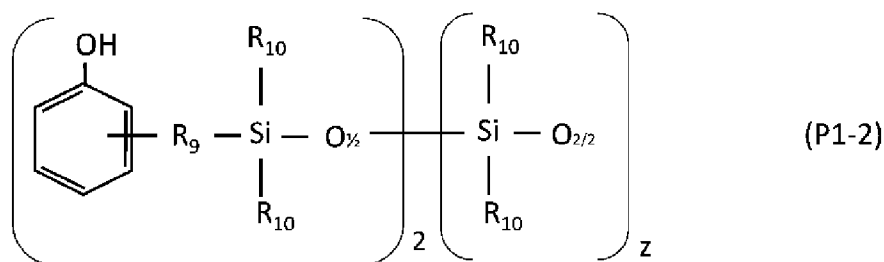
[0031] フェノール樹脂(P1)の重量平均分子量(Mw)は、特に限定されないが、500～10000であることが好ましく、1000～8000であることがより好ましく、1500～5000であることがさらに好ましい。また、フェノール樹脂(P1)の数平均分子量(Mn)は、特に限定されないが、100～5000であることが好ましく、300～3000であることがより好ましく、600～1000であることがさらに好ましい。

本実施形態において、Mw、Mnはゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)により算出することができる。

[0032] フェノール樹脂(P)の合成方法は、シリルエーテル類と、フェノール類と、アルデヒド類とを、酸触媒の存在下で反応させて得ることができる。

[0033] シリルエーテル類としては、フェノール性水酸基を有するものが好ましく、以下の式(P1-2)に示すものが挙げられる。

[0034] [化5]



[0035] 式(P1-2)中、R₉は炭素数2～10の2価の炭化水素基を示す。R₁₀はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の1価の炭化水素基または

芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。zは0～10の整数である。

なかでも、R₉は、好ましくは炭素数2～5の2価の炭化水素基であり、より好ましくは炭素数2～4の2価の炭化水素基であり、さらに好ましくはプロペニル基である。R₁₀はそれぞれ独立して、炭素数1～20の1価の炭化水素基であることが好ましく、炭素数1～10の1価の炭化水素基であることがより好ましい。また、好ましくはアルキル基であり、炭素数1～5のアルキル基であることがさらに好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

[0036] フェノール類の一例としては、特に限定されないが、例えば、フェノール；オルソクレゾール、メタクレゾール、パラクレゾール等のクレゾール；2, 3-キシレノール、2, 4-キシレノール、2, 5-キシレノール、2, 6-キシレノール、3, 5-キシレノール等のキシレノール；2, 3, 5-トリメチルフェノール、2-エチルフェノール、4-エチルフェノール、2-イソプロピルフェノール、4-イソプロピルフェノール、n-ブチルフェノール、イソブチルフェノール、tert-ブチルフェノール、ヘキシルフェノール、オクチルフェノール、ノニルフェノール、フェニルフェノール、ベンジルフェノール、クミルフェノール、アリルフェノール、カルダノール、ウルシオール、チチオール、ラッコール等のアルキルフェノール；1-ナフトール、2-ナフトール等のナフトール；フルオロフェノール、クロロフェノール、ブromoフェノール、ヨードフェノール等のハロゲン化フェノール、p-フェニルフェノール、アミノフェノール、ニトロフェノール、ジニトロフェノール、トリニトロフェノール等の1価フェノール置換体；レゾルシン、アルキルレゾルシン、ピロガロール、カテコール、アルキルカテコール、ハイドロキノン、アルキルハイドロキノン、フロログルシン、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ジヒドロキシナフタリン、ナフタレン等の多価フェノール；などが挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。これらの中でも、フェノール類は

、フェノール、クレゾール、キシレノールおよびアルキルフェノールからなる群より選ばれた1種以上を含ことができ、安価な観点から、フェノールを用いることができる。

[0037] アルデヒド類としては、特に限定されないが、例えば、ホルマリンやパラホルムアルデヒド等のホルムアルデヒド；トリオキサン、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ポリオキシメチレン、クロラール、ヘキサメチレンテトラミン、フルフラール、グリオキサール、n-ブチルアルデヒド、カプロアルデヒド、アリルアルデヒド、ベンズアルデヒド、クロトンアルデヒド、アクロレイン、テトラオキシメチレン、フェニルアセトアルデヒド、オートルアルデヒド、サリチルアルデヒド等が挙げられる。これらのアルデヒド類は単独または2種以上を組み合わせ使用してもよい。この中でも、アルデヒド類は、ホルムアルデヒドまたはアセトアルデヒドを含むことができ、生産性および安価な観点から、ホルマリンまたはパラホルムアルデヒドを用いることができる。

[0038] フェノール樹脂（P）を合成する際に用いる触媒は、無触媒でも構わないし、ノボラック型フェノール樹脂を製造する観点から、酸性触媒を用いることができる。酸性触媒としては、特に限定するものではないが、例えば、蔞酸、塩酸、硫酸、ジエチル硫酸、パラトルエンスルホン酸等の酸類、酢酸亜鉛等の金属塩類が挙げられ、これらを単独または2種類以上併用して使用できる。

[0039] フェノール樹脂（P）を合成する際に用いる反応溶媒としては、水を用いてもよいが、有機溶剤を用いてもよい。有機溶剤としては、非極性溶剤を用いて非水系を用いることができる。有機溶剤の一例としては、例えば、アルコール類、ケトン類、芳香族類で、アルコール類としては、メタノール、エタノール、プロピルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、グリセリン等で、ケトン類としては、アセトン、メチルエチルケトン等で、芳香族類としては、トルエン、キシレン等が

挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0040] また、フェノール類（P）とアルデヒド類（F）のモル比（F/Pモル比）は、フェノール類1モルに対し、例えば、アルデヒド類を0.2～1.0モルとしてもよく、好ましくは0.3～0.9モルとすることができる。アルデヒド類を上記範囲とすることで、未反応フェノール量を少なくすることができ、歩留まりを上げることができる。

[0041] また、反応温度は、例えば、40℃～120℃としてもよく、好ましくは60℃～110℃としてもよい。なお、反応時間は、特に制限はなく、出発原料の種類、配合モル比、触媒の使用量及び種類、反応条件に応じて適宜決定すればよい。

[0042] 以上により、フェノール樹脂（P）を得ることができる。

[0043] <第2実施形態>

第2実施形態では、 $-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂（P）を硬化剤として用いる場合について説明する。この場合、熱硬化性樹脂は、 $-Si-O-$ 構造を有していても有さないものであってもよいが、第2実施形態においては、 $-Si-O-$ 構造を有さない場合について説明する。熱硬化性樹脂としては、特に限定されないが、公知のエポキシ樹脂を用いることができる。公知のエポキシ樹脂については、後述する。

[0044] また、硬化剤としてのフェノール樹脂（P）とエポキシ樹脂は、全熱硬化性樹脂中のエポキシ基数（EP）と全フェノール樹脂のフェノール性水酸基数（OH）との当量比（EP）/（OH）が、好ましくは、0.8以上1.6以下、より好ましくは0.9以上1.3以下、さらに好ましくは1.0以上1.2以下となるように調整される。当量比が上記範囲内であると、得られる本実施形態の樹脂組成物の硬化特性を良好にできる。

[0045] 第2実施形態の樹脂組成物に含まれるその他の成分については、後述する。

[0046] <第3実施形態>

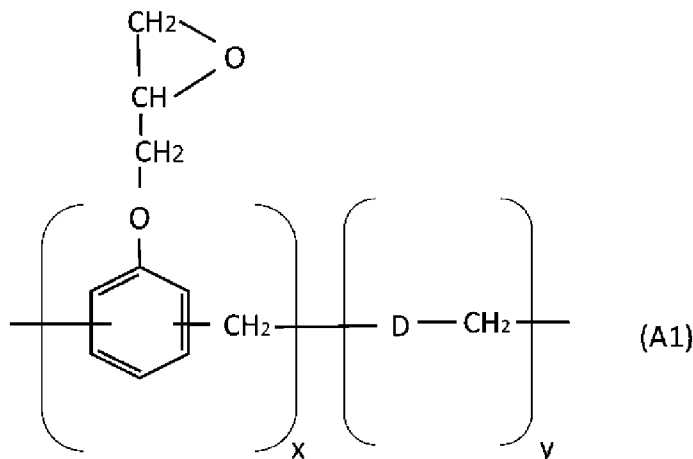
第3実施形態では、 $-Si-O-$ 構造を有するエポキシ樹脂(A)を含む樹脂組成物について説明する。この場合、硬化剤は、 $-Si-O-$ 構造を有していても有さないものであってもよいが、第3実施形態においては、 $-Si-O-$ 構造を有さない場合について説明する。硬化剤としては、特に限定されないが、公知の硬化剤を用いてもよい。公知の硬化剤については後述する。

[0047] $-Si-O-$ 構造を有するエポキシ樹脂(A)として、具体的には、例えば、第1実施形態で説明した $-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂(P1)をエポキシ化した $-Si-O-$ 構造を有するエポキシ樹脂(A1)と、以下の式(A2)で表される構造を有する2官能以上のエポキシ化合物(A2)と、以下の式(A3)で表される構造を有するオルガノシロキサン型エポキシ化合物(A3)と、等が挙げられる。

[0048] [エポキシ樹脂(A1)]

$-Si-O-$ 構造を有するフェノール樹脂(P1)をエポキシ化した $-Si-O-$ 構造を有するエポキシ樹脂(A1)としては、以下の式(A1)で示されるものが挙げられる。

[0049] [化6]



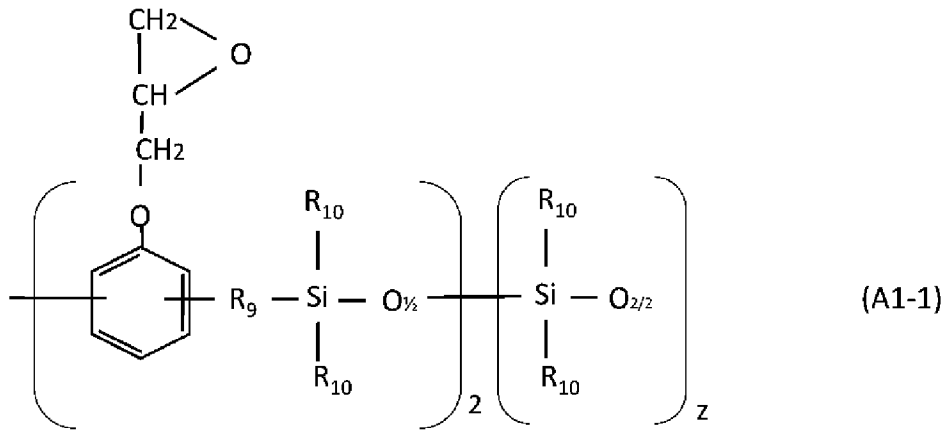
[0050] 式(A1)中、 x 、 y はいずれも整数であり、 $x + y$ は2~200である。

また、式(A1)中、良好な解体性や成形性を得る点から、 $x : y = 1 :$

99～99：1であることが好ましく、 $x : y = 2 : 98 \sim 75 : 25$ であることがより好ましく、 $x : y = 5 : 95 \sim 50 : 50$ であることがさらに好ましい。

また式 (A 1) 中、Dは、以下の式 (A 1-1) で表される構造を有する。

[0051] [化7]



[0052] 式 (A 1-1) 中、 R_9 は炭素数2～10の2価の炭化水素基を示す。 R_{10} はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の1価の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。 z は0～10の整数である。

なかでも、 R_9 は、好ましくは炭素数2～5の2価の炭化水素基であり、より好ましくは炭素数2～4の2価の炭化水素基であり、さらに好ましくはプロペニル基である。 R_{10} はそれぞれ独立して、炭素数1～20の1価の炭化水素基であることが好ましく、炭素数1～10の1価の炭化水素基であることがより好ましい。また、好ましくはアルキル基であり、炭素数1～5のアルキル基であることがさらに好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

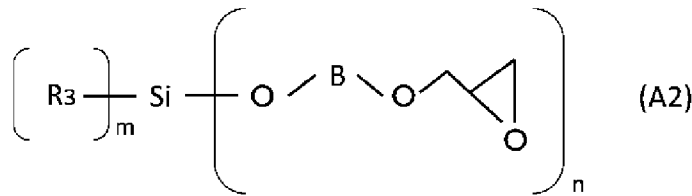
[0053] エポキシ樹脂 (A 1) は、上記のフェノール樹脂 (P 1) を公知の方法でエポキシ化することにより製造できる。

[0054] [エポキシ化合物 (A 2)]

エポキシ化合物 (A 2) は、以下の式 (A 2) で表される構造を有する2

官能以上のエポキシ化合物である。

[0055] [化8]



[0056] 式 (A 2) 中、m、nは整数であり、m+n=4である。

R₃は、独立に、水素、アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニル、シクロアルキニル、アリール、複素環式、ヘテロシクロアルキル、シクロアルケニル、ヘテロアリール、アルコキシアリール、アルコキシアルキルである。

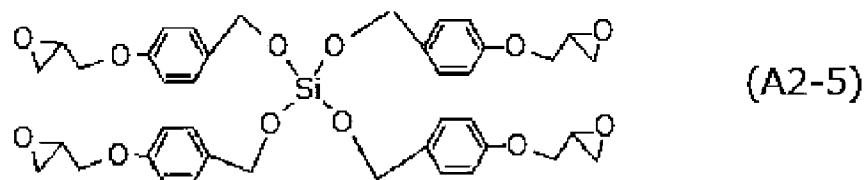
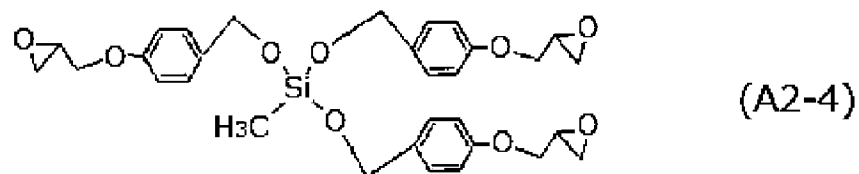
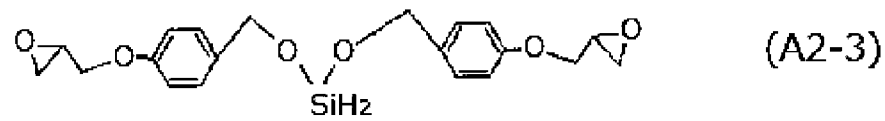
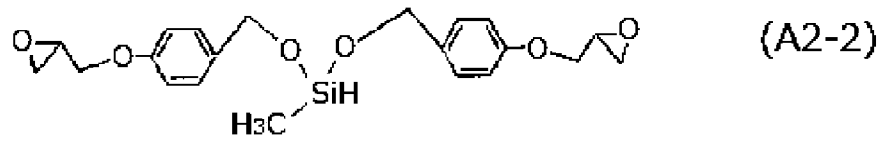
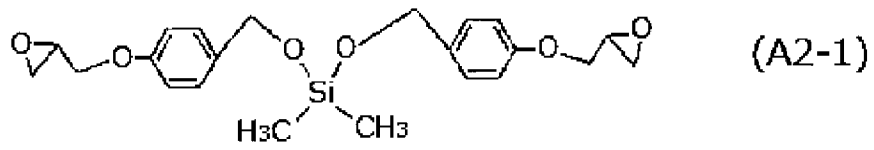
Bは、独立に、アリーレン、アリーレンエーテル、アルキレン-アリーレン、アルキレン-アリーレンアルキレン、アルケニレン-アリーレン、アルケニレン-アリーレンアルケニレン、アルキレン-アリーレン-アルケニレン、アルキニレンアリーレン、アルキニレン-アリーレン-アルキニレン、ヘテロアリーレン、アルキレン-ヘテロアリーレン、アルキレン-ヘテロアリーレン-アルキレン、アルケニレン-ヘテロアリーレン、アルケニレン-ヘテロアリーレン-アルケニレン、アルキレン-ヘテロアリーレン-アルケニレン、アルキニレンヘテロアリーレン、アルキニレン-ヘテロアリーレン-アルキニレン、アルキレン、アルキレン-ヘテロ-アルキレン、アルケニレン、アルケニレン-ヘテロ-アルケニレン、アルキレン-ヘテロ-アルケニレン、アルキニレン、シクロアルキレン、アルキレン-シクロアルキレン、アルキレン-シクロアルキレンアルキレン、アルケニレン-シクロアルキレン、アルケニレンシクロアルキレン-アルケニレン、アルキレン-シクロアルキレンアルケニレン、アルキニレン-シクロアルキレン、アルキニレンシクロアルキレン-アルキニレン、ヘテロシクロアルキレン、アルキレンヘテロシクロアルキレン、アルキレン-ヘテロシクロアルキレンアルキレン、アルケニレン-ヘテロシクロアルキレン、アルケニレンヘテロシクロアルキ

レンーアルケニレン、アルキレンヘテロシクロアルキレンーアルケニレン、アルキニレンヘテロシクロアルキレン、アルキニレンーヘテロシクロアルキレンアルキニレン、シクロアルケニレン、アルキレンーシクロアルケニレン、アルキレンーシクロアルケニレンーアルキレン、アルケニレンーシクロアルケニレン、アルケニレンーシクロアルケニレンーアルケニレン、アルキレンシクロアルケニレンーアルケニレン、アルキニレンーシクロアルケニレン、アルキニレンーシクロアルケニレンーアルキニレン、ヘテロシクロアルケニレン、アルキレンーヘテロシクロアルケニレン、アルキレンーヘテロシクロアルケニレンーアルキレン、アルケニレンーヘテロシクロアルケニレン、アルケニレンーヘテロシクロアルケニレンーアルケニレン、アルキレンーヘテロシクロアルケニレンーアルケニレン、アルケニレンーヘテロシクロアルケニレンーアルケニレン、アルキレンーヘテロシクロアルケニレンーアルケニレン、アルキニレンヘテロシクロアルケニレン、アルキニレンーヘテロシクロアルケニレン、またはアルキニレンである。

[0057] 上記の2官能以上のエポキシ化合物(A2)としては、具体的には、以下の式(A2-1)～(A2-19)にそれぞれ示されるものが挙げられる。

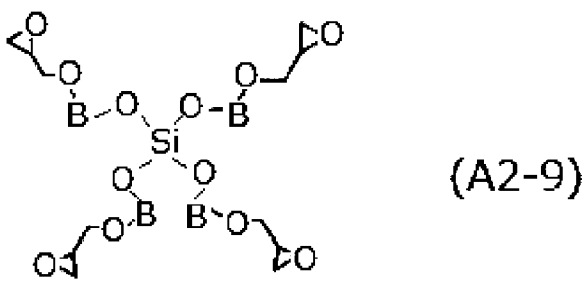
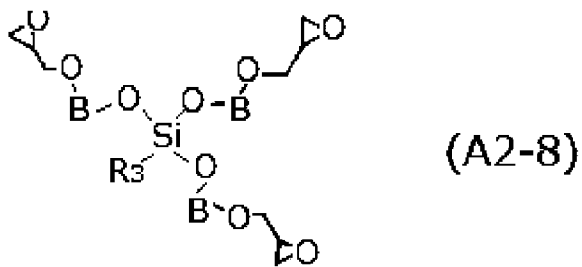
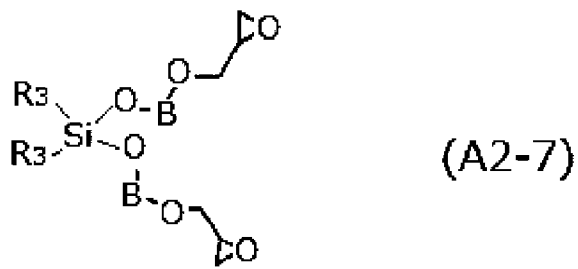
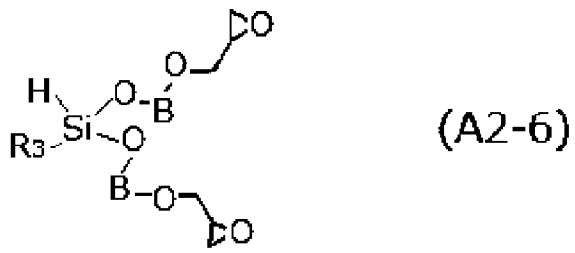
[0058]

[化9]



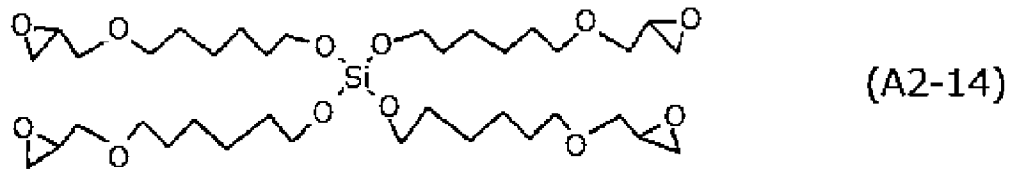
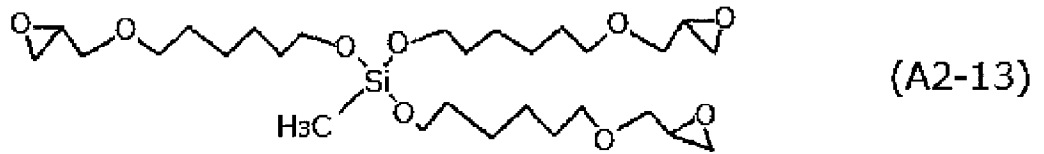
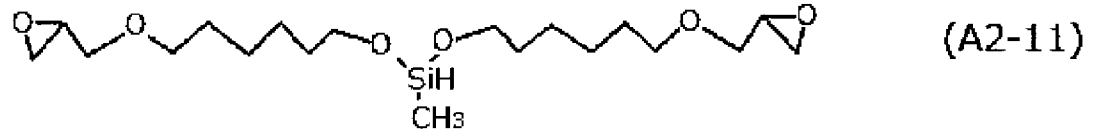
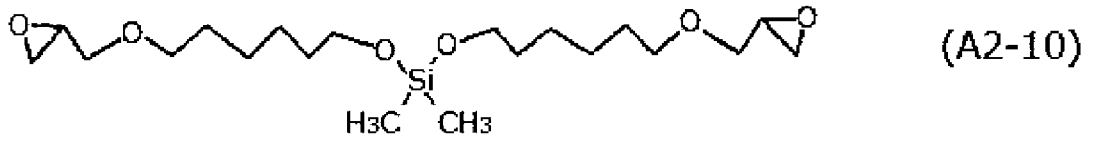
[0059]

[化10]



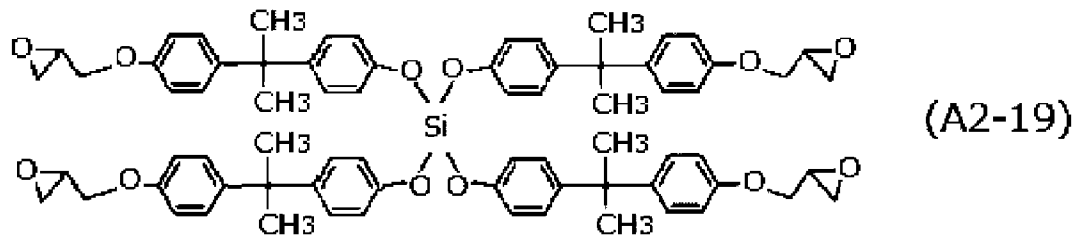
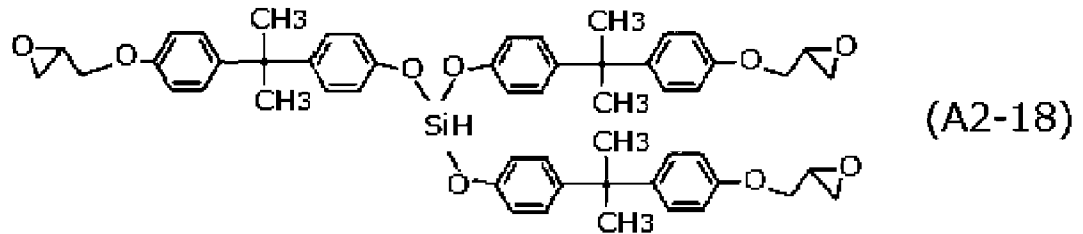
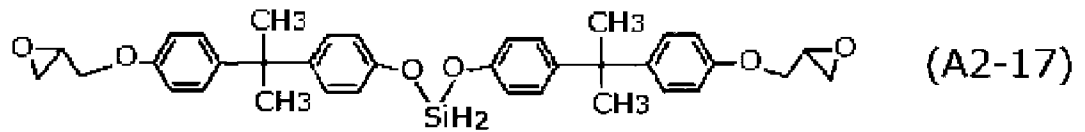
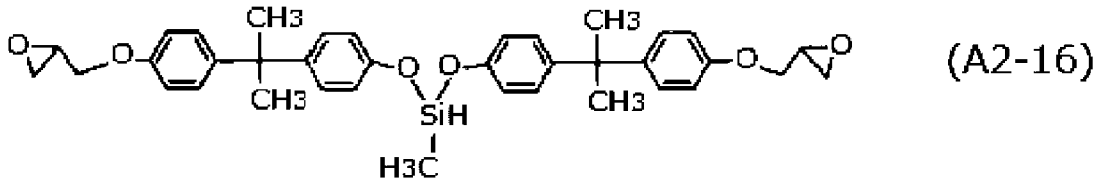
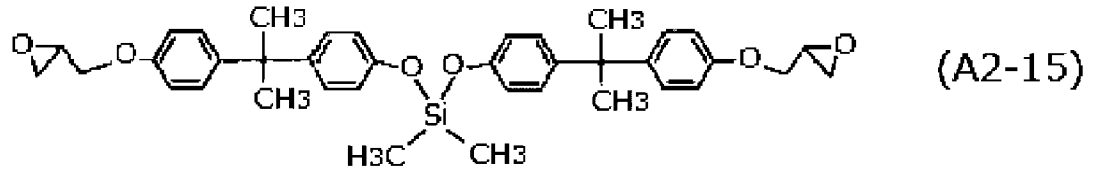
[0060]

[化11]



[0061]

[化12]



[0062] エポキシ化合物 (A 2) は例えば、以下のようにして得ることができる。

まず、1つ又は複数のヒドロキシ基を有する多価アルコールを、塩基の存在下で、エピハロヒドリンで部分的にエポキシ化して、部分的にエポキシ化されたアルコールを得る工程と、当該部分的にエポキシ化されたアルコールを、酸性触媒の存在下で、以下の式 (4-1) ~ (4-3) でそれぞれ示される構造を有する化合物と反応させる工程とを含む。これにより、-Si-O-構造を有するエポキシ化合物 (A 2) を含む混合物を得ることができる。

。

ル基のいずれかを示す。

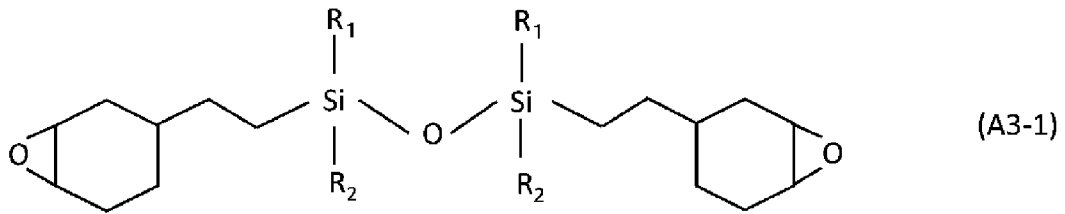
$R_{1,2}$ はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基のいずれかを示す。

wは、1～50の整数である。

[0070] エポキシ化合物(A3)としては、市販品を用いることができ、例えば、両末端型エポキシ変性シリコン「X-22-163」、「X-22-163A」、「X-22-163B」、「X-22-163C」、および「KF-105」(いずれも信越シリコン社製)が挙げられる。

[0071] また、上記のエポキシ化合物(A3)としては、具体的には、以下の式(A3-1)に示されるものが挙げられる。

[0072] [化17]



[0073] 式(A3-1)中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。

なかでも、 R_1 、 R_2 は炭素数1～30のアルキル基であることが好ましく、炭素数1～3のアルキル基であることがより好ましく、メチル基であることがさらに好ましい。

[0074] 上記式(A3-1)で表されるエポキシ化合物としては、市販品を用いることができ、例えば、脂環式エポキシ基含有直鎖シロキサン2官能オリゴマー「X-40-2669」(信越シリコン社製)が挙げられる。

[0075] 以下、本実施形態の-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)の物性について説明する。

[0076] 本実施形態の-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)の重量平均分子量(Mw)は、特に限定されないが、500～10000であることが好

ましく、1000～7000であることがより好ましく、2000～6000であることがさらに好ましい。

本実施形態の-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)の数平均分子量(Mn)は、特に限定されないが、100～5000であることが好ましく、300～3000であることがより好ましく、600～1000であることがさらに好ましい。

[0077] また、本実施形態の-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)の粘度は、1～40,000 mPa・sの範囲であることが好ましい。

[0078] また、本実施形態の-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)は、100～600 g/ミリ当量の範囲のエポキシ当量(EEW)を有することが好ましい。なお、エポキシ当量とは、エポキシ1当量を含有する樹脂の質量(グラム)を意味する。

[0079] 第3実施形態において樹脂組成物は、公知のフェノール系硬化剤を用いることが好適である。

[0080] また、硬化剤としてのフェノール系硬化剤と、-Si-O-構造を有するエポキシ樹脂(A)は、全熱硬化性樹脂中のエポキシ基数(EP)と全フェノール樹脂のフェノール性水酸基数(OH)との当量比(EP)/(OH)が、好ましくは、0.8以上1.6以下、より好ましくは0.9以上1.3以下、さらに好ましくは1.0以上1.2以下となるように調整される。当量比が上記範囲内であると、得られる本実施形態の樹脂組成物の硬化特性を良好にできる。

[0081] 第3実施形態の樹脂組成物に含まれるその他の成分については、後述する。

[0082] <第4実施形態>

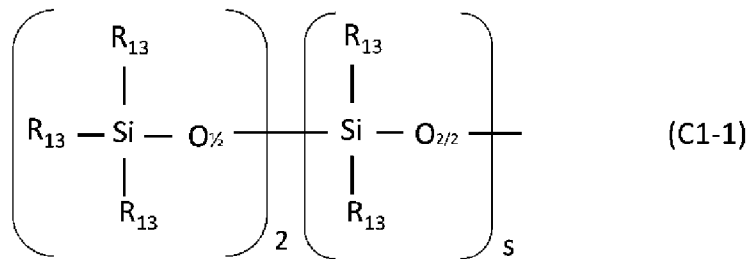
第4実施形態では、熱硬化性樹脂としてケイ素原子に結合したアルケニル基を1分子中に2個以上有するオルガノポリシロキサン(シリコーン樹脂)(C1)を含み、硬化剤(架橋剤)としてケイ素原子に結合した水素原子を1分子中に2個以上有するオルガノヒドロジェンポリシロキサン(C2)

を含む樹脂組成物について説明する。

[0083] (オルガノポリシロキサン (C1))

ケイ素原子に結合したアルケニル基を1分子中に2個以上有するオルガノポリシロキサン (C1) は、直鎖状オルガノポリシロキサンであることが好ましく、ケイ素原子結合アルケニル基を1分子中に好ましくは2~8個有する直鎖状オルガノポリシロキサンである。具体的には、下記式 (C1-1) で示される構造を有するものが挙げられる。

[0084] [化18]



[0085] 式 (C1-1) 中、 R_{13} は、互いに同一または異種の置換もしくは非置換の炭素原子数1~10のアルキル基、炭素原子数6~12のアリール基、または炭素原子数2~10のアルケニル基である。

R_{13} の具体例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、シクロヘキシル基等のアルキル基や、これらアルキル基の炭素原子に結合する水素原子の一部または全部が塩素原子、フッ素原子、臭素原子等のハロゲン原子で置換された、例えば、トリフルオロメチル、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等のフッ素置換アルキル基、ビニル、アリル、ブテニル、ペンテニル、ヘキセニル、シクロヘキセニル基等のアルケニル基、フェニル基等のアリール基などが挙げられる。

これらの中でも、炭素原子数1~6のアルキル基、炭素原子数6~8のアリール基、炭素原子数2~6のアルケニル基が好ましい。

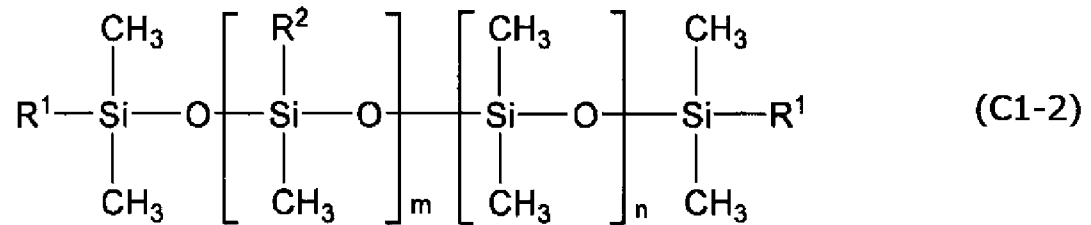
s は5~50, 000の整数であり、好ましくは10~20, 000の整数である。

[0086] オルガノポリシロキサン (C1) 中のアルケニル基については、分子鎖末

端および側鎖のいずれに有していてもよいが、末端にのみアルケニル基を有するものが好ましい。

[0087] また、オルガノポリシロキサン (C 1) のなかでもビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2) の具体的構造としては、例えば下記式 (C 1-2) で表されるものが挙げられる。

[0088] [化19]



[0089] 式 (C 1-2) 中、R¹およびR²は、それぞれ独立して、メチル基またはビニル基であり、少なくとも一方がビニル基である。

[0090] ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2) は、ビニル基含有量が分子内に2個以上のビニル基を有し、かつ0.4モル%以下である第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2') を含んでもよい。第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2') のビニル基量は、0.1モル%以下でもよい。

[0091] また、ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2) は、第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2') とビニル基含有量が0.5~15モル%である第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2'') とを含有してもよい。

[0092] シリコーンゴムの原料である生ゴムとして、第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2') と、ビニル基含有量が高い第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1-2'') とを組み合わせることで、ビニル基を偏在化させることができ、シリコーンゴムの架橋ネットワーク中に、より効果的に架橋密度の疎密を形成することができる。その結果、より効果的に離型フィルムの引裂強度を高めるとともに、寸法安定性、転写性を制御しやすくなる。

[0093] 具体的には、ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2) として、例えば、上記式 (C 1 - 2) において、R¹がビニル基である単位および/またはR²がビニル基である単位を、分子内に2個以上有し、かつ0.4モル%以下を含む第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2') と、R¹がビニル基である単位および/またはR²がビニル基である単位を、0.5~15モル%含む第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2'') とを用いるのが好ましい。

[0094] また、第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2') は、ビニル基含有量が0.01~0.2モル%であるのが好ましい。また、第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2'') は、ビニル基含有量が、0.8~12モル%であるのが好ましい。

[0095] さらに、第1のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2') と第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2'') とを組み合わせて配合する場合、(C 1 - 2') と (C 1 - 2'') の比率は特に限定されないが、例えば、重量比で (C 1 - 2') : (C 1 - 2'') が50 : 50~95 : 5であるのが好ましく、80 : 20~90 : 10であるのがより好ましい。

[0096] なお、第1および第2のビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C 1 - 2') および (C 1 - 2'') は、それぞれ1種のみを用いてもよいし、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

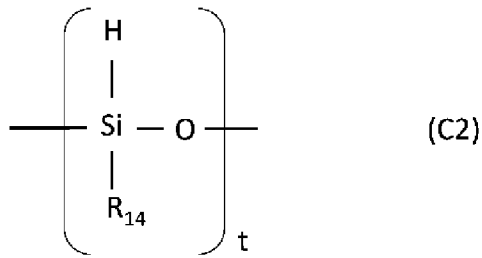
[0097] また、オルガノポリシロキサン (C 1) は、分岐構造を有するビニル基含有分岐状オルガノポリシロキサンを含んでもよい。

[0098] (オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2))

ケイ素原子に結合した水素原子を1分子中に2個以上有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2) は、以下の式 (C 2) で示される構造を有するものが挙げられる。

[0099]

[化20]



[0100] 式(C2)中、 R_{14} はそれぞれ独立して、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、又はこれらの基の炭素原子に結合している水素原子の一部又は全部をヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子等で置換した基である。好ましくは、炭素数1~10の1価炭化水素基であり、アルキル基又はアリール基である。tは2以上の整数であり、好ましくは2~50であり、より好ましくは3~30である。

[0101] オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2)の配合量は、アルケニル基を1分子中に2個以上有するオルガノポリシロキサン(C1)中のアルケニル基のモル数に応じて適宜設定されるが、オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2)中のSi-H基のモル数がシリコーン樹脂(C1)中のアルケニル基の0.5~20の範囲になるように調査せることが好ましく、0.8~5であることがより好ましい。

[0102] オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2)は、直鎖構造を有する直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2-1)と分岐構造を有する分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2-2)とに分類され、これらのうちのいずれか一方または双方を含むことができる。

[0103] 直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C2-1)は、直鎖構造を有し、かつ、Siに水素が直接結合した構造($\equiv \text{Si}-\text{H}$)を有し、ビニル基含有オルガノポリシロキサン(C1-2)のビニル基の他、離型層1の原材料に含まれる成分が有するビニル基とヒドロシリル化反応し、これらの成分を架橋する重合体である。

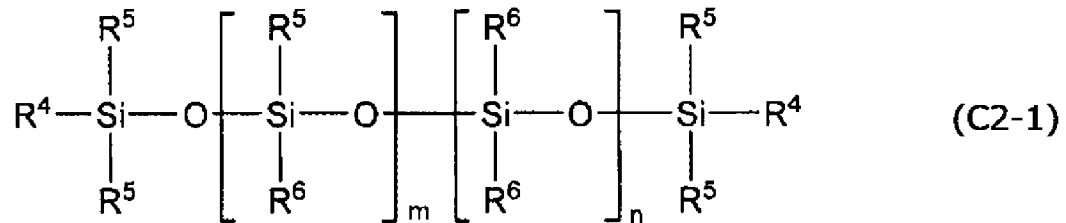
[0104] 直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2-1) の分子量は特に限定されないが、例えば、重量平均分子量が 20000 以下であるのが好ましく、1000 以上、10000 以下であることがより好ましい。

[0105] なお、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2-1) の重量平均分子量は、例えばクロロホルムを展開溶媒とした GPC (ゲル透過クロマトグラフィー) におけるポリスチレン換算により測定することができる。

[0106] また、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2-1) は、通常、ビニル基を有しないものであるのが好ましい。これにより、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2-1) の分子内において架橋反応が進行するのを的確に防止することができる。

[0107] 以上のような直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C 2-1) としては、例えば、以下の式 (C 2-1) で表される構造を有するものが好ましく用いられる。

[0108] [化21]



[0109] 式 (C 2-1) 中、R⁴は炭素数 1~10 の置換または非置換のアルキル基、アルケニル基、アリール基、これらを組み合わせた炭化水素基、またはヒドリド基である。炭素数 1~10 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等が挙げられ、中でも、メチル基が好ましい。炭素数 1~10 のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、ブテニル基等が挙げられる。炭素数 1~10 のアリール基としては、例えば、フェニル基が挙げられる。

[0110] また、R⁵は炭素数 1~10 の置換または非置換のアルキル基、アルケニル基、アリール基、これらを組み合わせた炭化水素基、またはヒドリド基である。炭素数 1~10 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、

プロピル基が挙げられ、中でも、メチル基が好ましい。炭素数1～10のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、ブテニル基等が挙げられる。炭素数1～10のアリール基としては、例えば、フェニル基が挙げられる。

[0111] なお、式(C 2 - 1)中、複数のR⁴は互いに独立したものであり、互いに異なってもよいし、同じであってもよい。R⁵についても同様である。ただし、複数のR⁴およびR⁵のうち、少なくとも2つ以上がヒドリド基である。

[0112] また、R⁶は炭素数1～8の置換または非置換のアルキル基、アリール基、またはこれらを組み合わせた炭化水素基である。炭素数1～8のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等が挙げられ、中でも、メチル基が好ましい。炭素数1～8のアリール基としては、例えば、フェニル基が挙げられる。複数のR⁶は互いに独立したものであり、互いに異なってもよいし、同じであってもよい。

[0113] なお、式(C 2 - 1)中のR⁴、R⁵、R⁶の置換基としては、例えば、メチル基、ビニル基等が挙げられ、分子内の架橋反応を防止する観点から、メチル基が好ましい。

[0114] さらに、m、nは、式(C 2 - 1)で表される直鎖状オルガノヒドロジェンポリシロキサン(C 2 - 1)を構成する繰り返し単位の数であり、mは2～150整数、nは2～150の整数である。好ましくは、mは2～100の整数、nは2～100の整数である。

[0115] なお、直鎖状オルガノヒドロジェンポリシロキサン(C 2 - 1)は、1種のみを単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0116] 分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン(C 2 - 2)は、分岐構造を有するため、架橋密度が高い領域を形成し、シリコーンゴムの系中の架橋密度の疎密構造形成に大きく寄与する成分である。また、上記直鎖状オルガノヒドロジェンポリシロキサン(C 2 - 1)同様、S_iに水素が直接結合した構造(≡S_i-H)を有し、ビニル基含有オルガノポリシロキサン(C

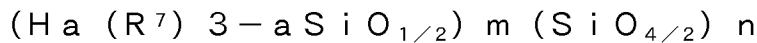
1-2) のビニル基の他、離型層 1 に原材料に含まれる成分のビニル基とヒドロシリル化反応し、これら成分を架橋する重合体である。

[0117] また、分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) の比重は、0.9~0.95 の範囲である。

[0118] さらに、分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) は、通常、ビニル基を有しないものであるのが好ましい。これにより、分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) の分子内において架橋反応が進行するのを的確に防止することができる。

[0119] また、分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) としては、以下の平均組成式 (c) で示されるものが好ましい。

[0120] 平均組成式 (c)



(式 (c) において、 R^7 は一価の有機基、 a は 1~3 の範囲の整数、 m は $H a (R^7)_3 - a Si O_{1/2}$ 単位の数、 n は $Si O_{4/2}$ 単位の数である)

[0121] 式 (c) において、 R^7 は一価の有機基であり、好ましくは、炭素数 1~10 の置換または非置換のアルキル基、アリール基、またはこれらを組み合わせた炭化水素基である。炭素数 1~10 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等が挙げられ、中でも、メチル基が好ましい。炭素数 1~10 のアリール基としては、例えば、フェニル基が挙げられる。

[0122] 式 (c) において、 a は、ヒドリド基 (Si に直接結合する水素原子) の数であり、1~3 の範囲の整数、好ましくは 1 である。

[0123] また、式 (c) において、 m は $H a (R^7)_3 - a Si O_{1/2}$ 単位の数、 n は $Si O_{4/2}$ 単位の数である。

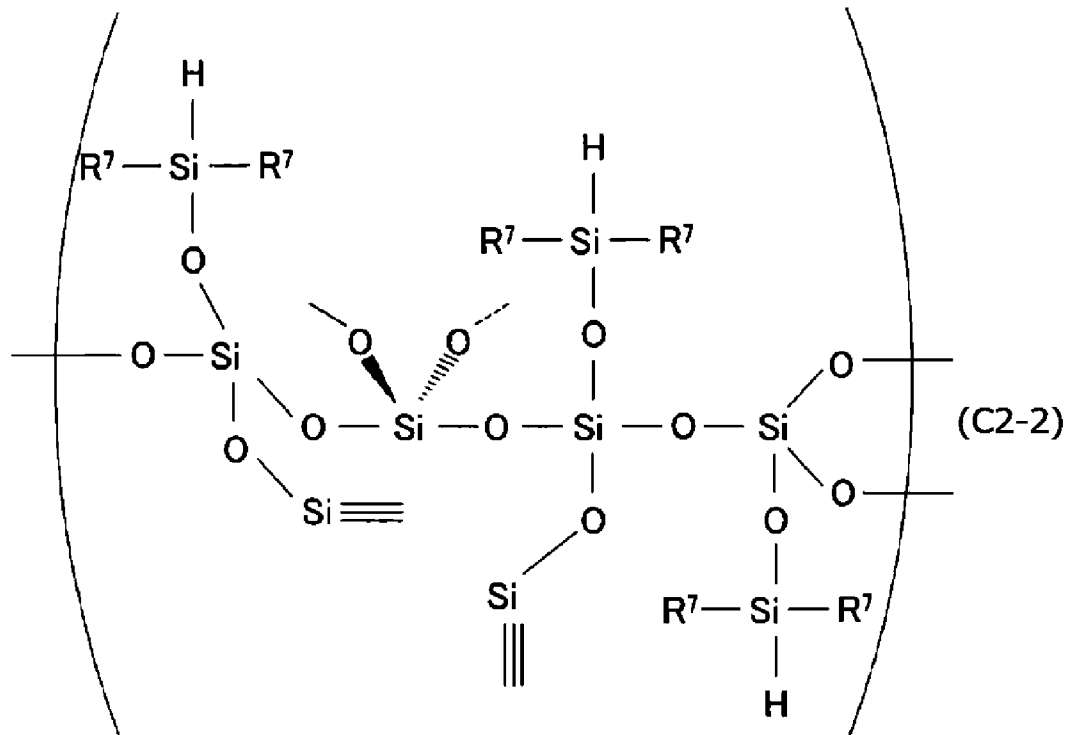
[0124] 分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) は分岐状構造を有する。直鎖状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-1) と分岐状オルガノヒドロジェンポリシロキサン (C 2-2) は、その構造が直鎖状か分岐状かという点で異なり、 Si の数を 1 とした時の Si に結合するア

ルキル基Rの数 (R/Si) が、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C2-1) では1.8~2.1、分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C2-2) では0.8~1.7の範囲となる。

[0125] なお、分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C2-2) は、分岐構造を有しているため、例えば、窒素雰囲気下、1000℃まで昇温速度10℃/分で加熱した際の残渣量が5%以上となる。これに対して、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C2-1) は、直鎖状であるため、上記条件で加熱した後の残渣量はほぼゼロとなる。

[0126] また、分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン (C2-2) の具体例としては、以下の式 (C2-2) で表される構造を有するものが挙げられる。

[0127] [化22]



[0128] 式 (C2-2) 中、R⁷は炭素数1~8の置換または非置換のアルキル基、アリール基、またはこれらを組み合わせた炭化水素基、もしくは水素原子である。炭素数1~8のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、

プロピル基等が挙げられ、中でも、メチル基が好ましい。炭素数1～8のアリール基としては、例えば、フェニル基が挙げられる。R⁷の置換基としては、例えば、メチル基等が挙げられる。

[0129] なお、式(C 2-2)中、複数のR⁷は互いに独立したものであり、互いに異なってもよいし、同じであってもよい。

[0130] また、式(C 2-2)中、「-O-S_i≡」は、S_iが三次元に広がる分岐構造を有することを表している。

[0131] なお、分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-2)は、1種のみを単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0132] また、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-1)と分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-2)において、S_iに直接結合する水素原子(ヒドリド基)の量は、それぞれ、特に限定されない。

ただし、離型層1において、ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン(C 1-1)中のビニル基1モルに対し、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-1)と分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-2)の合計のヒドリド基量が、0.5～5モルとなる量が好ましく、1～3.5モルとなる量がより好ましい。これにより、直鎖状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-1)および分岐状オルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2-2)と、ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン(C 1-1)との間で、架橋ネットワークを確実に形成させることができる。

[0133] (触媒、硬化促進剤)

第4実施形態において、樹脂組成物はさらに触媒を含むことが好ましい。これによりオルガノポリシロキサン(C 1)とオルガノハイドロジェンポリシロキサン(C 2)との硬化を促進できる。

触媒としては、例えば、白金系触媒、ロジウム系触媒、およびパラジウム系触媒が挙げられ、なかでも白金が好ましい。

白金系触媒としては、具体的には、例えば、白金微粉末、塩化白金酸、塩

化白金酸のアルコール溶液、白金-アルケニルシロキサン錯体、白金-オレフィン錯体、および白金-カルボニル錯体、並びにこれらの白金系触媒を熱可塑性樹脂で分散またはカプセル化した触媒が挙げられる。

触媒の添加量は、樹脂組成物全量に対して、0.01~5質量%であることが好ましく、0.02~2質量%であることがより好ましく、0.05~1質量%であることがさらに好ましい。

[0134] 第4実施形態の樹脂組成物に含まれるその他の成分については、後述する。

[0135] 以上、本発明の樹脂組成物の実施形態の一例について説明したが、本発明の樹脂組成物はこれに限定されるものではない。

また、上記各実施形態の樹脂組成物は、さらに、上述の熱硬化性成分のほか、公知の熱硬化性樹脂、公知の硬化剤をさらに含んでもよく、用途などに応じて、他の成分を含んでもよい。

以下、本発明の樹脂組成物が含んでもよい他の成分について説明する。

[0136] [熱硬化性樹脂]

本実施形態の熱硬化性樹脂としては、例えば、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂、シリコーン樹脂、シアネート樹脂、マレイミド樹脂、シアネート樹脂、およびアクリル樹脂の中から選ばれる1種または2種以上が挙げられる。これらの熱硬化性樹脂は、1分子内に反応性官能基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を用いることができ、その分子量や分子構造は特に限定されない。

[0137] 上記エポキシ樹脂は1分子内にエポキシ基を2個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般を用いることができ、その分子量や分子構造は特に限定されない。

エポキシ樹脂は、具体的に、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂等のビスフェノール

ール型エポキシ樹脂；N，N-ジグリシジルアニリン、N，N-ジグリシジルトルイジン、ジアミノジフェニルメタン型グリシジルアミン、アミノフェノール型グリシジルアミンのような芳香族グリシジルアミン型エポキシ樹脂；ハイドロキノン型エポキシ樹脂；ビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン型エポキシ樹脂；トリフェノールメタン型エポキシ樹脂；トリフェノールプロパン型エポキシ樹脂；アルキル変性トリフェノールメタン型エポキシ樹脂；トリアジン核含有エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂；ナフトール型エポキシ樹脂；ナフタレン型エポキシ樹脂；ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂；フェニレンおよび／またはビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、フェニレンおよび／またはビフェニレン骨格を有するナフトールアラルキル型エポキシ樹脂等のアラルキル型エポキシ樹脂等、またはビニルシクロヘキサジエンジオキソド、ジシクロペンタジエンオキソド、アリサイクリックジエポキシ-アジペイド等の脂環式エポキシ等の脂肪族エポキシ樹脂の中から選ばれる1種または2種以上が挙げられる。

[0138] 当該熱硬化性樹脂の含有量が樹脂組成物全量に対して、1質量%以上50質量%以下であることが好ましく、2質量%以上30質量%以下であることがより好ましく、5質量%以上20質量%以下であることがさらに好ましい。

熱硬化性樹脂の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物の流動性や成型性をより効果的に向上させることができる。また、熱硬化性樹脂の含有量を上記上限値以下とすることにより、硬化性を向上させ、良好な硬化物を得ることができる。

[0139] [硬化剤]

本実施形態の硬化剤は、熱硬化性樹脂の種類に応じて選択され、これと反応するものであれば特に限定されない。硬化剤としては、具体的には、重付加型の硬化剤、触媒型の硬化剤、および縮合型の硬化剤等が挙げられる。

[0140] 硬化剤は、具体的には、フェノール系硬化剤、アミン類、ポリパラオキシ

スチレン等のポリオキシスチレン、ヘキサヒドロ無水フタル酸（HHPA）、メチルテトラヒドロ無水フタル酸（MTHPA）等の脂環族酸無水物、無水トリメリット酸（TMA）、無水ピロメリット酸（PMDA）、ベンゾフェノンテトラカルボン酸（BTDA）等の芳香族酸無水物等を含む酸無水物等、ポリサルファイド、チオエステル、チオエーテル等のポリメルカプタン化合物、イソシアネートプレポリマー、ブロック化イソシアネート等のイソシアネート化合物、カルボン酸含有ポリエステル樹脂等の有機酸類が挙げられる。

[0141] フェノール系硬化剤は、具体的には、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトールノボラック樹脂、アミノトリアジンノボラック樹脂、ノボラック樹脂、トリスフェニルメタン型のフェノールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂；テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂等の変性フェノール樹脂；フェニレン骨格および／またはビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂、フェニレン骨格および／またはビフェニレン骨格を有するナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールF等のビスフェノール化合物；レゾール型フェノール樹脂等の中から選ばれる1種または2種以上が挙げられる。また、硬化性の点から、フェノール樹脂系硬化剤の水酸基当量は、例えば90g/eq以上250g/eq以下とすることが好適である。

[0142] 上記アミン類としては、具体的には、例えばジエチレントリアミン（DETA）、トリエチレンテトラミン（TETA）、メタキシレンジアミン（MXDA）等の脂肪族ポリアミン、ジアミノジフェニルメタン（DDM）、*m*-フェニレンジアミン（MPDA）、ジアミノジフェニルスルホン（DDSS）等の芳香族ポリアミンのほか、ジシアンジアミド（DICY）、有機酸ジヒドララジド等を含むポリアミン化合物；ヘキサヒドロ無水フタル酸（HHPA）、メチルテトラヒドロ無水フタル酸（MTHPA）等の脂環族酸無水物、無水トリメリット酸（TMA）、無水ピロメリット酸（PMDA）、ベ

ンゾフェノンテトラカルボン酸（BTDA）等の芳香族酸無水物等を含む酸無水物等の中から選ばれる1種または2種以上が挙げられる。

[0143] 当該硬化剤の含有量は、熱硬化性樹脂100質量部に対して、好ましくは5～50質量部であり、より好ましくは10～30質量部である。

[0144] また、熱硬化性樹脂と硬化剤の含有量は、熱硬化性樹脂と硬化剤に応じて適宜設定される。例えば、硬化剤としてのフェノール系硬化剤と、熱硬化性樹脂としてのエポキシ樹脂は、全熱硬化性樹脂中のエポキシ基数（EP）と全フェノール樹脂のフェノール性水酸基数（OH）との当量比（EP）／（OH）は、好ましくは、0.8以上1.6以下、より好ましくは0.9以上1.3以下、さらに好ましくは1.0以上1.2以下となるように調整される。当量比が上記範囲内であると、得られる本実施形態の樹脂組成物の硬化特性を良好にできる。

[0145] 本実施形態の樹脂組成物は、さらに以下の成分を含んでもよい。

[0146] [無機充填材]

本実施形態の樹脂組成物は、無機充填材を含んでもよい。

無機充填材は、硬化物、構造体の用途に応じ、機械的強度を高めたり、耐熱性、難燃性等を付与するために用いられる。

無機充填材としては、具体的には、タルク、焼成クレイ、未焼成クレイ、マイカ、ガラス等のケイ酸塩；酸化チタン、アルミナ、ペーサイト、シリカ等の酸化物；炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ハイドロタルサイト等の炭酸塩；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム等の水酸化物；硫酸バリウム、硫酸カルシウム、亜硫酸カルシウム等の硫酸塩または亜硫酸塩；ホウ酸亜鉛、メタホウ酸バリウム、ホウ酸アルミニウム、ホウ酸カルシウム、ホウ酸ナトリウム等のホウ酸塩；窒化アルミニウム、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化炭素等の窒化物；チタン酸ストロンチウム、チタン酸バリウム等のチタン酸塩等が挙げられる。これらは、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0147] 無機充填材の平均粒径D50は、好ましくは0.01 μm以上75 μm以

下であり、より好ましくは $0.05\ \mu\text{m}$ 以上 $50\ \mu\text{m}$ 以下である。無機充填材の平均粒径を上記範囲内にすることにより、充填性が向上する。平均粒径 $D50$ は、市販のレーザー式粒度分布計による、体積換算（累積 50% ）平均粒径とすることができる。

[0148] 無機充填材の含有量は、用途に応じて適宜設定されるが、樹脂組成物全量に対して、 $10\sim 98$ 質量%であることが好ましく、 $20\sim 95$ 質量%であることがより好ましく、 $40\sim 95$ 質量%であることがさらに好ましい。

無機充填材の含有量を上記下限値以上とすることにより、硬化物の保存性と硬化性を向上させることができる。また、無機充填材の含有量を上記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の良好な流動性が得られ、成形性を効果的に向上させることが可能となる。

[0149] [カップリング剤]

本実施形態の樹脂組成物は、無機充填材を含む場合、カップリング剤を含んでもよい。これにより、無機充填材の凝集を抑制し、良好な流動性を得ることができる。

カップリング剤としては、たとえばエポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン等の各種シラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート類、アルミニウム／ジルコニウム系化合物等の公知のカップリング剤を用いることができる。

[0150] より具体的には、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 β -（3,4-エポキシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アニリノプロピルトリ

メトキシシラン、 γ -アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -[ビス(β -ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β - (アミノエチル) - γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β - (アミノエチル) - γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β - (アミノエチル) - γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ - (β -アミノエチル) アミノプロピルジメトキシメチルシラン、N- (トリメトキシシリルプロピル) エチレンジアミン、N- (ジメトキシメチルシリルイソプロピル) エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、N- β - (N-ビニルベンジルアミノエチル) - γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-トリエトキシシリル-N- (1, 3-ジメチルブチリデン) プロピルアミンの加水分解物等のシラン系カップリング剤；イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス (ジオクチルパイロホスフェート) チタネート、イソプロピルトリ (N-アミノエチル-アミノエチル) チタネート、テトラオクチルビス (ジトリデシルホスファイト) チタネート、テトラ (2, 2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル) ビス (ジトリデシル) ホスファイトチタネート、ビス (ジオクチルパイロホスフェート) オキシアセテートチタネート、ビス (ジオクチルパイロホスフェート) エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ (ジオクチルホスフェート) チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス (ジオクチルホスファイト) チタネート等のチタネート系カップリング剤が挙げられる。これらは、1種を単独で

用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0151] カップリング剤の含有量は、とくに限定されないが、樹脂組成物全体に対して、0.05質量%以上3質量%以下であることが好ましく、0.1質量%以上2質量%以下であることがより好ましい。カップリング剤の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物中における無機充填材の分散性を良好なものとすることができる。また、カップリング剤の含有量を上記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の流動性を良好なものとし、成形性の向上を図ることができる。

[0152] [硬化促進剤]

本実施形態の樹脂組成物は、硬化促進剤を含んでもよい。

硬化促進剤は、典型的には、熱硬化樹脂と硬化剤との反応を促進させるものである。

[0153] 硬化促進剤としては、具体的には、例えば、有機ホスフィン、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、または、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等のリン原子含有化合物；1,8-ジアザビシクロ(5,4,0)ウンデセン-7、イミダゾール等のアミジン系化合物；ベンジルジメチルアミン等の3級アミン、アミジニウム塩、またはアンモニウム塩等の窒素原子含有化合物；フェノール、ビスフェノールA、ノニルフェノール、2,3-ジヒドロキシナフタレン等のフェノール化合物等が挙げられる。

また、上記有機ホスフィンとしては、トリフェニルホスフィン、トリ-*p*-トリルホスフィン、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィン・トリフェニルボラン、1,2-ビス-(ジフェニルホスフィノ)エタン等が挙げられる。これらは、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0154] 硬化促進剤の含有量は、用途に応じて適宜設定されるが、樹脂組成物全量に対して、0.1~5質量%であることが好ましく、0.2~3質量%であることがより好ましい。

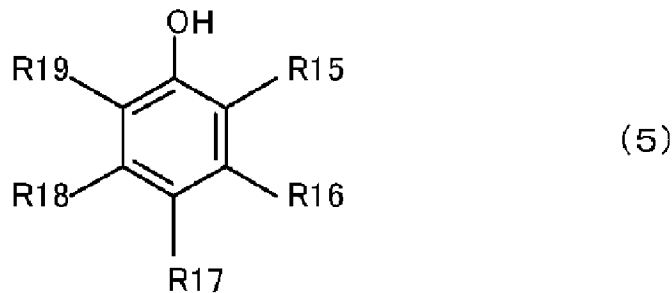
硬化促進剤の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物を適切に硬化しやすくなる。一方、硬化促進剤の含有量を上記上限値以下とすることにより、溶融状態を長くし、より低粘度状態を長くできる。

[0155] [水酸基含有環式化合物]

本実施形態の樹脂組成物は、硬化促進剤を含む場合、芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物（以下「水酸基含有環式化合物」ともいう）を含んでもよい。これにより、硬化促進剤として潜伏性を有しないリン原子含有硬化促進剤を用いた場合であっても、樹脂組成物の溶融混練中における反応を抑えることができ、安定して樹脂組成物を得ることができる。また、水酸基含有環式化合物は、樹脂組成物の溶融粘度を下げ、流動性を向上させる効果も有するものである。

[0156] 水酸基含有環式化合物としては、以下の一般式（5）で表される単環式化合物、または以下の一般式（6）で表される多環式化合物等を用いることができる。これらの化合物は水酸基以外の置換基を有していてもよい。

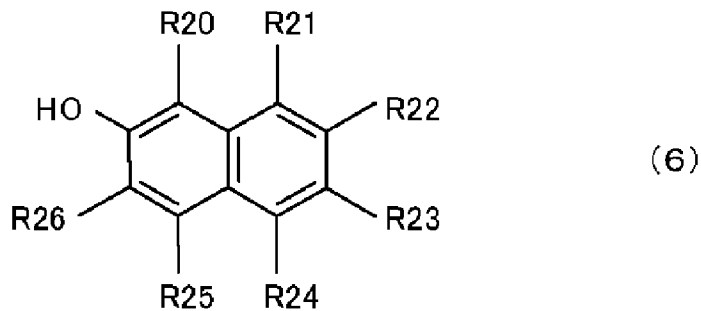
[0157] [化23]



[0158] 一般式（5）において、R15およびR19のいずれか一方は水酸基であり、他方は水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。また、R16、R17およびR18は、水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。

[0159]

[化24]



[0160] 一般式 (6) において、R 2 0 および R 2 6 のいずれか一方は水酸基であり、他方は水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。また、R 2 1、R 2 2、R 2 3、R 2 4 および R 2 5 は、水素原子、水酸基または水酸基以外の置換基である。

[0161] 一般式 (5) で表される単環式化合物の具体例としては、例えばカテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステルまたはこれらの誘導体が挙げられる。

また、一般式 (6) で表される多環式化合物の具体例としては、例えば 1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレンおよびこれらの誘導体が挙げられる。これらのうち、流動性と硬化性の制御のしやすさから、芳香環を構成する 2 個の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物が好ましい。また、混練工程での揮発を考慮した場合、母核は低揮発性で秤量安定性の高いナフタレン環である化合物とすることがより好ましい。この場合、水酸基含有環式化合物を、具体的には、例えば 1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレンおよびその誘導体等のナフタレン環を有する化合物とすることができる。これらの水酸基含有環式化合物は 1 種類を単独で用いても 2 種以上を併用してもよい。

[0162] 水酸基含有環式化合物の含有量は、樹脂組成物の合計値 100 質量%に対して、0.01 質量%以上であることが好ましく、0.03 質量%以上であることがより好ましく、0.05 質量%以上であることがさらに好ましい。水酸基含有環式化合物の含有量が上記範囲内であると、樹脂組成物の十分な

低粘度化と流動性向上効果を得ることができる。また、水酸基含有環式化合物の含有量は、樹脂組成物の合計値100質量%に対して、2質量%以下であることが好ましく、0.8質量%以下であることがより好ましく、0.5質量%以下であることがさらに好ましい。水酸基含有環式化合物の含有量が上記範囲内であると、樹脂組成物の硬化性の低下や硬化物の物性の低下を引き起こす恐れが少ない。

[0163] さらに、本実施形態の樹脂組成物は、さらに、例えば、カーボンブラック等の着色剤；天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸もしくはその金属塩類、パラフィン、酸化ポリエチレン等の離型剤；シリコンオイル、シリコンゴム等の低応力剤；水酸化アルミニウム等の難燃剤；ハイドロタルサイト類またはマグネシウム、アルミニウム、ビスマス、チタン、ジルコニウムから選ばれる元素の含水酸化物等のイオン捕捉剤；チアゾリン、ジアゾール、トリアゾール、トリアジン、ピリミジン等の密着付与剤、酸化防止剤等の各種添加剤を含むことができる。

[0164] 次に、本実施形態の樹脂組成物の製造方法について説明する。

本実施形態の樹脂組成物の製造方法は、特に制限されないが、例えば、熱硬化性成分他任意の各成分を、ミキサー等を用いて混合し、その後、加熱ニーダー、熱ロール、または押し出し機等を用いて90～120℃程度で熔融加熱し混練を行う。次いで、得られた混練物を冷却、粉砕することによって、粉末状・顆粒状の樹脂組成物を得る。樹脂組成物は、必要に応じて、粉砕後にタブレット状に打錠成形してもよく、粉砕後に例えば真空ラミネート成形または圧縮成形によりシート状にしてもよい。

[0165] また例えば、熱硬化性成分他任意の各成分を、超音波分散方式、高圧衝突式分散方式、高速回転分散方式、ビーズミル方式、高速せん断分散方式、または自転公転式分散方式等の各種混合機を用いて溶剤中に溶解、混合、攪拌することによりワニス状の樹脂組成物として調製してもよい。

溶剤としては、具体的には、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、トルエン、酢酸エチル、ヘプタン、シクロヘキサン、シクロ

ヘキサノン、テトラヒドロフラン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、エチレングリコール、セルソルブ系、カルビトール系、アニソール、およびN-メチルピロリドン等が挙げられる。溶剤は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0166] 2. 構造体

本実施形態の構造体は、上記の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備えるものである。硬化物は、本実施形態の樹脂組成物を、100~200℃、10~900秒熱硬化することで得られる。

構造体としては、例えば、自動車・鉄道・船舶・航空機等の輸送機器用の複合部材、半導体チップ、半導体素子、プリント配線基板を備える半導体装置、作業用ロボット等の工場機器用の複合部材、電気回路ディスプレイ装置、情報通信端末、発光ダイオード、物理電池、化学電池等の電子機器、土木および建築用複合部材、スポーツおよびレクリエーション複合部材等、広く適用することができる。なかでも、環境問題に対する対応の重要性等の点から、自動車等の輸送機器用の複合部材、半導体装置等が好適である。

半導体装置は、具体的には、半導体素子と、前記半導体素子を封止する封止材と、を備え、前記封止材が本実施形態の樹脂組成物の硬化物からなるものが挙げられる。封止方法等は特に限定されず公知の方法を用いることができる。

[0167] 3. 解体方法

本実施形態の解体方法は、上記の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を溶媒に浸漬することによって行われる。これにより、硬化物中の架橋が分断・分解され、硬化物が可溶化したり、硬化物の一部が可溶化したりゲル化し、解体することができる。

[0168] 硬化物の浸漬温度は、用途に応じて適宜設定することができるが、例えば、-20~200℃とすることが好ましく、0~150℃とすることがより好ましい。

また、簡便な方法で解体する点からは、硬化物の浸漬は、環境温度下、す

なわち常温下で行ってもよい。これにより、冷却または加熱処理等の特段の作業が不要となる。例えば、溶媒の液温は5～30℃とすることができる。

一方、解体を促進する等の点からは、硬化物の浸漬の際に、加温・加熱処理を加えてもよい。

硬化物の浸漬方法は特に限定されず、硬化物の一部または全体が溶媒に接触すればよい。また、浸漬時間は、硬化物の大きさ等に応じて適宜調整される。

また、硬化物が収容された容器内に溶媒を流し込んでもよく、容器内の溶媒中に硬化物を浸漬・攪拌させてもよい。

[0169] 溶媒としては、硬化物から-Si-O-構造を遊離させるものであればよく、フッ素イオンを含む溶媒であることが好ましい。フッ化イオンを含む溶媒は、フッ素イオンを発生する溶媒であってもよい。

[0170] 本実施形態の溶媒は、例えば、以下のように調製した溶媒とすることができる。

(i) テトラヒドロフラン等の有機溶媒中に、フッ化テトラ-n-ブチルアンモニウム ($n\text{-Bu}_4\text{NF}$) のフッ化合物を作用させることで得られた溶媒。

上記のフッ素化合物は、例えば、アンモニウム、有機アミンまたは有機アンモニウムのフッ化物塩が挙げられ、具体的には、フッ化アンモニウム、フッ化水素酸、酸性フッ化アンモニウム、メチルアミンフッ化水素塩、エチルアミンフッ化水素塩、プロピルアミンフッ化水素塩、フッ化テトラメチルアンモニウム、フッ化テトラエチルアンモニウム、エタノールアミンフッ化水素塩、メチルエタノールアミンフッ化水素塩、ジメチルエタノールアミンフッ化水素塩、ヒドロキシルアミンフッ化水素塩、ジメチルヒドロキシルアミンフッ化水素塩、トリエチレンジアミンフッ化水素塩等の中から選ばれる1種または2種以上が挙げられる。なかでも、好ましくはフッ化アンモニウムおよびフッ化テトラ-n-ブチルアンモニウムであり、より好ましくはフッ化テトラ-n-ブチルアンモニウムである。

(i i) アセトニトリル等の無水の有機溶媒または含水有機溶媒中で鉱酸または有機の強酸を作用させることで得られた溶媒。

(i i i) ジメチルスルホキシド (DMSO) 中、N-ブROMOコハク酸イミド (NBS) を作用させることで得られた溶媒。

(i v) 水またはアルコール等の溶媒中でアルカリ金属の硫酸水素塩を作用させることで得られた溶媒。

上記の硫酸水素塩としては、硫酸水素リチウム、硫酸水素カリウム、硫酸水素ナトリウム等のアルカリ金属塩が使用でき、なかでもカリウム塩およびナトリウム塩が好適である。

(v) 酢酸水溶液を作用させることで得られた溶媒。

(v i) 過剰のフッ化カリウム・2水和物と過剰のテトラブチルアンモニウムクロリドとをアセトニトリル中で反応させることで得られた溶媒。

[0171] これら溶媒の中でも分解速度や廃液処理の観点からは (i) の溶媒を用いることが好ましい。

[0172] 4. リサイクル方法

本実施形態のリサイクル方法は、上記の構造体を構成する材料のリサイクル方法であって、前記構造体を溶媒に浸漬し、前記易解体性熱硬化性樹脂組成物の前記硬化物を解体する工程と、前記構造体から前記材料を回収する工程と、を含む。

これにより、構造体に用いられた材料を再利用することができる。硬化物を解体する工程は、上記解体方法で説明した方法と同様である。

[0173] また、構造体から材料を回収する方法としては、材料の品質を低下させない限りにおいて特に限定されないが、

例えば、硬化物を解体した溶媒中に材料を沈殿させ、濾過等によって材料のみを回収する方法や、溶媒から構造体を取り出した後、解体により脆くなった硬化物とともに構造体を破壊して、材料を回収する方法等が挙げられる。

[0174] 材料としては、上記溶媒に可溶化せず、また化学反応を生じないものであれば特に限定されないが、例えば、金属類などが挙げられる。

[0175] 以上、本発明の実施形態について述べたが、これらは本発明の例示であり、上記以外の様々な構成を採用することもできる。

実施例

[0176] 次に、実施例により本発明を詳しく説明するが、本発明の内容は実施例に限られるものではない。

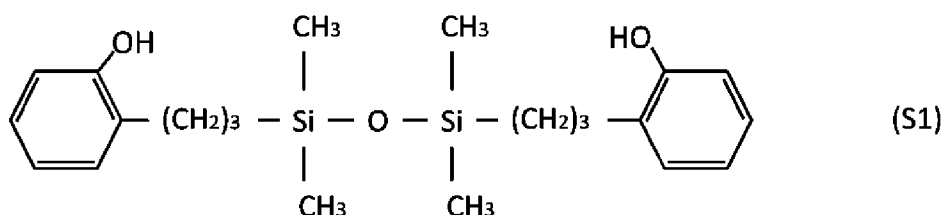
[0177] 1. 合成方法

以下の手順で、各シリルエーテル型フェノール樹脂を合成した。

[0178] [合成例1] (シリルエーテル型フェノールモノマーの合成方法)

温度計、攪拌装置、還流冷却管を備えたフラスコに、2-アシルフェノール56.1g、トルエン80g、Karstedt触媒10 μ Lを仕込み80 $^{\circ}$ Cに昇温した。その後、1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン28.0gを滴下した。その後、80 $^{\circ}$ Cで2時間反応した後、反応液からトルエンを留去した。上記操作により、以下の式(S1)で表されるシリルエーテル型フェノールモノマー(1)89.3gを得た。

[0179] [化25]

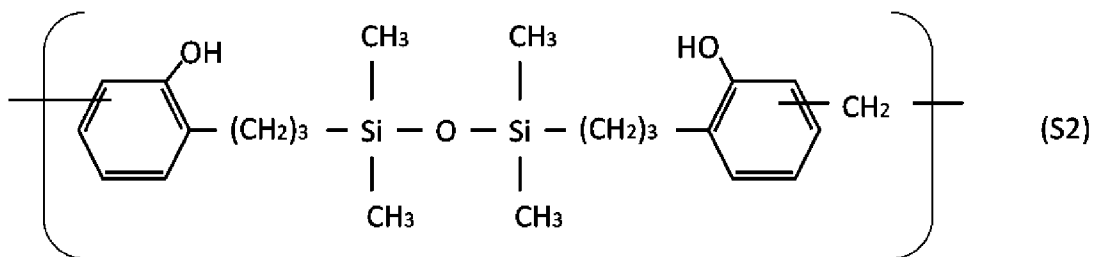


[0180] [合成例2] (シリルエーテル型ノボラック樹脂(1)の合成方法)

温度計、攪拌装置、還流冷却管を備えたフラスコに、得られたシリルエーテル型フェノールモノマー(1)を25.0g、蔞酸0.11gを仕込み、徐々に昇温した。その後、37%ホルマリン溶液4.5gを滴下し、内温100 $^{\circ}$ Cにて5時間反応した。その後、内温120 $^{\circ}$ Cに昇温し、常圧脱水を行い水分を除去した。上記操作により、以下の式(S2)で表されるシリルエーテル型ノボラック樹脂(1)27.4gを得た。

シリルエーテル型ノボラック樹脂(1)は、 $M_n = 780$ 、 $M_w = 2,800$ 、水酸基当量は237g/eqであった。

[0181] [化26]

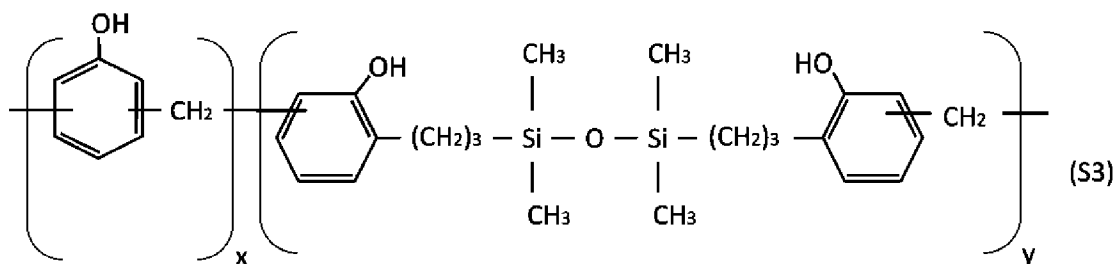


[0182] [合成例3] (シリルエーテル型ノボラック樹脂(2)の合成方法)

温度計、攪拌装置、還流冷却管を備えたフラスコに、シリルエーテル型フェノールモノマー(1) 25.0g、フェノール5.8g、蔞酸0.22gを仕込み、徐々に昇温した。その後、37%ホルマリン溶液9.0gを滴下し、内温100℃にて5時間反応した。その後、内温120℃に昇温し、常圧脱水を行い水分を除去した。更に減圧下で脱水反応を行い、以下の式(S3)で表されるシリルエーテル型ノボラック樹脂(2) 29.5gを得た。

シリルエーテル型ノボラック樹脂(2)は、 $M_n=800$ 、 $M_w=2,300$ 、水酸基当量は $198\text{g}/\text{eq}$ であった。

[0183] [化27]



(式(S3)中、 $x:y$ は約45:55を示す。)

[0184] 2. 樹脂組成物の調製

<比較例1, 2及び実施例1~4>

以下に示す原料Iを用いて、表1に示す固形分割合で各成分を混合し、混合物を得た。混合は、常温でヘンシェルミキサーを用いて行った。その後、得られた混合物を、90~120℃でロール混練し、混練物を得た。得られた混練物を冷却した後、粉碎し、比較例1, 2及び実施例1~4の各樹脂組

成物を得た。

[原料 I]

(熱硬化性樹脂)

・エポキシ樹脂 1 : オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂 (DIC 株式会社製、EPICRON N-670)

・エポキシ樹脂 2 : BPAビスフェノール A 型樹脂 (三菱ケミカル株式会社製、YL6810)

(硬化剤)

・硬化剤 1 : ノボラック型フェノール化合物 (住友ベークライト株式会社製、PR-51470)

・硬化剤 2 : 合成例 2 で得られたシリルエーテル型ノボラック樹脂 (1)

・硬化剤 3 : 合成例 3 で得られたシリルエーテル型ノボラック樹脂 (2)

(硬化促進剤)

・硬化促進剤 1 : トリフェニルホスフィン

(無機充填材)

・無機充填材 1 : 溶融球状シリカ (デンカ株式会社製、FB-60)

(その他)

・着色剤 1 : カーボンブラック (三菱ケミカル株式会社製、カーボン # 5)

・カップリング剤 1 : N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン (東レ・ダウコーニング株式会社製、CF-4083)

・離型剤 1 : カルナウバロウ

・添加剤 : 低応力剤、イオン捕捉剤および難燃剤

[0185] <実施例 5>

以下に示す原料 I I を用いて、シリコーンゴム系硬化性組成物を調整した。

まず、シリコーンゴム 1 (80 質量部)、シリコーンゴム 2 (20 質量部)、カップリング剤 2 (10 質量部)、カップリング剤 3 (0.5 質量部) および水 (5.25 質量部) を混合した混合物を予め混練し、その後、混合

物に無機充填材 2（25 質量部）を加えてさらに混練し、混練物（シリコーンゴムコンパウンド）を得た。

ここで、無機充填材 2 の添加後の混練は、カップリング反応のために窒素雰囲気下、60～90℃の条件下で 1 時間混練する第 1 ステップと、副生成物（アンモニア）の除去のために減圧雰囲気下、160～180℃の条件下で 2 時間混練する第 2 ステップとを経ることで行い、その後、冷却し、20 分間混練した。

続いて、得られた混練物（シリコーンゴムコンパウンド）に、表 1 に示す割合（質量％）となるように、シリコーンゴム 3 および硬化促進剤 2 を加えて、ロールで混練し、実施例 5 のシリコーンゴム系硬化性組成物を得た。

[0186] [原料 1 1]

（シリコーンゴム；オルガノポリシロキサン（C 1））

・シリコーンゴム 1（低ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン（C 1-2'））：合成スキーム 1 により合成。式（C 1-2）で表わされる構造で R 1（末端）のみがビニル基である構造）

・シリコーンゴム 2（高ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン（C 1-2''））：合成スキーム 2 により合成。式（C 1-2）で表わされる構造で R 1 および R 2 がビニル基である構造）

・シリコーンゴム 3（オルガノヒドロジェンポリシロキサン（C 2））モメンティブ社製：「TC-25D」

[0187]（無機充填材）

・無機充填材 2：シリカ微粒子（粒径 7 nm、比表面積 300 m²/g）、日本アエロジル社製、「AEROSIL 300」

（触媒、硬化促進剤）

・硬化促進剤 2：白金化合物、モメンティブ社製：「TC-25A」

（その他）

・シランカップリング剤 2：ヘキサメチルジシラザン（HMDZ）、Gelest 社製、「HEXAMETHYLDISILAZANE（SIH611

0. 1) 」

・シランカップリング剤3：ジビニルテトラメチルジシラザン、Gelest社製、「1, 3-DIVINYLTETRAMETHYLDISILAZANE (SID4612. 0) 」

[0188] <ビニル基含有オルガノポリシロキサン (C1) の合成>

[合成スキーム1：低ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C1-2') の合成]

下記式(7)にしたがって、低ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C1-2') を合成した。

すなわち、Arガス置換した、冷却管および攪拌翼を有する300mLセパラブルフラスコに、オクタメチルシクロテトラシロキサン74. 7g (252mmol)、カリウムシリコネート0. 1gを入れ、昇温し、120°Cで30分間攪拌した。なお、この際、粘度の上昇が確認できた。

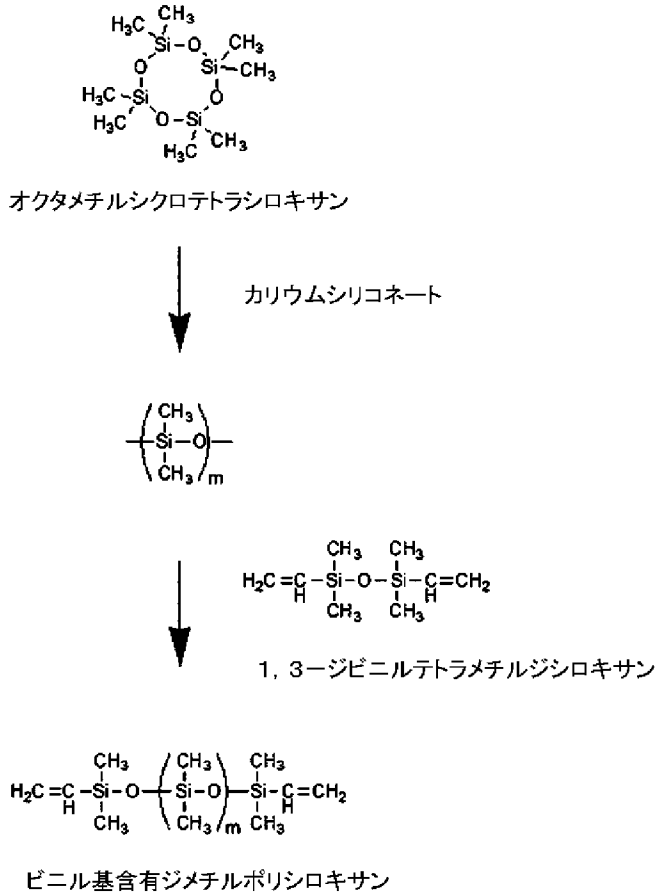
その後、155°Cまで昇温し、3時間攪拌を続けた。そして、3時間後、1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサン0. 1g (0. 6mmol) を添加し、さらに、155°Cで4時間攪拌した。

さらに、4時間後、トルエン250mLで希釈した後、水で3回洗浄した。洗浄後の有機層をメタノール1. 5Lで数回洗浄することで、再沈精製し、オリゴマーとポリマーを分離した。得られたポリマーを60°Cで一晩減圧乾燥し、低ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン (C1-2') を得た ($M_n=2, 2 \times 10^5$ 、 $M_w=4, 8 \times 10^5$)。また、 ^1H-NMR スペクトル測定により算出したビニル基含有量は0. 04モル%であった。

[0189]

[化28]

式(7)



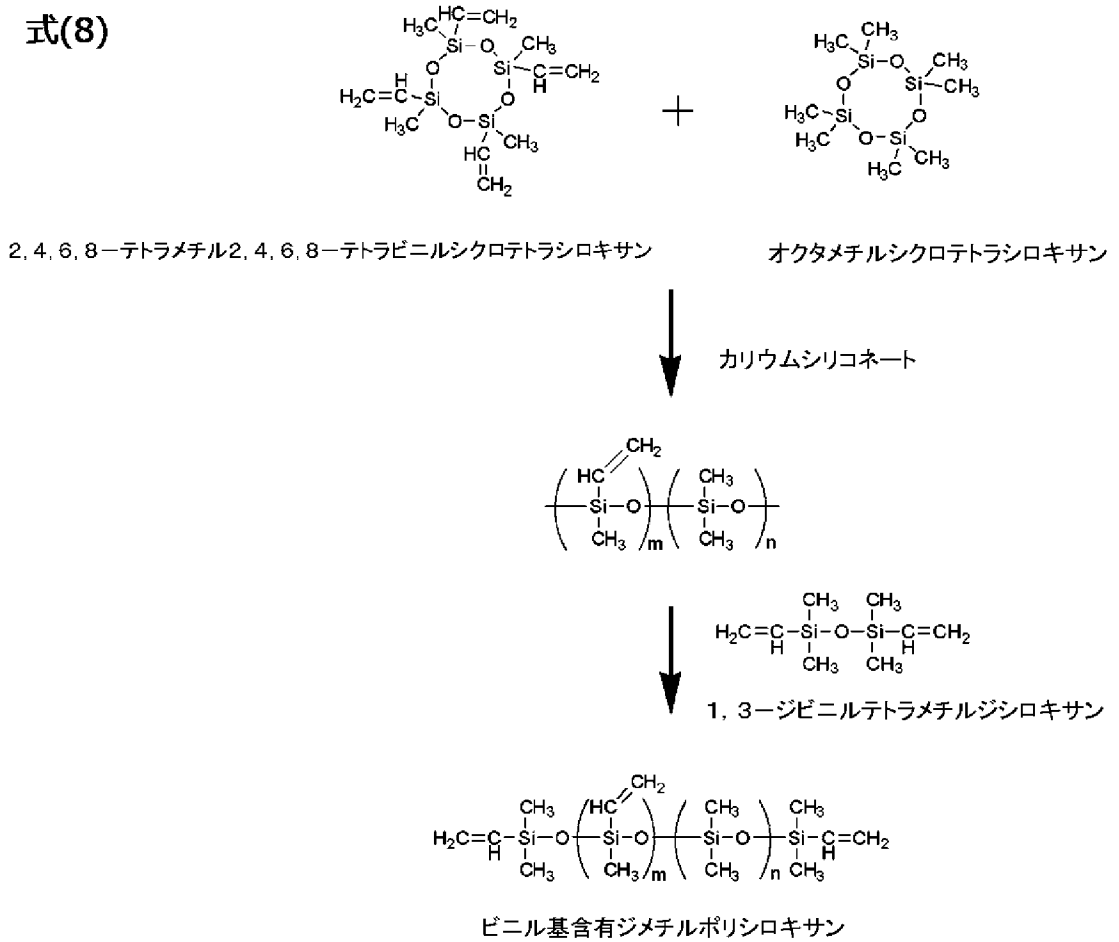
[0190] [合成スキーム2：高ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン（C1-2'）の合成]

上記（C1-2'）の合成工程において、オクタメチルシクロテトラシロキサン74.7g（252mmol）に加えて2,4,6,8-テトラメチル2,4,6,8-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.86g（2.5mmol）を用いたこと以外は、（C1-2'）の合成工程と同様にする
 ことで、下記式（8）のように、高ビニル基含有直鎖状オルガノポリシロキサン（C1-2'）を合成した。（Mn=2,3×105、Mw=5,0×105）。また、H-NMRスペクトル測定により算出したビニル基含有量は0.93モル%であった。

[0191]

[化29]

式(8)



[0192] 3. 樹脂組成物の硬化物中の構造の確認

比較例 1, 2 及び実施例 1 ~ 4 は、得られた各樹脂組成物に対し、金型温度 175℃、硬化時間 2 分の条件で成形し、硬化物を得た。実施例 5 は、得られた樹脂組成物に対し、160℃、10MPa で 20 分間プレスし、シート状に成形すると共に 1 次硬化し、続いて、200℃で 4 時間加熱し、2 次硬化することにより、シート状シリコンゴム硬化物を得た。

各硬化物に対し、熱分解 GC-MS を用いて以下の樹脂組成分析を行った。GC-MS 測定は FT-NMR 装置（日本電子社製、JNM-ECA400）を用いた。

まず、硬化物をヘリウム雰囲気下で 600℃、1min の加熱を行い、発生した成分全てを GC の分離カラムに導入し、液体窒素でトラップした。加

熱終了後、トラップを取り去りその直後にGC-MS測定を開始した。

-Si-O-構造の同定は、それぞれのマススペクトル及びリテンションタイムに基づいて行い、以下の基準に従い判定した。結果を表1に示す。

(基準)

OK：-Si-O-構造を同定できた

N/A：-Si-O-構造を同定できなかった

[0193] 4. 易解体性の評価

以下の溶媒を用いて、解体性の評価を行った。

・溶媒：フッ化テトラブチルアンモニウム (0.5 mol/L、THF溶液)

まず、比較例1, 2及び実施例1~4は、得られた各樹脂組成物を対し、金型温度175℃、硬化時間2分の条件で成形し硬化物(幅10mm、厚み4mm、長さ20mm)を得た。実施例5は、得られた樹脂組成物を対し、160℃、10MPaで20分間プレスし、シート状に成形すると共に1次硬化し、続いて、200℃で4時間加熱し、2次硬化することにより、シート状シリコンゴム硬化物(幅10mm、厚み4mm、長さ20mm)を得た。

次に、得られた硬化物を、容器内の溶媒25mlに浸漬し、23℃で24時間静置した。

その後、シェーカー(約200往復/分)を用いて容器ごと1分間シェークしたのち、容器内の全ての溶液を212μmメッシュのフィルター(JIS標準篩212μm直径100mm)でろ過した。ろ過の可否(フィルターの詰まりの有無)及びフィルター上の残渣を観察し、以下の基準に従い評価した。フィルターの詰まりの程度が低いほど、また残渣が少ないほど、硬化物が溶媒に溶解でき解体性が良好であることを表す。結果を表1に示す。

(基準)

A：フィルターが詰まらず、フィルター上に硬化物の残渣がない又はわずかに硬化物の残渣がある

B : フィルターが詰まらないが、フィルター上に硬化物の残渣が顕著にある
 C : フィルターが直に詰まり、ろ過ができない

[0194] [表1]

		比較例1	比較例2	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
熱硬化性樹脂	エポキシ樹脂1	12.10						
	エポキシ樹脂2		10.77	7.24	8.12	4.37	10.11	
硬化剤	硬化剤1	5.25	6.53					
	硬化剤2			10.06		6.07	14.05	
	硬化剤3				9.18			
シリコーンゴム	シリコーンゴム1							55.55
	シリコーンゴム2							13.89
	シリコーンゴム3							1.77
硬化促進剤	硬化促進剤1	0.30	0.35	0.35	0.35	0.21	0.49	
	硬化促進剤2							0.49
無機充填材	無機充填材1	80.00	80.00	80.00	80.00	87.00	73.00	
	無機充填材2							17.36
その他	着色剤1	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	
	カップリング剤1	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	
	カップリング剤2							6.94
	カップリング剤3							0.35
	離型剤1	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	
	添加剤	1.55	1.55	1.55	1.55	1.55	1.55	
	水							3.65
合計		100	100	100	100	100	100	100
分析	GC-MS -Si-O-構造の同定	N/A	N/A	OK	OK	OK	OK	OK
評価	解体性	C	C	A	A	A	A	A
	溶媒							

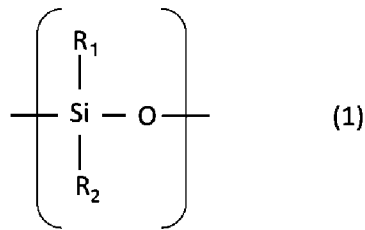
表 1

[0195] この出願は、2022年5月31日に出願された日本出願特願2022-088784号を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

請求の範囲

[請求項1] 熱硬化性成分を含む易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
当該易解体性熱硬化性樹脂組成物を熱硬化した後に得られる硬化物が、以下の式（1）で表される構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[化30]



（式（1）中、 R_1 、 R_2 はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～30の炭化水素基または芳香族基、水酸基、および炭素数1～30のアルコキシル基のいずれかを示す。）

[請求項2] 請求項1に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
前記熱硬化性成分が $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項3] 請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該熱硬化性成分および当該硬化剤がいずれも $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項4] 請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該硬化剤が $-Si-O-$ 構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項5] 請求項3に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
前記硬化剤が、フェノール系硬化剤を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項6] 請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、
前記熱硬化性成分が熱硬化性樹脂および硬化剤を含み、当該熱硬化

性樹脂が-Si-O-構造を有する、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項7]

請求項6に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、シリコン樹脂、シアネート樹脂、ビスマレイミド樹脂、およびアクリル樹脂の中から選ばれる1種または2種以上を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項8]

請求項7に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

前記熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項9]

請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

さらに無機充填材を含み、当該無機充填材の含有量が前記易解体性熱硬化性樹脂組成物全量に対して、10～98質量%である、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項10]

請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

シリルエーテル変性ノボラック樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項11]

請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物であって、

重量平均分子量(Mw)が500～10000のフェノール樹脂を含む、易解体性熱硬化性樹脂組成物。

[請求項12]

請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物を備える、構造体。

[請求項13]

半導体素子と、

前記半導体素子を封止する封止材と、

を備え、

前記封止材が請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物からなる、半導体装置。

[請求項14]

請求項1または2に記載の易解体性熱硬化性樹脂組成物の硬化物の

解体方法であって、

前記易解体性熱硬化性樹脂組成物の前記硬化物を溶媒に浸漬して解体する工程を含む、解体方法。

[請求項15] 請求項14に記載の解体方法であって、
前記溶媒は、フッ素イオンを含む溶媒である、解体方法。

[請求項16] 請求項14に記載の解体方法であって、
前記浸漬は $-20\sim 200^{\circ}\text{C}$ で行われる、解体方法。

[請求項17] 請求項14に記載の解体方法であって、
前記浸漬は $5\sim 30^{\circ}\text{C}$ で行われる、解体方法。

[請求項18] 請求項12に記載の構造体を構成する材料のリサイクル方法であって、

前記構造体を溶媒に浸漬し、前記易解体性熱硬化性樹脂組成物の前記硬化物を解体する工程と、

前記構造体から前記材料を回収する工程と、を含む、リサイクル方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/020245

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C08L 101/06</i> (2006.01)i; <i>C08G 59/40</i> (2006.01)i; <i>H01L 23/29</i> (2006.01)i; <i>H01L 23/31</i> (2006.01)i FI: C08L101/06; C08G59/40; H01L23/30 R		
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) C08L101/06; C08G59/40; H01L23/29; H01L23/31		
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 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
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 A	JP 2022-32813 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 25 February 2022 (2022-02-25) claims, paragraph [0001], examples	1-4, 6-7, 9, 12 5, 8, 10-11, 13-18
X A	JP 2-147619 A (SUMITOMO BAKELITE CO LTD) 06 June 1990 (1990-06-06) claims, p. 1, right column, lines 13-16, examples	1-13 14-18
X A	JP 2008-156475 A (DOW CORNING TORAY CO LTD) 10 July 2008 (2008-07-10) claims, paragraph [0052], examples	1-9, 11-13 10, 14-18
P, X P, A	JP 2022-183437 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 13 December 2022 (2022-12-13) claims, paragraph [0001], examples	1-4, 6-7, 9, 12-13 5, 8, 10-11, 14-18
<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 27 July 2023		Date of mailing of the international search report 08 August 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2023/020245

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2022-32813 A	25 February 2022	(Family: none)	
JP 2-147619 A	06 June 1990	(Family: none)	
JP 2008-156475 A	10 July 2008	US 2010/0140537 A1 claims, paragraph [0066], examples WO 2008/078662 A1 EP 2097483 A1 KR 10-2009-0099059 A CN 101616994 A	
JP 2022-183437 A	13 December 2022	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08L 101/06(2006.01)i; C08G 59/40(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i FI: C08L101/06; C08G59/40; H01L23/30 R		
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）） C08L101/06; C08G59/40; H01L23/29; H01L23/31 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 1971-2023年 日本国実用新案登録公報 1996-2023年 日本国登録実用新案公報 1994-2023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 A	JP 2022-32813 A（信越化学工業株式会社）25.02.2022（2022-02-25） 特許請求の範囲，[0001]，実施例	1-4, 6-7, 9, 12 5, 8, 10-11, 13-18
X A	JP 2-147619 A（住友ベークライト株式会社）06.06.1990（1990-06-06） 特許請求の範囲，第1頁右欄第13-16行，実施例	1-13 14-18
X A	JP 2008-156475 A（東レ・ダウコーニング株式会社）10.07.2008（2008-07-10） 特許請求の範囲，[0052]，実施例	1-9, 11-13 10, 14-18
P, X P, A	JP 2022-183437 A（信越化学工業株式会社）13.12.2022（2022-12-13） 特許請求の範囲，[0001]，実施例	1-4, 6-7, 9, 12-13 5, 8, 10-11, 14-18
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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 27.07.2023		国際調査報告の発送日 08.08.2023
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） 櫛引 智子 4J 3235 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2023/020245

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2022-32813 A	25.02.2022	(ファミリーなし)	
JP 2-147619 A	06.06.1990	(ファミリーなし)	
JP 2008-156475 A	10.07.2008	US 2010/0140537 A1 請求の範囲, [0066], 実施例 WO 2008/078662 A1 EP 2097483 A1 KR 10-2009-0099059 A CN 101616994 A	
JP 2022-183437 A	13.12.2022	(ファミリーなし)	