

(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
2018年10月4日(04.10.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/181719 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 59/30 (2006.01)

府 大阪市 中央区 道修町 1 - 7 - 1 北
浜 T N K ビル Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/013257

(22) 国際出願日: 2018年3月29日(29.03.2018)

(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 2017-072878 2017年3月31日(31.03.2017) JP

(71) 出願人: 住友精化株式会社(SUMITOMO SEIKA
CHEMICALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6750145 兵
庫 県 加 古 郡 播 磨 町 宮 西 3 4 6 番 地
の 1 Hyogo (JP).

(72) 発明者: 福 田 矩 章 (FUKUDA, Noriaki);
〒6750145 兵庫県加古郡播磨町宮西346
番地の1 住友精化株式会社内 Hyogo (JP).
針 ▲ 崎 ▼ 良 太 (HARISAKI, Ryota); 〒6750145
兵庫県加古郡播磨町宮西346番地の1
住友精化株式会社内 Hyogo (JP). 山 本 勝
政 (YAMAMOTO, Katsumasa); 〒6750145 兵庫
県加古郡播磨町宮西346番地の1 住
友精化株式会社内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人三枝国際特許事務
所(SAEGUSA & PARTNERS); 〒5410045 大阪

(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,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(54) Title: EPOXY RESIN, EPOXY RESIN COMPOSITION, AND CURED OBJECT OBTAINED THEREFROM,
USE THEREOF, AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(54) 発明の名称: エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、並びに、その硬化物、用途及び製造方法

(57) Abstract: Provided are: an epoxy resin capable of forming cured objects excellent in terms of low-dielectric charac-
teristics and adhesiveness to metals; an epoxy resin composition; and a cured object obtained therefrom, a use thereof,
and a production method therefor. The epoxy resin comprises: (A) a structural unit derived from a hydrosilylated organic
compound and formed by removing a hydrogen atom from the hydrosilyl group; (B) a structural unit derived from a
compound containing no epoxy group but containing a carbon-carbon unsaturated bond and formed by converting the
carbon-carbon unsaturated bond to a C=C bond or a C-C bond; and (C) a structural unit derived from a compound having
both a carbon-carbon unsaturated bond and an epoxy group and formed by converting the carbon-carbon unsaturated bond
to a C=C bond or a C-C bond.

(57) 要約: 低誘電特性に優れ、かつ、金属に対する接着性にも優れる硬化物を形成することができ
るエポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、並びに、その硬化物、用途及び製造方法が提供される。当
該エポキシ樹脂は、(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物由来の、ヒドロシリル基の水素原子
が除かれて形成される構成単位と、(B) エポキシ基を含有しない炭素-炭素不飽和結合を有する
化合物由来の、炭素-炭素不飽和結合がC=C結合又はC-C結合に変換されて形成される構成
単位と、(C) 炭素-炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物由来の、炭素-炭素不飽和結
合がC=C結合又はC-C結合に変換されて形成される構成単位とを有する。

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：

エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、並びに、その硬化物、用途及び製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂組成物、並びに、その硬化物、用途及び製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子デバイスの高性能化及び軽薄短小化に伴い、伝送信号の高周波化が進んでいる。高周波化に伴い、プリント配線板及び半導体封止材に使用する材料に対して、高周波領域での低誘電化が強く求められている。当該分野においては、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂が基板材料や封止材として広く用いられている。

[0003] このため、低誘電特性を有するエポキシ樹脂及び当該樹脂を含む組成物を得ることを目的として、開発が行われてきている。例えば、特許文献1及び2にはジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂及び当該樹脂を有する組成物が開示されている。また、特許文献3にはエポキシ樹脂、活性エステル化合物、及びトリアジン含有クレゾールノボラック樹脂を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物が開示されている。しかし、これらの低誘導特性は十分とはいえない。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平9－48839号公報

特許文献2：特開2013－166941号公報

特許文献3：特開2016－117904号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、低誘電特性に優れ、かつ、金属に対する接着性にも優れる硬化物を、形成することができるエポキシ樹脂組成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

[0006] 本発明者は、上記目的を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、特定の構造を有するヒドロシリル化エポキシ樹脂を用いることで、上記目的を達成できる可能性を見出し、さらに検討を重ねて本発明を完成するに至った。

[0007] 本発明は、例えば、以下の項に記載の主題を包含する。

項 1.

(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物由来の、ヒドロシリル基の水素原子が除されて形成される構成単位と、

(B) 炭素－炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位と、

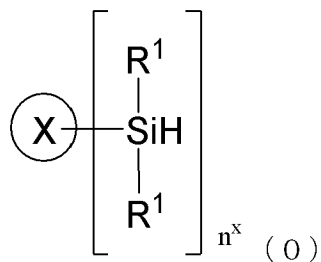
(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位と

を有するエポキシ樹脂。

項 2.

(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物が、式 (O) :

[化1]



(式中、R¹は、同一又は異なって、水素原子、炭素数1～18のアルキル基

、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよく、

X環は、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環を示し、 n^x は1、2、3、又は4を示す。）

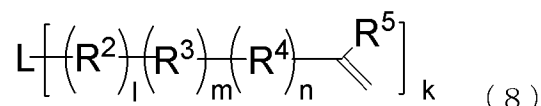
で表される化合物である、

項1に記載のエポキシ樹脂。

項3.

(B) 炭素－炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物が、式(8)：

[化2]



(式中、 R^2 は炭素数1～8のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 R^3 は、 $*-C O O-$ 又は $*-O C O-$ を示し(前記「*」は R^2 又はLと結合する側を示す)。 R^4 は、炭素数1～4のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 R^5 は、メチル基又は水素原子を示す。Lはk個の有機基を示す。lはそれぞれ独立に0または1を示す。mはそれぞれ独立に0または1を示す。nはそれぞれ独立に0または1を示す。kは1～6の整数を示す。なお、 R^2 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。 R^3 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。 R^4 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部

又は全部を異なる基とすることもできる。)

で表される化合物である、

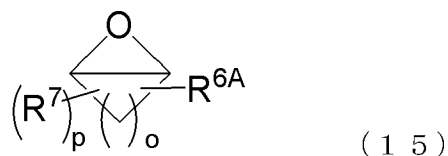
項 1 又は 2 に記載のエポキシ樹脂。

項 4 .

(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物が、式 (1 5)

:

[化3]



(式中、 R^{6A} は、炭素数 2 ～ 18 のアルケニル基もしくはアルキニル基を示し、この基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の原子で置換されていてもよい。 R^7 は炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素数 2 ～ 9 のアルケニル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の原子で置換されていてもよい。 o は 0 ～ 6 の整数を示す。 p は 0 ～ 3 の整数を示す。)

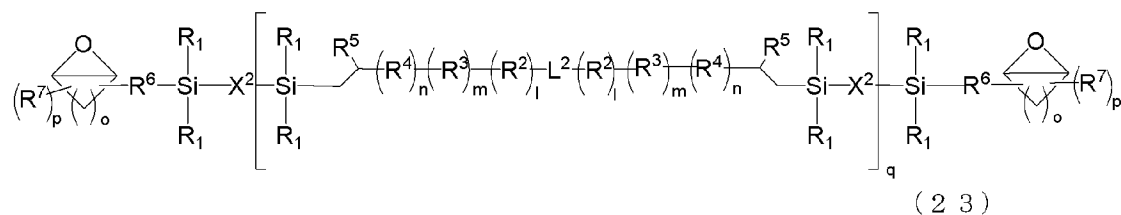
で表される化合物であり、

項 1 ～ 3 のいずれかに記載のエポキシ樹脂。

項 5 .

式 (2 3) :

[化4]



(式中、 R^6 は、炭素数 2 ～ 18 のアルキレン基を示し、この基は、ケイ素原子に直接結合した炭素原子を除く一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子

からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 L^2 は、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、含窒素複素環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環もしくは2個連結した構造を有する環から、2個の水素原子を除いて得られる2価の基を示す。 q は平均値で0より大きく20以下の正数を示す。 X^2 は、前記X環から2個水素原子が除かれて得られる2価の基を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^7 、 l 、 m 、 n 、 o 、及び p は前記と同義である。
)

で表される、項1、2、及び3全てに従属する、項4に記載のエポキシ樹脂。

項6、

項1～5のいずれかに記載のエポキシ樹脂と、硬化触媒及び／又は硬化剤とを含む、エポキシ樹脂組成物。

項7、

項6に記載のエポキシ樹脂組成物の硬化物。

項8、

項6に記載のエポキシ樹脂組成物、又は、請求項7に記載の硬化物を構成要素として含む、半導体封止体、液状封止材、ポッティング材、シール材、プリント基板材料又は複合材料。

項9、

項6に記載のエポキシ樹脂組成物の製造方法であって、前記エポキシ樹脂と、硬化触媒及び／又は硬化剤とを混合する工程を含む、製造方法。

発明の効果

[0008] 本発明に係るエポキシ樹脂組成物は、低誘電特性に優れ、金属に対する接着性にも優れる硬化物を、形成することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]フクレが生じた試験片の一例を示す。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の各実施形態について詳細に説明する。なお、本明細書において、「含む」とは、「本質的にからなる」と、「からなる」をも包含する (The term "comprising" includes "consisting essentially of" and "consisting of.")。

[0011] 本発明のエポキシ樹脂は、(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物由来の、ヒドロシリル基の水素原子が除されて形成される構成単位と、(B) エポキシ基を含有しない炭素－炭素不飽和結合を有する化合物（すなわち、炭素－炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物）由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位と、(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位とを含む。

[0012] 前記エポキシ樹脂は、例えば、(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物、
、
(B) エポキシ基を含有しない炭素－炭素不飽和結合を有する化合物、並びに、
(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物
をヒドロシリル化反応させて得ることができる。

[0013] なお、以下では、(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物、(B) エポキシ基を含有しない炭素－炭素不飽和結合を有する化合物、及び、(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物をそれぞれ「A成分」、「B成分」及び「C成分」と略記することがある。また、(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物由来の、ヒドロシリル基の水素原子が除されて形成される構成単位、(B) エポキシ基を含有しない炭素－炭素不飽和結合を有する化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位、並びに、(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエ

ポキシ基を有する化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位を、それぞれ、A成分構成単位、B成分構成単位、C成分構成単位、と略記することがある。

[0014] 本発明のエポキシ樹脂は、A成分が、B成分及びC成分とヒドロシリル化反応して得られる。このため、本発明のエポキシ樹脂は、炭素－炭素不飽和結合部位がヒドロシリル化された構造を有するエポキシ樹脂であり、ヒドロシリル化エポキシ樹脂とすることができる。なお、本明細書に詳述するように、A成分として挙げられる化合物、B成分として挙げられる化合物、及びC成分として挙げられる化合物は多種にわたる。本発明のエポキシ樹脂は、本明細書に記載されるA成分、B成分、及びC成分の組み合わせを全て包含する。すなわち、本発明のエポキシ樹脂は、本明細書に記載されるA～C成分に相当する化合物のあらゆる組み合わせから得られる多種の各エポキシ樹脂を全て包含する。

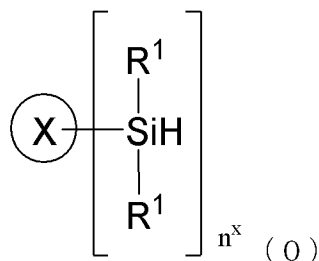
[0015] [(A) ヒドロシリル基を有する有機化合物]

A成分は、ヒドロシリル(Si－H)基を有し、炭素－炭素不飽和結合とヒドロシリル化反応する有機化合物である。ヒドロシリル基の数は1以上であり、例えば1～12(1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、又は12)が好ましく、2、3、又は4がより好ましい。

[0016] 前記A成分は、例えば、B成分及びC成分とヒドロシリル化反応し、当該反応により水素原子が除されることによって、A成分構成単位となる。

A成分としては、環にヒドロシリル基が結合した構造を有する化合物が好ましい。例えば、次式(0)で示される化合物が挙げられる。

[化5]

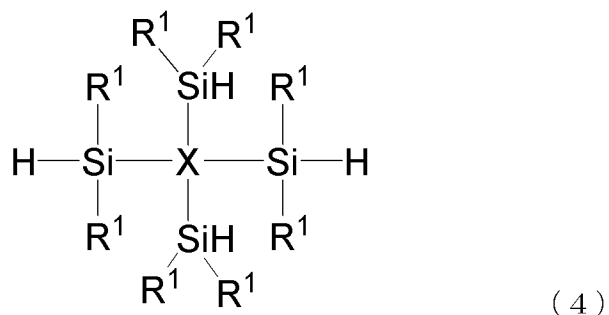
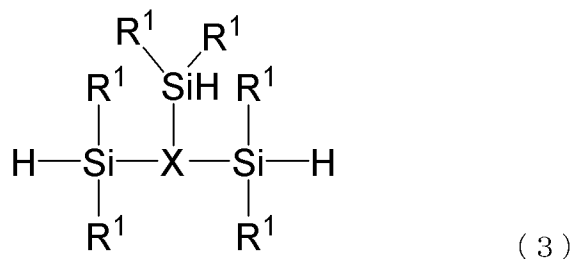
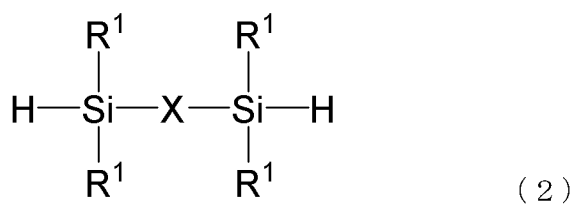
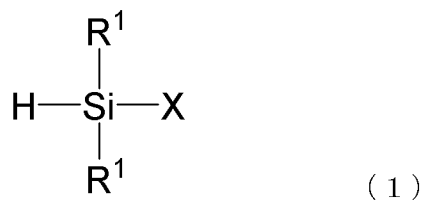


(式中、 R^1 は、同一又は異なって、水素原子、炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよく、

X環は、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環を示し、 n^x は1、2、3、又は4を示す。)

[0017] より具体的には、A成分としては、例えば、式(1)～(4)の構造を有する化合物が挙げられる。

[化6]



(各式中、 R^1 及びX環は前記に同じである。すなわち、 R^1 は、同一又は異なって、水素原子、炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよく、

式中、X環は、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環を示す。)

[0018] 特に制限はされないが、 R^1 は、水素原子を示さない(すなわち、 R^1 は、同一又は異なって、炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示す)場合も好ましい。また、特に式(1)においては、1個の R^1 は水素原子を示し、もう1個の R^1 は、炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示す場合も好ましい。

[0019] また、式(1)におけるXはX環から1個水素原子が除かれて得られる1価の基(X^1 と呼ぶことがある)を、式(2)におけるXはX環から2個水素原子が除かれて得られる2価の基(X^2 と呼ぶことがある)を、式(3)におけるXはX環から3個水素原子が除かれて得られる3価の基(X^3 と呼ぶことがある)を、式(4)におけるXはX環から4個水素原子が除かれて得られる4価の基(X^4 と呼ぶことがある)を、それぞれ示す。

[0020] なお、本明細書では、飽和炭化水素環又は不飽和炭化水素環、もしくは飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環を、まとめて「炭化水素環」と表記することがある。

[0021] 本明細書において、飽和炭化水素環としては、例えば炭素数4～8(4、5、6、7、又は8)の飽和炭化水素環が好ましく、シクロペンタン環、シクロヘキサン環等がより好ましく例示される。

[0022] また、本明細書において、不飽和炭化水素環としては、例えば炭素数4～

8（4、5、6、7、又は8）の不飽和炭化水素環が好ましく、ベンゼン環等がより好ましく例示される。

[0023] また、本明細書において、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環としては、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2、3、又は4個縮合した環が好ましく、2又は3個縮合した環がより好ましい。より具体的には、例えば、デカヒドロナフタレン環、アダマンタン環、ナフタレン環、フェナントレン環、アントラセン環、ピレン環、トリフェニレン環、テトラリン環、1，2，3，4，5，6，7，8－オクタヒドロナフタレン環、ノルボルネン環等が挙げられる。

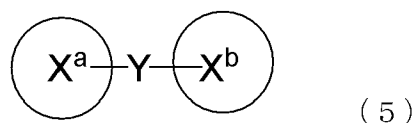
[0024] X環を構成する炭化水素環を構成する炭素原子であって且つケイ素原子が結合していない炭素原子に結合した水素原子は、炭素数1～6（1、2、3、4、5、又は6）のアルキル基、炭素数1～6（1、2、3、4、5、又は6）のアルコキシ基、又はハロゲン原子で置換されていてもよい。

[0025] 本明細書において、炭素数1～6のアルキル基としては、具体的にはメチル基、エチル基、n－プロピル基、イソプロピル基、n－ブチル基、イソブチル基等が好ましく例示できる。また、炭素数1～6のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基等が好ましく例示できる。

[0026] また、前記ハロゲン原子はフッ素原子、塩素原子、臭素原子、又はヨウ素原子であり、好ましくはフッ素原子、塩素原子、又は臭素原子であり、より好ましくはフッ素原子又は臭素原子である。

[0027] また、本明細書において、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環としては、下記式（5）

[化7]



で表される構造が好ましい。

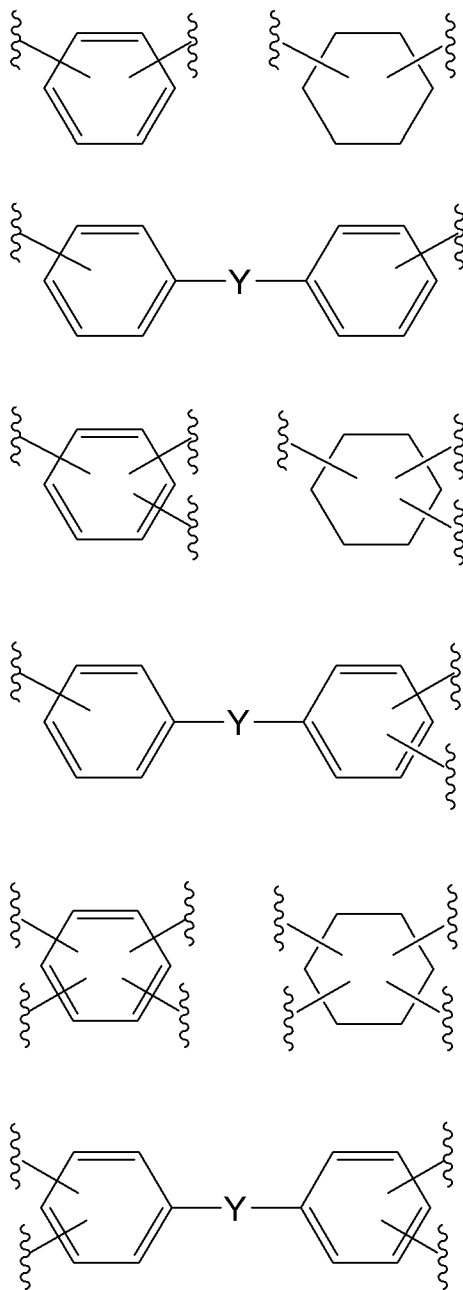
[0028] 式（5）において、X^a環及びX^b環は、同一又は異なって、飽和炭化水素

環又は不飽和炭化水素環を示す。すなわち、 X^a 環及び X^b 環は、両方とも飽和炭化水素環であるか、両方とも不飽和炭化水素環であるか、一方が飽和炭化水素環でもう一方が不飽和炭化水素環である。これらの中でも X^a 環及び X^b 環が、両方とも飽和炭化水素環であるか、両方とも不飽和炭化水素環であることが好ましい。例えば、 X^a 環及び X^b 環は、両方がベンゼン環、両方がシクロヘキサン環、又は一方がベンゼン環でもう一方がシクロヘキサン環、であることが好ましく、両方がベンゼン環であることがより好ましい。

[0029] 式(5)において、Yは、結合手、炭素数1～4のアルキル基で置換されていてもよい炭素数1～6のアルキレン基、酸素原子(—O—)、硫黄原子(—S—)、—SO—、又は—SO₂—を示す。前記炭素数1～6のアルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、n-プロピレン基、n-ブチレン基、n-ヘキシレン基等が例示できる。また、置換基である炭素数1～4のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基等が例示できる。好ましい炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数1～6のアルキレン基としては、—CH(CH₃)—、—C(CH₃)₂—、—CH₂CH(CH₃)CH₂—、—CH₂C(CH₃)₂CH₂—等が例示できる。Yは好ましくは、結合手、酸素原子、メチレン基、ジメチルメチレン基(—C(CH₃)₂—)、—S—、—SO₂—であり、より好ましくは、結合手、ジメチルメチレン基、酸素原子、—SO₂—である。

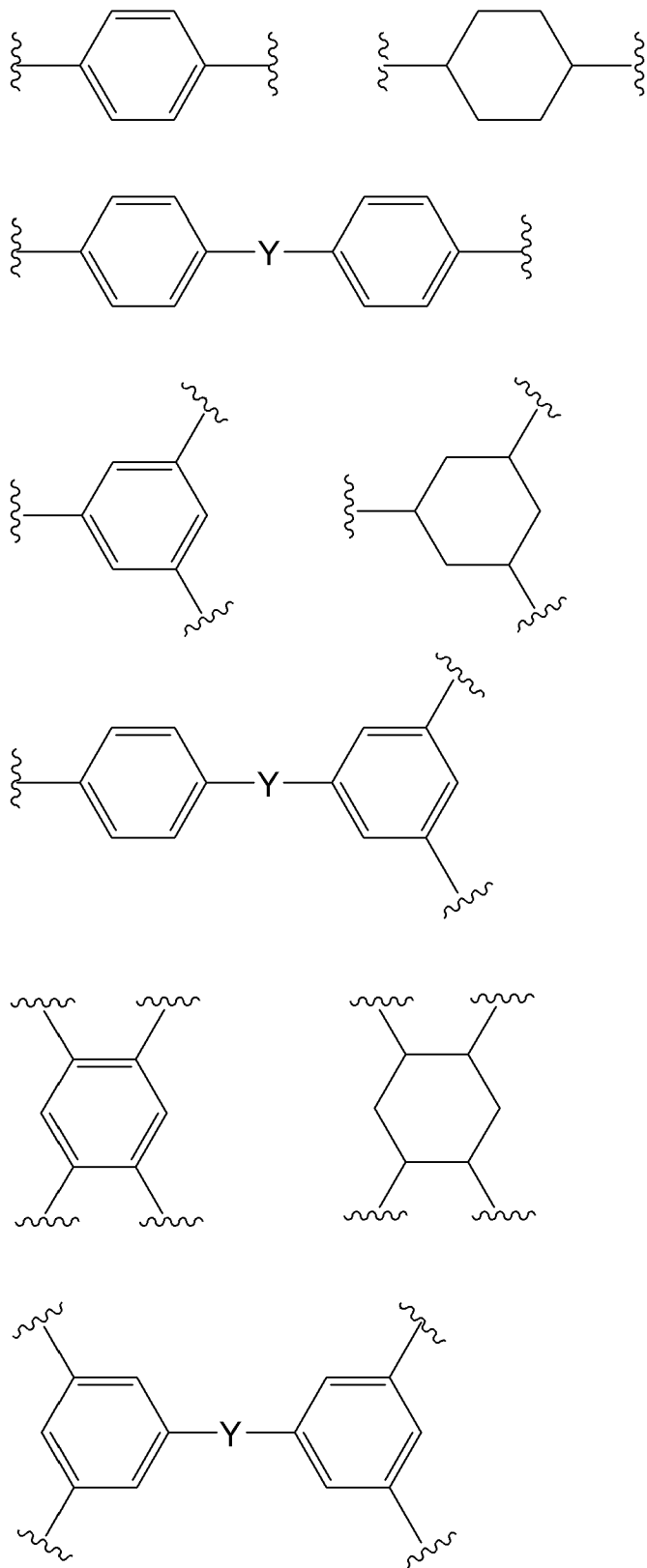
[0030] Xで示される基のうち、2価、3価、又は4価の基(すなわち、 X^2 、 X^3 、又は X^4)としては、具体的には、例えば、以下のいずれかの式で表される基(式中、Yは前記に同じ)が好ましく、

[化8]



中でも、以下のいずれかの式で表される基（式中、Yは前記に同じ）がより好ましい。

[化9]



[0031] 前記 R¹で示される炭素数 1 ~ 18 のアルキル基としては、直鎖又は分岐鎖

状のアルキル基であり、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、ネオペンチル基、*tert*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、2, 2, 4-トリメチルペンチル基、*n*-オクチル基、イソオクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ドデシル基等が挙げられる。好ましくは炭素数1~10のアルキル基であり、より好ましくは炭素数1~6のアルキル基であり、さらに好ましくは炭素数1~3のアルキル基であり、特に好ましくはメチル基である。

[0032] 前記R¹で示されるシクロアルキル基としては、3~8員環のシクロアルキル基が挙げられ、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

[0033] 前記R¹で示されるアリール基としては、単環又は二環のアリール基が挙げられ、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、エチルフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。中でも、フェニル基が好ましい。

[0034] 前記R¹で示されるアラルキル基としては、アリール基（特にフェニル基）で置換された炭素数1~4のアルキル基が挙げられ、例えば、ベンジル基、 α -フェネチル基、 β -フェネチル基、 β -メチルフェネチル基等が挙げられる。

[0035] これら、R¹で示される、炭素数1~18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基は、上述の通り、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。一部の炭素原子が置換される場合、置換される炭素原子数は例えば、1~3個、1又は2個、あるいは1個である。炭素原子は酸素原子又は窒素原子で置換されてよく、酸素原子で置換されることが好ましい。また、置換される炭素原子数が2以上の場合、全て同一の原子（酸素原子又は窒素原子）に置換しても良く、あるいは、一部を異なる原子に置換してもよい。

前記 R¹ は、好ましくは炭素数 1 ～ 3 のアルキル基であり、より好ましくはメチル基である。

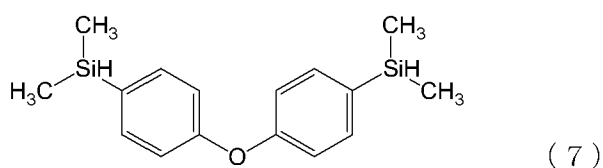
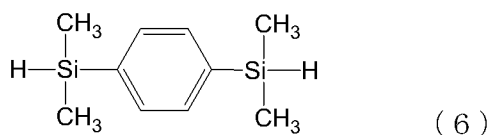
[0036] A 成分としては、より具体的には、ジメチルフェニルシラン、トリフェニルシラン等の分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が 1 個である有機化合物；メチルフェニルシラン、ジフェニルシラン、1, 2-ビス（ジメチルシリル）ベンゼン、1, 4-ビス（ジメチルシリル）ベンゼン、ビス〔（p-ジメチルシリル）フェニル〕エーテル等の分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が 2 個である有機化合物；ノルマルブチルシラン、シクロペンチルシラン等の分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が 3 個である有機化合物等が例示される。その他、A 成分としては、具体的には、ビス（トリメチルシロキシ）メチルシラン、ビス（トリメチルシロキシ）エチルシラン、3H, 5H-オクタメチルテトラシロキサン、1H, 7H-オクタメチルテトラシロキサン、クロロエチルシラン、1, 3-ジフェニルテトラキス（ジメチルシロキシ）ジシラン、1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラエチルシクロテトラシロキサン、ペンタメチルシクロペンタシロキサン、ヒドロシリル基を有する有機変性シリコーン等が例示される。エポキシ樹脂調製に用いられる A 成分は、1 種のみであってもよいし、2 種以上でもよい。換言すれば、エポキシ樹脂に含まれる A 成分構成単位は、1 種のみであってもよいし 2 種以上であってもよい。

[0037] これらの中でも A 成分は、得られるエポキシ樹脂組成物の硬化物が優れた低誘電特性を有しやすい観点から、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が 2 個以上である有機化合物が好ましく、特に、1 分子中に 2 つ又はそれ以上のヒドロシリル基を有する有機化合物であることが好ましい。特に、上記式（2）で示され且つ水素原子の総数が 2 個である化合物、上記式（3）で示され且つ水素原子の総数が 3 個である化合物、及び上記式（4）で示され且つ水素原子の総数が 4 個である化合物、が好ましく、中でも上記式（2）で示され且つ水素原子の総数が 2 個である化合物が好ま

しい。

[0038] より具体的には、A成分としては、下記式（6）に示す構造を有する1,4-ビス（ジメチルシリル）ベンゼン、下記式（7）に示す構造を有するビス〔（p-ジメチルシリル）フェニル〕エーテルが好適である。

[0039] [化10]



[0040] 別の観点から、A成分としては、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が1個である有機化合物であってもよい。この場合、エポキシ樹脂組成物の粘度の調整を行いやすい。

[0041] A成分が、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が1個である有機化合物を含む場合、その含有量は、得られるエポキシ樹脂組成物の硬化物が優れた低誘電特性を有しやすい観点から、A成分の全質量に対して30質量%以下とすることが好ましい。すなわち、A成分として、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が1個である有機化合物を用いる場合、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が1個ではない（例えば2個、3個、又は4個）有機化合物と併用することが好ましく、A成分全量中、分子中に存在するケイ素原子に直接結合した水素原子の総数が1個である有機化合物量は20モル%以下であることが好ましい。

[0042] [(B) エポキシ基を含有しない炭素-炭素不飽和結合を有する化合物]

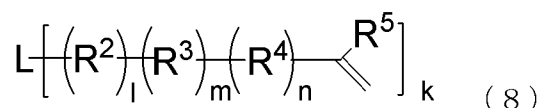
B成分は、炭素-炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物である。当該炭素-炭素不飽和結合がA成分のヒドロシリル基と反応（ヒドロシリル化反応）し得る。

[0043] B成分は、A成分とヒドロシリル化反応して、炭素－炭素不飽和結合がC－C結合又はC＝C結合に変換されてB成分構成単位となる。なお、炭素－炭素不飽和結合がC≡C結合の場合は、C－C結合又はC＝C結合に変換され得、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合の場合は、C－C結合に変換され得る。

[0044] 炭素－炭素不飽和結合としては、炭素－炭素不飽和二重結合（C＝C結合）、炭素－炭素不飽和三重結合（C≡C結合）が挙げられる。これらの中でも、得られるエポキシ樹脂組成物の硬化物が優れた低誘電特性を有しやすく、また原料が入手しやすいという観点から、炭素－炭素不飽和結合は炭素－炭素不飽和二重結合であることが好ましい。また、特にB成分は基：－CH＝CH₂、－CH＝CH（CH₃）、－C≡CH、又は－C≡C－CH₃を有することが好ましい。

[0045] B成分としては、例えば、下記式（8）で表される化合物が挙げられる。

[化11]



[0046] （式中、R²は炭素数1～8のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。R³は、＊－C O O－又は＊－O C O－を示し（前記「＊」はR²又はLと結合する側を示す）。R⁴は、炭素数1～4のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。R⁵は、メチル基又は水素原子を示し、Lはk個の有機基を示す。lはそれぞれ独立に0または1を示す。mはそれぞれ独立に0または1を示す。nはそれぞれ独立に0または1を示す。kは1～6の整数を示す。なお、R²は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。R³は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。R⁴

は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。)

[0047] 前記 R^2 で示される炭素数 1～8 (1、2、3、4、5、6、7、又は 8) のアルキレン基としては、例えばメチレン基、エチレン基、 n -プロピレン基、 n -ブチレン基等が挙げられる。

[0048] 前記 R^4 で示される炭素数 1～4 (1、2、3、又は 4) のアルキレン基としては、例えばメチレン基、エチレン基、 n -プロピレン基、 n -ブチレン基等が挙げられる。

[0049] 前記 L で示される k 価の有機基としては、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、含窒素複素環、並びに、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が 2～6 個縮合した構造を有する環又は飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が 2 個連結した構造を有する環からそれぞれ k 個の水素原子除いて得られる基が挙げられる。

前記有機基 L の価数 k としては、2～6 (2、3、4、5、又は 6) 価が好ましく、2～3 価がより好ましい。

[0050] l はそれぞれ独立に 0 または 1 を示す。 k が 2 以上の場合、 l も 2 以上存在するが、すべての l が同一の値をとることもでき、あるいは、異なる値とすることもできる。好ましくは全ての l が同一の値をとる。 m はそれぞれ独立に 0 または 1 を示す。 k が 2 以上の場合、 m も 2 以上存在するが、すべての m が同一の値をとることもでき、あるいは、異なる値とすることもできる。好ましくは全ての m が同一の値をとる。 n はそれぞれ独立に 0 または 1 を示す。 k が 2 以上の場合、 n も 2 以上存在するが、すべての n が同一の値をとることもでき、あるいは、異なる値とすることもできる。好ましくは全ての l が同一の値をとる。

[0051] 前記有機基 L を構成するアルカン又は環を構成する炭素原子に結合した水素原子は、炭素数 1～6 (1、2、3、4、5、又は 6) の直鎖又は分岐鎖状アルキル基、炭素数 1～6 (1、2、3、4、5、又は 6) の直鎖又は分

岐鎖状アルコキシ基、水酸基、又はハロゲン原子で置換されていてもよい。

前記置換されてもよい水素原子数は、例えば 1～3 個、1 又は 2 個、あるいは 1 個であってよい。また、置換される水素原子数が 2 個以上の場合において、同じ炭素原子に結合した 2 個の水素原子が置換されていてもよいが、置換される水素原子は、一つの炭素原子につき 1 個であることが好ましい。

[0052] 前記有機基 L を構成する直鎖又は分岐鎖状のアルカンとしては、炭素数 1～30 の直鎖又は分岐鎖状のアルカンが好ましい。炭素数は、より好ましくは、2～20、さらに好ましくは 3～10 である。当該アルカンとしては、ブタン、2, 2-ジメチルプロパン、2, 2-ジメチルブタン等が特に好ましい。

[0053] 前記有機基 L を構成する飽和炭化水素環としては、例えば炭素数 4～8 (4、5、6、7、又は 8) の飽和炭化水素環が好ましく、より具体的にはシクロペンタン環、シクロヘキサン環等が特に好ましく例示される。

また、前記有機基 L を構成する不飽和炭化水素環としては、芳香族炭化水素環及び非芳香族の不飽和炭化水素環が挙げられる。前記芳香族炭化水素環としては、例えばベンゼン環が好ましい。前記非芳香族の不飽和炭化水素環としては、例えば炭素数 4～8 (4、5、6、7、又は 8) の不飽和炭化水素環が好ましく、より具体的にはシクロヘキセン環等が特に好ましい。

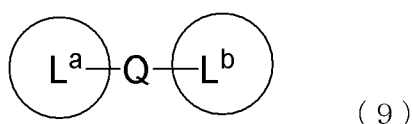
[0054] 前記有機基 L を構成する含窒素複素環としては、例えば、トリアジン環、カルバゾール環等が好ましく例示される。トリアジン環としては、1, 2, 3-トリアジン、1, 2, 4-トリアジン、及び 1, 3, 5-トリアジンが好ましく挙げられ、中でも 1, 3, 5-トリアジンがより好ましい。

また、前記有機基 L を構成する飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が 2～6 個縮合した構造を有する環としては、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が 2、3、又は 4 個縮合した環が好ましく、2 又は 3 個縮合した環がより好ましい。より具体的には、例えば、デカヒドロナフタレン環、アダマンタン環、ナフタレン環、フェナントレン環、アントラセン環、ピレン環、トリフェニレン環、トリシクロデカン環、テトラリン環、1, 2

， 3， 4， 5， 6， 7， 8－オクタヒドロナフタレン環、ノルボルネン環等が挙げられる。

[0055] 前記有機基Lを構成する飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環としては、下記式（9）で表される環が好ましい。

[化12]



[0056] 式（9）において、L^a環及びL^b環は、同一又は異なって、飽和炭化水素環又は不飽和炭化水素環を示す。すなわち、L^a環及びL^b環は、両方とも飽和炭化水素環であるか、両方とも不飽和炭化水素環であるか、一方が飽和炭化水素環でもう一方が不飽和炭化水素環である。これらの中でもL^a環及びL^b環が、両方とも飽和炭化水素環であるか、両方とも不飽和炭化水素環であることが好ましい。例えば、L^a環及びL^b環は、両方がベンゼン環、両方がシクロヘキサン環、又は一方がベンゼン環でもう一方がシクロヘキサン環、であることが好ましく、両方がベンゼン環であることがより好ましい。

[0057] また、式（9）において、Qは、結合手、炭素数1～4のアルキル基で置換されていてもよい炭素数1～6のアルキレン基、酸素原子（－O－）、硫黄原子（－S－）、－SO－、又は－SO₂－を示す。前記炭素数1～6のアルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、n－プロピレン基、n－ブチレン基、n－ヘキシレン基等が例示できる。また、置換基である炭素数1～4のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n－プロピル基、イソプロピル基、n－ブチル基、イソブチル基等が例示できる。好ましい炭素数1～4のアルキル基で置換された炭素数1～6のアルキレン基としては、－CH(CH₃)－、－C(CH₃)₂－、－CH₂CH(CH₃)CH₂－、－CH₂C(CH₃)₂CH₂－等が例示できる。Qは好ましくは、結合手、酸素原子、メチレン基、ジメチルメチレン基（－C(CH₃)₂－）、－S－、－SO₂－であり、より好ましくは、結合手、ジメチルメチレン基、酸素原子、－S

O₂-である。

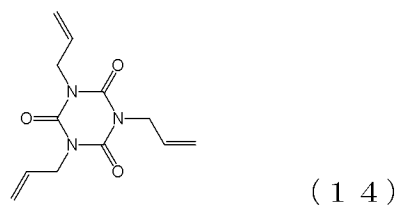
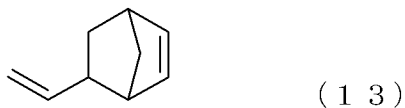
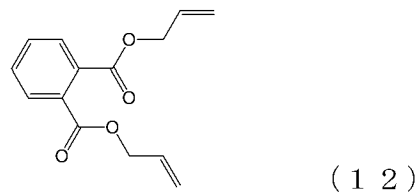
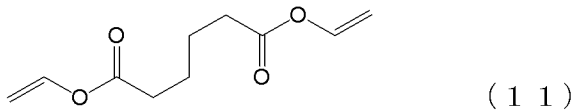
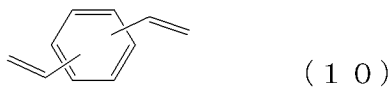
[0058] B成分としては、例えば、ビニルベンゼン、ビニルナフタレン（1-ビニルナフタレン、2-ビニルナフタレン）、ビニルシクロヘキサン、ステアリン酸ビニル、アリルベンゼン、アリルメチルカーボネート、アリルフェニルエーテル等の1分子中に1つの炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物；ジビニルベンゼン（o-、m-、又はp-ジビニルベンゼン）、アジピン酸ジビニル、フタル酸ジアリル、5-ビニル-2-ノルボルネン、ビニルシクロヘキセン（好ましくは4-ビニル-1-シクロヘキセン）、ポリエチレングリコールジアクリレート、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート、2, 2'-ジアリルビスフェノールA等の1分子中に2つの炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物；イソシアヌル酸トリアリル、1, 3, 5-ベンゼントリカルボキシ酸トリアリル、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレートなどの1分子中に3つ又はそれ以上の炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物；等が挙げられる。その他、B成分としては、具体的には、アリルメトキシメチルシラン、1, 4-ビス（ジメチルビニルシリル）ベンゼン、ジビニルメチルフェニルシラン、ジアリルジフェニルシラン、ジシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネン、9, 9-ビス〔4-（2-アクリロイルオキシエトキシ）フェニル〕フルオレン、トリメチロールプロパンジアリルエーテル、ジビニルスルホン、炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機変性シリコーン、ポリエチレングリコールジアクリレート等が例示される。エポキシ樹脂調製に用いられるB成分は、1種のみであってもよいし、2種以上でもよい。換言すれば、エポキシ樹脂に含まれるB成分構成単位は、1種のみであってもよいし2種以上であってもよい。

[0059] これらの中でもB成分は、得られるエポキシ樹脂組成物の硬化物が優れた低誘電特性を有しやすい観点から、分子中に2つ以上の炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物であることが好ましく、分子中に2又は3つの炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物であることがより好ましい。特

に、上記式（８）においてkが2又は3を示す化合物が好ましい。

[0060] より具体的には、B成分としては、下記式（１０）に示すジビニルベンゼン、下記式（１１）に示すアジピン酸ジビニル、下記式（１２）に示すフタル酸ジアリル、下記式（１３）に示す5-ビニル-2-ノルボルネン、下記式（１４）に示すイソシアヌル酸トリアリルが好適である。

[0061] [化13]



[0062] 別の観点から、B成分としては、分子中に1つの炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物であることも好適である。この場合、エポキシ樹脂組成物の粘度の調整を行いやすい。

[0063] B成分が分子中に1つの炭素-炭素不飽和二重結合を有する有機化合物を含む場合がある。その場合、当該有機化合物の含有量は、硬化物が優れた低誘電特性を有しやすい観点から、B成分の全質量に対して30質量%以下と

することが好ましい。B成分として、分子中に1つの炭素－炭素不飽和二重結合を有する有機化合物を含む場合、分子中の炭素－炭素不飽和二重結合が2以上である有機化合物（例えば、上記式（8）においてkが2～6の整数を示す化合物）と併用することが好ましい。また、B成分全量中、分子中に1つの炭素－炭素不飽和二重結合を有する有機化合物の量は20モル%以下であることが好ましい。

[0064] [(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物]

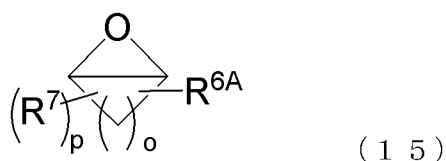
C成分である炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物は、炭素－炭素不飽和結合とエポキシ基を有し、ヒドロシリル（Si－H）基とヒドロシリル化反応する有機化合物であればよい。

C成分は、A成分のヒドロシリル（Si－H）基とヒドロシリル化反応し、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位となる。なお、炭素－炭素飽和結合がC≡C結合の場合は、C－C結合又はC＝C結合に変換されて形成される構成単位となり、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合の場合は、C－C結合に変換されて形成される構成単位となる。

[0065] 炭素－炭素不飽和結合は、炭素－炭素不飽和二重結合、炭素－炭素不飽和三重結合を挙げられる。これらの中でも、硬化物が優れた低誘電特性を有しやすく、原料が入手しやすいという観点から、炭素－炭素不飽和結合は炭素－炭素不飽和二重結合であることが好ましい。

[0066] C成分である炭素－炭素不飽和結合（二重結合）及びエポキシ基を有する化合物としては、例えば、下記式（15）で表される化合物を挙げることができる。

[0067] [化14]



（式（15）中、R^{6A}は、炭素数2～18のアルケニル基もしくはアルキニ

ル基であり、この基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。R⁷は炭素数1～18のアルキル基、炭素数2～9のアルケニル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。oは0～6の整数を示し、pは0～3の整数を示す。）

[0068] 式(15)において、R^{6A}で示される炭素数2～18(2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、又は18)のアルケニル基としては、直鎖又は分岐鎖状のアルケニル基であり、直鎖状が好ましい。具体的には、例えば、ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノルボルネニル基、シクロヘキセニル基等が挙げられる。好ましくは炭素数2～10のアルケニル基であり、より好ましくは炭素数2～8のアルケニル基であり、さらに好ましくは炭素数2～6のアルケニル基であり、特に好ましくはビニル基、アリル基又はブテニル基である。なお、当該アルケニル基は、 α -アルケニル基(すなわち、末端炭素原子とその隣の炭素原子とが二重結合を形成しているアルケニル基)であることが好ましい。

式(15)において、R^{6A}で示される炭素数2～18(2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、又は18)のアルキニル基としては、直鎖又は分岐鎖状のアルキニル基であり、直鎖状が好ましい。具体的には、例えば、エチニル基、プロパルギル基等が挙げられる。好ましくは炭素数2～10のアルキニル基であり、より好ましくは炭素数2～8のアルキニル基であり、さらに好ましくは炭素数2～6のアルキニル基であり、特に好ましくはエチニル基、プロパルギル基等が挙げられる。なお、当該アルキニル基は、 α -アルキニル基(すなわち、末端炭素原子とその隣の炭素原子とが三重結合を形成しているアルキニル基)であることが好ましい。

[0069] 前記炭素数2～18のアルケニル基もしくはアルキニル基は、一部の炭素

原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子（好ましくは酸素原子）で置換されていてもよい。当該一部の炭素原子は、エポキシ環に直接結合していない炭素原子であることが好ましい。また、当該置換されてもよい一部の炭素原子は、1又は複数（例えば2、3、4、5、又は6）個の炭素原子であり得、好ましくは1個の炭素原子である。当該基のうち、炭素数2～18のアルケニル基であって、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子（好ましくは酸素原子）で置換されていてもよい基としては、例えば、炭素数2～9アルケニル－O－炭素数1～8アルキレン－、好ましくは炭素数2～4アルケニル－O－炭素数1～3アルキレン－、より好ましくは炭素数2～4アルケニル－O－炭素数1～2アルキレン－、特に好ましくは炭素数3アルケニル－O－CH₂－が挙げられる。より具体的には、例えば、CH₂=CH－O－CH₂－、CH₂=CH－CH₂－O－CH₂－、CH₂=CH－CH₂－O－(CH₂)₂－、CH₂=CH－(CH₂)₃－O－(CH₂)₄－などが挙げられ、これらの中でもCH₂=CH－CH₂－O－CH₂－（アリルオキシメチル基）が好ましい。また、炭素数2～18のアルキニル基であって、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子（好ましくは酸素原子）で置換されていてもよい基としては、例えば、炭素数2～9アルキニル－O－炭素数1～8アルキレン－、好ましくは炭素数2～4アルキニル－O－炭素数1～3アルキレン－、より好ましくは炭素数2～4アルキニル－O－炭素数1～2アルキレン－、特に好ましくは炭素数3アルキニル－O－CH₂－が挙げられる。より具体的には、例えば、CH≡C－O－CH₂－、CH≡C－CH₂－O－CH₂－、CH≡C－CH₂－O－(CH₂)₂－、CH≡C－(CH₂)₃－O－(CH₂)₄－などが挙げられ、これらの中でもCH≡C－CH₂－O－CH₂－が好ましい。

[0070] 式(15)において、R⁷は同一又は異なって、炭素数1～18のアルキル基、炭素数2～9のアルケニル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラールキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子

からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。当該一部の炭素原子は、3～8員環又はエポキシ環に直接結合していない炭素原子であることが好ましい。また、当該置換されていてもよい一部の炭素原子は、1又は複数（例えば2、3、4、5、又は6）個の炭素原子であり得、好ましくは1個の炭素原子である。

R⁷で示される炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基及びアラルキル基はそれぞれ、上記R¹で示される対応する基と同様のものが挙げられる。

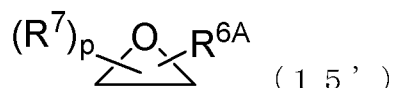
R⁷で示される炭素数2～9のアルケニル基としては、直鎖又は分岐鎖状のアルケニル基であり、例えば、ビニル基、アリル基、2-プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基等が挙げられる。好ましくは炭素数2～4のアルケニル基である。

R⁷として、好ましくは炭素数1～3のアルキル基であり、より好ましくはメチル基又はエチル基である。

[0071] 好ましいoは0～4（0、1、2、3、又は4）であり、より好ましくは0または4である。好ましいpは0又は1であり、より好ましくは0である。

なお、oが0である場合には、式（15）で表される化合物は、次の式（15'）で表される化合物である。

[化15]



（式中、R^{6A}及びR⁷並びにpは前記に同じ。）

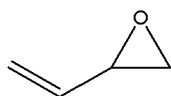
C成分が、oが0である化合物（すなわち、式（15'）で表される化合物）を含む場合、反応が容易に進行する観点からは、B成分は、式（8）にかかる有機基Lが、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、芳香族炭化水素環、非芳香族の不飽和炭化水素環、含窒素複素環、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮

合した環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が２個連結した環から構成されることが好ましく、芳香族炭化水素環、非芳香族の不飽和炭化水素環、含窒素複素環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が２～６個縮合した環から構成されることがより好ましい。

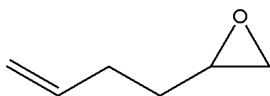
また、C成分が、 α が４である化合物を含む場合、反応が容易に進行する観点からは、B成分は、式（８）にかかる有機基Lが、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、芳香族炭化水素環、含窒素複素環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が２個連結した環から構成されることが好ましく、芳香族炭化水素環、又は含窒素複素環から構成されることがより好ましい。

[0072] C成分としては、具体的には例えば、下記式（１６）に示す１，３－ブタジエンモノエポキシド、下記式（１７）に示す１，２－エポキシ－５－ヘキセン、下記式（１８）に示すグリシジルプロパギルエーテル、下記式（１９）に示す１，２－エポキシ－９－デセン、下記式（２０）に示すアリルグリシジルエーテル、下記式（２１）に示す４－ビニル－１，２－エポキシシクロヘキサン、下記式（２２）に示すリモネンオキシド等が挙げられる。

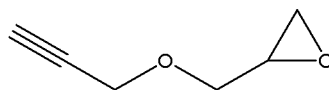
[0073] [化16]



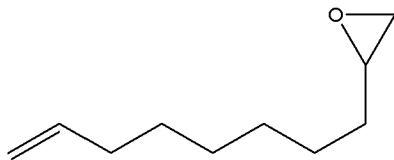
(16)



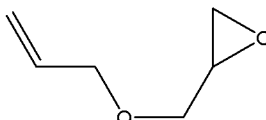
(17)



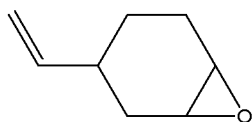
(18)



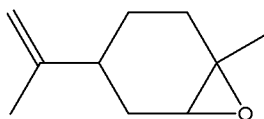
(19)



(20)



(21)



(22)

[0074] その他、C成分としては、具体的には、グリシジルメタクリレート、1-アリル-3,5-ジグリシジルイソシアヌレート、4-ヒドロキシブチルアクリレートグリシジルエーテル等が例示される。

C成分は、1種のみであってもよいし、2種以上を含んでもよい。

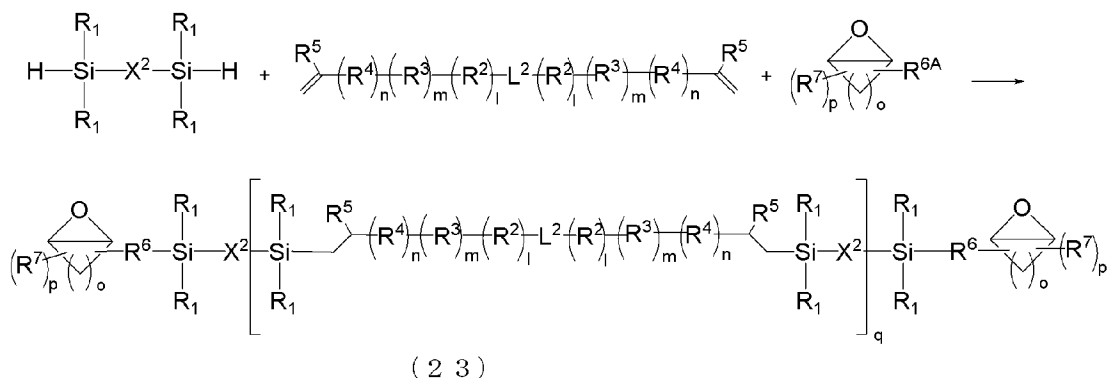
[0075] [ヒドロシリル化エポキシ樹脂]

本発明のエポキシ樹脂（ヒドロシリル化エポキシ樹脂）は、例えば、A成分、B成分及びC成分をヒドロシリル化反応することによって得ることができる。より正確には、ヒドロシリル化エポキシ樹脂は、A成分、B成分及びC成分のそれぞれに由来する構造を骨格として有する（すなわち、A成分構成単位、B成分構成単位、及びC成分構成単位を有する）エポキシ樹脂である。

[0076] 好ましくは、本発明のエポキシ樹脂は、A成分構成単位とB成分構成単位とが交互に1又は複数回（例えば平均1～20回）結合され、その交互結合の各末端部分にC成分構成単位が結合された構造を有するエポキシ樹脂である。

より具体的には、例えば、A成分が2価の化合物（例えば、式（2）で表される化合物）、B成分が2価の化合物（例えば式（8）において $k=2$ である化合物）、C成分が式（15）で表される化合物である場合、次の反応式により式（23）で示されるエポキシ樹脂を製造することができる。

[0077] [化,17]



(式中、R⁶は、炭素数2～18のアルキレン基又は炭素数2～18のアルケニレン基を示し、この基は、ケイ素原子に直接結合した炭素原子を除く一部

の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の原子で置換されていてもよい。 L^2 は、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、含窒素複素環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が 2～6 個縮合した構造を有する環もしくは 2 個連結した構造を有する環から、2 個の水素原子を除いて得られる 2 価の基を示す。 q は平均値で 0 より大きく 20 以下の正数を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^{6A} 、 R^7 、 X^2 、 l 、 m 、 n 、 o 、及び p は前記と同義である。)

[0078] 式 (23) において、 R^6 は、炭素数 2～18 のアルキレン基又は炭素数 2～18 のアルケニレン基を示す。当該アルキレン基は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基であり、好ましくは直鎖状のアルキレン基である。例えば、メチレン基、メチルメチレン基、エチルメチレン基、ジメチルメチレン基、ジエチルメチレン基、ジメチレン基 ($-CH_2CH_2-$)、トリメチレン基 ($-CH_2CH_2CH_2-$)、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基、ウンデカメチレン基、ドデカメチレン基、トリデカメチレン基等が挙げられる。好ましくは炭素数 2～10 のアルキレン基であり、より好ましくは炭素数 2～8 のアルキレン基であり、さらに好ましくは炭素数 2～6 のアルキレン基であり、特に好ましくは炭素数 2～5 のアルキレン基である。また、当該アルケニレン基は、直鎖又は分岐鎖状のアルケニレン基であり、好ましくは直鎖状のアルケニレン基である。例えば、ビニレン基、1-プロペニレン基、2-プロペニレン基、1-ブテニレン基、2-ブテニレン基、1-ペンテニレン基、2-ペンテニレン基、1-ヘキセニレン基、2-ヘキセニレン基、1-オクテニレン基等が挙げられる。好ましくは炭素数 2～10 のアルケニレン基であり、より好ましくは炭素数 2～8 のアルケニレン基であり、さらに好ましくは炭素数 2～6 のアルケニレン基であり、特に好ましくは炭素数 2～5 のアルケニレン基である。

[0079] なお、 R^6 としての前記炭素数 2～18 のアルキレン基又は炭素数 2～18

のアルケニレン基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子（好ましくは酸素原子）で置換されていてもよい。当該一部の炭素原子は、ケイ素原子及び3～8員環又はエポキシ環のいずれにも直接結合していない炭素原子であることが好ましい。また、当該置換されていてもよい一部の炭素原子は、1又は複数（例えば2、3、4、5、又は6）個の炭素原子であり得、好ましくは1個の炭素原子である。

[0080] 当該基としては、具体的には、 R^6 のケイ素原子に結合する側を（*）とした場合に、例えば、（*）-炭素数2～9のアルキレン-O-炭素数1～8のアルキレン-、好ましくは（*）-炭素数2～4のアルキレン-O-炭素数1～3のアルキレン-、より好ましくは（*）-炭素数2～4のアルキレン-O-炭素数1～2のアルキレン-、特に好ましくは（*）-炭素数3のアルキレン-O-メチレン-が挙げられる。また例えば、（*）-炭素数2～9のアルケニレン-O-炭素数1～8のアルキレン-、好ましくは（*）-炭素数2～4のアルケニレン-O-炭素数1～3のアルキレン-、より好ましくは（*）-炭素数2～4のアルケニレン-O-炭素数1～2のアルキレン-、特に好ましくは（*）-炭素数3のアルケニレン-O-メチレン-が挙げられる。

[0081] より具体的には、例えば、（*）- $(CH_2)_2-O-CH_2-$ 、（*）- $(CH_2)_3-O-CH_2-$ 、（*）- $(CH_2)_3-O-(CH_2)_2-$ 、（*）- $(CH_2)_5-O-(CH_2)_4-$ などが挙げられ、これらの中でも（*）- $(CH_2)_3-O-CH_2-$ が好ましい。また例えば、（*）- $CH=CH-O-CH_2-$ 、（*）- $CH=CH-CH_2-O-CH_2-$ 、（*）- $CH=CH-CH_2-O-(CH_2)_2-$ 、（*）- $CH=CH-(CH_2)_3-O-(CH_2)_4-$ などが挙げられ、これらの中でも（*）- $CH=CH-CH_2-O-CH_2-$ が好ましい。

[0082] ヒドロシリル化反応において、A成分、B成分及びC成分の使用量は、例えば、A成分中のヒドロシリル（Si-H）基1モルあたり、B成分中の炭

素－炭素不飽和結合（ただし、芳香環内の炭素－炭素不飽和結合を除く）を 0.05～0.95 モル、好ましくは 0.1～0.9 モル、より好ましくは 0.2～0.8 モルとすることができる。また、C 成分は、A 成分中のヒドロシリル（Si－H）基 1 モルあたり、炭素－炭素不飽和結合（ただし、芳香環内の炭素－炭素不飽和結合を除く）を 0.05～0.95 モル、好ましくは 0.1～0.9 モル、より好ましくは 0.2～0.8 モルとすることができる。なお、本明細書においては、ケイ素原子に結合した水素原子の数をヒドロシリル（Si－H）基の個数として数える。例えば、ケイ素原子に水素が 2 個結合している場合、ヒドロシリル（Si－H）基の個数は 2 個として数える。

q は前述の通り平均値で 0 より大きく 20 以下の正数を示し、好ましくは平均値で 0.1～1.5 の正数を示し、より好ましくは平均値 0.2～1.0 での正数を示す。

[0083] ヒドロシリル化反応は公知の方法で行うことができる、例えば、触媒の存在下、溶媒の存在下又は非存在下でヒドロシリル化反応を実施することができる。

ヒドロシリル化反応は A 成分、B 成分、C 成分を同時に反応させてもよい。また、A 成分と B 成分とを反応させた後、その反応物と C 成分とを反応させてもよく、A 成分と C 成分とを反応させた後、その反応物と B 成分とを反応させてもよい。製法の簡便さおよび反応制御をしやすいとの観点から、A 成分と B 成分とを反応させた後、その反応物と C 成分とを反応させることが好ましい。

[0084] ヒドロシリル化反応では、ヒドロシリル化反応用の公知の触媒を使用することができる。触媒としては、白金カーボン、塩化白金酸、白金のオレフィン錯体、白金のアルケニルシロキサン錯体、白金のカルボニル錯体等の白金系触媒；トリス（トリフェニルフォスフィン）ロジウム等のロジウム系触媒；ビス（シクロオクタジエニル）ジクロロイリジウム等のイリジウム系触媒を例示することができる。触媒は溶媒和物（例えば、水和物、アルコール和

物等)の形態であってもよく、また、エタノール等のアルコールに溶解した溶液の形態であってもよい。

[0085] ヒドロシリル化反応において、触媒の使用量は、触媒としての有効量、すなわち、触媒の機能が発揮される量であればよい。例えば、触媒の使用量は、A成分100質量部に対して0.00001~20質量部であり、好ましくは0.0005~5質量部である。

[0086] ヒドロシリル化反応は溶媒を用いなくてもよいが、溶媒を用いることにより、より穏和な条件でヒドロシリル化反応を行うことができる。前記溶媒としては、例えば、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素溶媒；ヘキサン、オクタン等の脂肪族炭化水素溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル系溶媒；エタノール、イソプロパノール等のアルコール系溶媒等が挙げられる。これらの溶媒は単独で又は2種以上組み合わせてもよい。

[0087] ヒドロシリル化反応の温度は、例えば、0℃~150℃であり、好ましくは10℃~120℃である。また、ヒドロシリル化反応の反応時間は、例えば、5分~24時間である。

[0088] ヒドロシリル化反応によって、例えばA成分がB成分及びC成分に反応し、ヒドロシリル化エポキシ樹脂が生成する。

[0089] ヒドロシリル化エポキシ樹脂の重量平均分子量は、500~100000であることが好ましく、1000~50000であることがより好ましく、1000~30000であることがさらに好ましい。ヒドロシリル化エポキシ樹脂の重量平均分子量が500以上であることで、硬化物にしたときにより優れた低誘電特性が発現されやすくなる。さらに、ヒドロシリル化エポキシ樹脂の重量平均分子量が500以上であることで、低分子量のエポキシ樹脂に起因するはんだ耐熱性(耐熱フクレ性)の悪化を抑制することができる。また、ヒドロシリル化エポキシ樹脂の重量平均分子量が100000以下であることで、ヒドロシリル化エポキシ樹脂の溶媒への溶解性及び硬化物にしたときの低誘電特性が損なわれにくい。なお、ここでいう重量平均分子量は、GPC測定にてポリスチレン換算で測定した重量平均分子量をいう。

[0090] [エポキシ樹脂組成物]

本発明のヒドロシリル化エポキシ樹脂と、その他の成分と組み合わせて、これらを含むエポキシ樹脂組成物を調製することができる。その他の成分としては、ヒドロシリル化エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂、硬化触媒、硬化剤、添加剤等が挙げられる。本発明は、当該エポキシ樹脂組成物も包含する。

[0091] 当該エポキシ樹脂組成物は、本発明のヒドロシリル化エポキシ樹脂と、ヒドロシリル化エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂とを含んでもよい。以下、ヒドロシリル化エポキシ樹脂を「第1エポキシ樹脂」、ヒドロシリル化エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を「第2エポキシ樹脂」と表記することがある。

[0092] 前記第2エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレート、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、脂肪族系エポキシ樹脂、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロ型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂等が挙げられる。第2エポキシ樹脂は1種のみであってもよいし、2種以上が組み合わせられていてもよい。

[0093] 本発明のエポキシ樹脂組成物が第1エポキシ樹脂及び第2エポキシ樹脂を含有する場合、本発明の効果が阻害されない範囲であれば、両者の配合割合は、例えば、第1エポキシ樹脂及び第2エポキシ樹脂の全質量に対して、第2エポキシ樹脂の含有割合を99質量%以下とすることができる。第2エポキシ樹脂の含有割合は、好ましくは80～1質量%であり、より好ましくは50～1質量%であり、さらに好ましくは30～1質量%である。

[0094] エポキシ樹脂組成物は、本発明のエポキシ樹脂と、その他の成分として硬化触媒及び／又は硬化剤とを含むものであってもよい。

[0095] エポキシ樹脂組成物に硬化触媒及び／又は硬化剤が含まれる場合、エポキシ樹脂組成物の硬化物を得るための硬化反応速度を高めることができ、また

、得られる硬化物の強度を高めることもできる。

[0096] 前記硬化触媒としては、エポキシ樹脂組成物の硬化物の電気特性を向上させる観点から、イミダゾール化合物、リン系化合物、カチオン硬化触媒等を例示することができる。硬化触媒の具体例としては、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール等のイミダゾール化合物；ジシアンジアミド及びその誘導体；1, 8-ジアザビスクロ（5, 4, 0）-ウンデセン-7, 1, 5-ジアザビスクロ（4, 3, 0）-ノネン-5, 2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、ジメチルアミノピリジン等の第三級アミン；トリフェニルホスフィン、テトラフェニルホスホニウムブロマイド、テトラフェニルホスホニウムテトラ-p-トリルボレート、テトラブチルホスホニウム o , o -ジエチルホスホロジチオエート等のリン系化合物、芳香族スルホニウム塩等のカチオン硬化触媒等が挙げられる。

[0097] 前記硬化触媒の量は、例えば、全エポキシ樹脂100質量部に対して、硬化触媒の量が0.01～10質量部であり、0.1～5質量部であることがより好ましく、0.5～3質量部であることがさらに好ましい。なお、全エポキシ樹脂とは第1エポキシ樹脂及び第2エポキシ樹脂を示し、以下も同様である。

[0098] 前記硬化剤としては、エポキシ樹脂と反応してエポキシ樹脂組成物の硬化物を得ることができるものが好ましい。例えば、硬化剤として、アミン系硬化剤、アミド系硬化剤、酸無水物系硬化剤、フェノール系硬化剤、活性エステル系硬化剤、シアネートエステル系硬化剤、メルカプタン系硬化剤、イソシアネート系硬化剤等を挙げることができる。

[0099] アミン系硬化剤としては、例えば、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン等の鎖状脂肪族アミン；イソフォロンジアミン、メンセンジアミン、ビス（4-アミノシクロヘキシル）メタン、ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、ジアミノジシクロヘキシルメタン等の脂環式アミン；メタフェニレンジアミン、ジアミノ

ジフェニルメタン、ジエチルトルエンジアミン、ジアミノジエチルジフェニルメタン等の芳香族アミン；ベンジルジメチルアミン、トリエチレンジアミン、ピペリジン、2-（ジメチルアミノメチル）フェノール、2, 4, 6-トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、1, 8-ジアザビシクロ（5, 4, 0）-ウンデセン-7等の第二級及び三級アミン等が挙げられる。

[0100] アミド系硬化剤としては、例えば、ジシアンジアミド及びその誘導体、ポリアミド樹脂（ポリアミノアミド等）等が挙げられる。

[0101] 酸無水物系硬化剤としては、例えば、無水マレイン酸、ドデセニル無水コハク酸等の脂肪族酸無水物；無水フタル酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸等の芳香族酸無水物；無水メチルナジック酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、4-メチルヘキサヒドロ無水フタル酸等の脂環式酸無水物等が挙げられる。

[0102] フェノール系硬化剤としては、例えば、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ビフェニル型ノボラック樹脂、トリフェニルメタン型フェノール樹脂、ナフトールノボラック樹脂、フェノールビフェニレン樹脂、フェノールアラルキル樹脂、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、変性ポリフェニレンエーテル樹脂、ベンゾオキサジン環を有する化合物等が挙げられる。

[0103] 活性エステル系硬化剤としては、例えば、1分子中にエポキシ樹脂と反応するエステル基を1個以上有する化合物であり、具体的には、フェノールエステル、チオフェノールエステル、N-ヒドロキシアミンエステル及び複素環ヒドロキシ化合物エステル等が挙げられる。

[0104] シアネートエステル系硬化剤としては、例えば、ノボラック型シアネート樹脂、ビスフェノールA型シアネート樹脂、ビスフェノールE型シアネート樹脂、テトラメチルビスフェノールF型シアネート樹脂等のビスフェノール型シアネート樹脂等が挙げられる。

[0105] メルカプタン系硬化剤としては、例えば、トリメチロールプロパントリス（3-メルカプトプロピオネート）、トリス-〔（3-メルカプトプロピオ

ニルオキシ)－エチル]－イソシアヌレート、ペンタエリスリトールテトラキス(3－メルカプトプロピオネート)、テトラエチレングリコールビス(3－メルカプトプロピオネート)、ペンタエリスリトールテトラキス(3－メルカプトブチレート)、1,4－ビス(3－メルカプトブチリルオキシ)ブタン、トリメチロールプロパントリス(3－メルカプトブチレート)、トリメチロールエタントリス(3－メルカプトブチレート)、ポリサルファイドポリマー等が挙げられる。

[0106] イソシアネート系硬化剤としては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート、1,4－テトラメチレンジイソシアネート、2－メチルペンタン－1,5－ジイソシアネート、リジンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、ノルボルナンジイソシアネート等が挙げられる。

[0107] 硬化剤は、要求される特性を考慮して、1種のみで用いてもよく、あるいは2種以上を併用してもよい。硬化剤としては、酸無水物系硬化剤、フェノール系硬化剤、活性エステル系硬化剤及びアミン系硬化剤のいずれか1種以上を含むことが好ましく、前記硬化剤を選択することにより、電気特性が向上しやすい。

[0108] 本発明のエポキシ樹脂組成物に含まれる硬化剤の量は、例えば、本発明のエポキシ樹脂組成物中のエポキシ基1当量に対して、硬化剤中の反応性官能基量を0.1～5当量とすることができ、0.3～3当量とすることがより好ましく、0.5～2当量とすることがさらに好ましい。

[0109] 本発明のエポキシ樹脂組成物は、その他の添加剤等を含んでいてもよい。添加剤としては、熱可塑性樹脂、フィラーを例示することができる。

[0110] 熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリアセタール樹脂、これらが酸変性された樹脂等が挙げられる。本発明にかかるエポキシ樹脂組成物との相溶性及び耐熱性の観点から、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリフェニ

レンエーテル樹脂、これらが酸変性された樹脂が好ましい。

[0111] フィラーとしては、例えば、シリカ（より具体的には結晶性シリカ、溶融シリカ、球状溶融シリカ等）、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、酸化スズ、窒化珪素、炭化珪素、窒化ホウ素、炭酸カルシウム、珪酸カルシウム、チタン酸カリウム、窒化アルミニウム、酸化インジウム、アルミナ、酸化アンチモン、酸化セリウム、酸化マグネシウム、酸化鉄、スズドーパ酸化インジウム（ITO）等の無機化合物が挙げられる。また、金、銀、銅、アルミニウム、ニッケル、鉄、亜鉛、ステンレス等の金属が挙げられる。また、フィラーとしては、モンモリロナイト、タルク、マイカ、ベーマイト、カオリン、スメクタイト、ゾノライト、バーキュライト、セリサイト等の鉱物が挙げられる。その他のフィラーとしては、カーボンブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブ等の炭素化合物；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物；ガラスビーズ、ガラスフレーク、ガラスバルーン等の各種ガラスなどを挙げることができる。

[0112] 前記フィラーは粉体であってもよく、樹脂中に分散された形態であってもよい。

[0113] 前記フィラーは、エポキシ樹脂組成物又はその硬化物に要求される流動性、耐熱性、低熱膨張性、機械特性、硬度、耐擦傷性及び接着性等の性能を考慮して、単独で、又は複数種を組み合わせ用いることができる。

[0114] その他の添加剤として、例えば、酸化防止剤、無機蛍光体、滑剤、紫外線吸収剤、熱光安定剤、帯電防止剤、重合禁止剤、消泡剤、溶剤、老化防止剤、ラジカル禁止剤、接着性改良剤、難燃剤、界面活性剤、保存安定性改良剤、オゾン老化防止剤、増粘剤、可塑剤、放射線遮断剤、核剤、カップリング剤、導電性付与剤、リン系過酸化物分解剤、顔料、金属不活性化剤、物性調整剤等がエポキシ樹脂組成物に含まれていてもよい。

[0115] 本発明のエポキシ樹脂組成物は、例えば、ヒドロシリル化エポキシ樹脂（第1エポキシ樹脂）と硬化触媒及び／又は硬化剤とを混合する工程を含む方

法によって、製造することができる。ヒドロシリル化エポキシ樹脂と硬化触媒及び／又は硬化剤とを混合する際には、必要に応じて、第2エポキシ樹脂、フィラー等のその他添加剤を配合することができる。ヒドロシリル化エポキシ樹脂と硬化触媒及び／又は硬化剤とは、加温しながら混合することもできる。

[0116] ヒドロシリル化エポキシ樹脂と硬化触媒及び／又は硬化剤とを混合する方法は、例えば、市販の混合機を使用して混合することができる。

[0117] 本発明のエポキシ樹脂組成物を硬化することにより硬化物を得ることができる。

[0118] 例えば、エポキシ樹脂組成物を加熱することにより、エポキシ樹脂組成物の硬化物を得ることができる。硬化温度は、例えば、室温（例えば、20℃）～250℃である。硬化時間は、エポキシ樹脂組成物の成分、濃度及び配合比によって適宜調整でき、例えば、10分～1週間まで設定できる。また、硬化のための加熱は、数段階に分けてもよい。例えば、所定温度で加熱し、その後、さらに温度を上昇させて所定時間加熱するなど、加熱を数段階に分けて硬化物を得てもよい。

[0119] このように得られる硬化物は、優れた電気特性を有し、例えば、低誘電率及び低誘電正接に優れる。さらに、当該硬化物は、金属に対する接着強度も高い。

本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、エポキシ樹脂並びに硬化触媒及び／又は硬化剤（すなわち、エポキシ樹脂＋硬化触媒、エポキシ樹脂＋硬化剤、もしくは、エポキシ樹脂＋硬化触媒＋硬化剤）のみの硬化物の比誘電率（1GHz）が2.5～3.0程度であることが好ましく、2.5～2.8程度であることがより好ましい。また、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、誘電正接（1GHz）が0.001～0.009程度であることが好ましく、0.002～0.008程度又は0.002～0.007程度であることがより好ましい。これらの条件を両方満たすものがより好ましい。

また、同様に、本発明のエポキシ樹脂は、その硬化物が、上記の比誘電率

(1 GHz) 及び／又は誘電正接 (1 GHz) を満たすものが好ましい。

なお、ここでの比誘電率 (1 GHz) 及び誘電正接 (1 GHz) は平行板コンデンサ法により測定される。平行板コンデンサ法による測定は、例えば公知の誘電率測定装置を用いて行うことができる。

[0120] 本発明のエポキシ樹脂組成物は、例えば、半導体封止材、液状封止材、ポッティング材、シール材、プリント基板材料、複合材料等の広範な用途に好適に用いることができる。例えば、これらの各種用途において、電気特性及び金属の接着性を高めるために本発明のエポキシ樹脂組成物を好適に使用することができる。

[0121] また、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、半導体封止材、液状封止材、ポッティング材、シール材、プリント基板材料、複合材料等の構成要素（構成部材）として適用することができる。

実施例

[0122] 以下、実施例により本発明をより具体的に説明する。

[0123] （製造例 1 ～ 10）

以下に記載する、A 成分、B 成分及び C 成分を使用して、ヒドロシリル化エポキシ樹脂を製造した。

[0124] より具体的には、A 成分としては下記 A-1、又は A-2 を、B 成分としては下記 B-1、B-2、B-3 又は B-4 を、C 成分としては下記 C-1 又は C-2 を準備した。

A-1 : 1, 4-ビス (ジメチルシリル) ベンゼン (Gelest 社製)

A-2 : ビス [(p-ジメチルシリル) フェニル] エーテル (Gelest 社製)

B-1 : ジビニルベンゼン (新日鉄住金化学社製)

B-2 : フタル酸ジアリル (東京化成社製)

B-3 : イソシアヌル酸トリアリル (東京化成社製)

B-4 : 5-ビニル-2-ノルボルネン (東京化成社製)

C-1 : 4-ビニル-1, 2-エポキシシクロヘキサン (東京化成社製)

C-2：アリルグリシジルエーテル（大阪ソーダ社製）

[0125] （製造例1）

次のようにして、エポキシ樹脂を調製した。なお、表1に示すように、A成分としてA-1を、B成分としてB-2を、C成分としてC-1を、それぞれ用いた。

A成分及びB成分を、表1に示す量でトルエン20mLに溶解させ、攪拌機、冷却管、温度計及び滴下ロートを備え付けた100mL容の4つ口フラスコを入れた。次いで、白金触媒（エヌ・イーケムキャット社製、Pt-VTS-IPA溶液）20mgを25℃で添加し、40℃で2時間攪拌させた。その後、トルエン20mLに溶解させたC成分を40℃で滴下し、反応液を90℃に維持しながら、4時間攪拌した。反応液の成分を高速液体クロマトグラフィー（HPLC）によって分析し、A成分の消失を確認することにより反応の完了を確認した。その後、トルエンを留去により除去して反応液を濃縮することでエポキシ樹脂1を得た。

得られたエポキシ樹脂1は、微黄色透明液体であった。

[0126] このように取得したエポキシ樹脂1をテトラヒドロフランに溶解させ、GPCにてポリスチレン換算重量平均分子量を測定した。結果を表1に示す。

（製造例2～10）

表1に示す種類及び量のA成分、B成分及びC成分を、製造例1と同様にして反応させた。

反応液の成分を高速液体クロマトグラフィー（HPLC）によって分析し、A成分の消失を確認することにより反応の完了を確認した。その後、トルエンを留去により除去して反応液を濃縮することでエポキシ樹脂2～10を得た（表1）。

得られたエポキシ樹脂2～10は、いずれも微黄色透明液体であった。また、製造例1と同様にして、各エポキシ樹脂の重量平均分子量を測定した。結果を表1に示す。

[0127] （実施例1）

製造例 1 で得られたエポキシ樹脂 1、及び、カチオン硬化触媒（三新化学工業社製、サンエイド S I - 1 0 0 L；硬化触媒 A と表記することがある）を、表 2 に示す割合（質量比）でカップに秤量し、30℃に加温しながら攪拌することで均一混合し、エポキシ樹脂組成物を調製した。

[0128] （実施例 2）

エポキシ樹脂 1 を製造例 3 で得られたエポキシ樹脂 3 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0129] （実施例 3）

エポキシ樹脂 1 を製造例 5 で得られたエポキシ樹脂 5 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0130] （実施例 4）

製造例 1 で得られたエポキシ樹脂 1、硬化触媒 2 - エチル - 4 - メチルイミダゾール（三菱化学社製、EMI 24；硬化触媒 B と表記することがある）及び酸無水物系硬化剤（新日本理化社製、MH - 7 0 0；硬化剤 A と表記することがある）を、表 2 に示す割合（質量比）でカップに秤量し、30℃に加温しながら攪拌することで均一混合し、エポキシ樹脂組成物を調製した。

[0131] （実施例 5）

エポキシ樹脂 1 を製造例 2 で得られたエポキシ樹脂 2 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0132] （実施例 6）

エポキシ樹脂 1 を製造例 3 で得られたエポキシ樹脂 3 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0133] （実施例 7）

エポキシ樹脂 1 を製造例 4 で得られたエポキシ樹脂 4 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0134] （実施例 8）

エポキシ樹脂 1 を製造例 5 で得られたエポキシ樹脂 5 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0135] （実施例 9）

エポキシ樹脂 1 を製造例 6 で得られたエポキシ樹脂 6 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0136] （実施例 10）

エポキシ樹脂 1 を製造例 7 で得られたエポキシ樹脂 7 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0137] （実施例 11）

エポキシ樹脂 1 を製造例 8 で得られたエポキシ樹脂 8 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0138] （実施例 12）

エポキシ樹脂 1 を製造例 9 で得られたエポキシ樹脂 9 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0139] （実施例 13）

エポキシ樹脂 1 を製造例 10 で得られたエポキシ樹脂 10 に変更し、表 2 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0140] （実施例 14）

製造例 5 で得られたエポキシ樹脂 5、硬化触媒であるトリフェニルホスフィン（東京化成工業社製；硬化触媒 C と表記することがある）及びフェノール樹脂系硬化剤（〔フェノールノボラック型樹脂（DIC 社製、TD-2131）〕；硬化剤 B と表記することがある）を、表 2 に示す割合（質量比）でカップに秤量し、30℃に加温しながら攪拌することで均一混合し、エポキシ樹脂組成物を調製した。

[0141] （実施例 15）

製造例 5 で得られたエポキシ樹脂 5、硬化触媒である 4-ジメチルアミノピリジン（東京化成工業社製；硬化触媒 D と表記することがある）及び活性エステル系硬化剤（活性エステル樹脂、DIC 社製、EPICLON HPC-8000-65T；硬化剤 C と表記することがある）を、表 2 に示す割合（質量比）でカップに秤量し、30℃に加温しながら攪拌することで均一混合し、エポキシ樹脂組成物を調製した。

[0142] （比較例 1）

実施例 1 において、エポキシ樹脂 1 を、Bis-A 型エポキシ樹脂（三菱化学社製 JER 828；エポキシ樹脂 11 と表記することがある）に変更し、表 3 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0143] （比較例 2）

実施例 4 において、エポキシ樹脂 1 を、エポキシ樹脂 11 に変更し、表 3 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 4 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0144] （比較例 3）

実施例 1 において、エポキシ樹脂 1 を 1,4-ビス〔2-（3,4-エポキシシクロヘキシル）エチル〕ジメチルシリルベンゼン（エポキシ樹脂 12 と表記することがある）に変更し、表 3 に示す割合（質量比）に変更したこと以外は実施例 1 と同様の方法でエポキシ樹脂組成物を調製した。

[0145] （銅箔に対する 90 度ピール強度）

各実施例及び比較例で調製したエポキシ樹脂組成物をアルミニウム板に塗布し、その上から厚さ $35\mu\text{m}$ の電解銅箔（古河電工社製）を重ね合わせて積層体を形成した。この積層体を 100°C で1時間、次いで 120°C で2時間、次いで 150°C で2時間加熱することで、エポキシ樹脂組成物の硬化物を形成させた。硬化後、幅が 1cm となるようにカッターで切れ目を入れ、これを 90° 度ピール強度試験片とした。得られた試験片について、AGS-X（島津製作所社製）を用いて、試験速度 $50\text{mm}/\text{min}$ の条件で 90° 度ピール強度試験を実施した。

[0146] （電気特性：比誘電率及び誘電正接）

各実施例及び比較例で調製したエポキシ樹脂組成物を樹脂製モールド（厚さ 1mm ）に流し込み、 100°C で1時間、次いで 120°C で2時間、次いで 150°C で2時間加熱することで、エポキシ樹脂組成物の硬化物を形成させた。その後、幅 20mm ×長さ 30mm ×厚さ 1mm のサイズに切り出し、これを誘電率測定用試験片とした。得られた試験片について、誘電率測定装置（E4991ARFインピーダンス／マテリアル・アナライザー、アジレント社製）を用いて、PTFEで校正した後、平行板コンデンサ法によって比誘電率（ 1GHz ）及び誘電正接（ 1GHz ）を測定した。

[0147] （耐はんだ耐熱性（耐熱フクレ性））

各実施例及び比較例で調製したエポキシ樹脂組成物を厚さ $35\mu\text{m}$ の電解銅箔（古河電工社製）に塗布し、その上から電解銅箔を重ねて積層体を形成した。この積層体を 100°C で1時間、次いで 120°C で2時間、次いで 150°C で2時間加熱することで、エポキシ樹脂組成物の硬化物を形成させた。硬化後、幅が 1cm となるようにカッターで切断し、これ耐熱フクレ性試験片とした。得られた試験片について、 280°C はんだ槽に3分間浸漬させ、浸漬後の外観変化を、目視で観察した。フクレが見られたものを「×」（不良）、見られなかったものを「○」（良）と評価した。

なお、図1にフクレが生じた試験片の一例を示す。

[0148] 表1には、各製造例で使用した成分の配合量及び得られたエポキシ樹脂の

重量平均分子量を示す。表 1 中の括弧内の mol は、A 成分のヒドロシリル基、B 成分の炭素－炭素不飽和結合基、又は C 成分の不飽和結合基の官能基、のモル数を表す。

[0149] 表 2 及び表 3 には、銅箔に対する 90 度ピール強度及び電気特性（比誘電率及び誘電正接）、耐はんだ耐熱性の結果を示している。これらの結果から、A 成分、B 成分及び C 成分のヒドロシリル化反応により得られたヒドロシリル化エポキシ樹脂（つまり、A 成分、B 成分及び C 成分を構成単位とするヒドロシリル化エポキシ樹脂）と、硬化触媒とを含むエポキシ樹脂組成物は、低誘電特性に優れ、かつ、金属に対する接着性にも優れる硬化物を形成できることがわかる。

[表1]

	製造例 1 (エポキシ 樹脂 1)	製造例 2 (エポキシ 樹脂 2)	製造例 3 (エポキシ 樹脂 3)	製造例 4 (エポキシ 樹脂 4)	製造例 5 (エポキシ 樹脂 5)	製造例 6 (エポキシ 樹脂 6)	製造例 7 (エポキシ 樹脂 7)	製造例 8 (エポキシ 樹脂 8)	製造例 9 (エポキシ 樹脂 9)	製造例 10 (エポキシ 樹脂 10)
A-1	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)	—	—	5.8g (0.060mol)	5.8g (0.060mol)
A-2	—	—	—	—	—	—	8.6g (0.060mol)	8.6g (0.060mol)	—	—
B-1	—	—	—	—	2.0g (0.031mol)	2.0g (0.031mol)	—	1.9g (0.029mol)	3.1g (0.048mol)	0.8g (0.012mol)
B-2	3.7g (0.030mol)	3.7g (0.030mol)	—	—	—	—	—	—	—	—
B-3	—	—	2.5g (0.030mol)	2.5g (0.030mol)	—	—	—	—	—	—
B-4	—	—	—	—	—	—	1.8g (0.030mol)	—	—	—
C-1	3.9g (0.034mol)	—	3.9g (0.034mol)	—	3.9g (0.034mol)	—	—	—	—	—
C-2	—	3.6g (0.029mol)	—	3.6g (0.029mol)	—	3.6g (0.029mol)	3.6g (0.029mol)	3.6g (0.029mol)	1.5g (0.012mol)	6.0g (0.048mol)
重量平均 分子量	2000	2000	7600	6700	1500	2000	3500	3000	4000	800
エポキシ 当量 (g /mol)	394	452	359	410	344	393	482	486	867	263

[表2]

配合成分及び 評価項目		実施例														
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
エポキシ樹脂	1	4.0g (10m mol)	—	—	3.0g (7.6m mol)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	2	—	—	—	—	2.9g (6.4m mol)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	3	—	4.4g (12.3 mmol)	—	—	—	3.0g (8.4m mol)	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	4	—	—	—	—	—	—	2.6g (6.3m mol)	—	—	—	—	—	—	—	—
	5	—	—	3.5g (10.2 mmol)	—	—	—	—	2.6g (7.6m mol)	—	—	—	—	—	3.0g (8.7m mol)	3.0g (8.7m mol)
	6	—	—	—	—	—	—	—	—	2.6g (6.6m mol)	—	—	—	—	—	—
	7	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3.0g (6.2m mol)	—	—	—	—	—
	8	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3.0g (6.2m mol)	—	—	—	—

[illegible]

[illegible]

[表3]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3
エポキシ樹脂	1 1	4.0 g	4.0 g	
	1 2			4.0 g
硬化触媒 A		0.04 g	—	0.04 g
硬化触媒 B		—	0.04 g	—
硬化剤 A		—	3.5 g	—
ピール強度 (N/cm)		4.0	6.0	7.0
比誘電率		2.9	2.8	2.5
誘電正接		0.012	0.010	0.003
はんだ耐熱性 (耐熱フレキシ)		×	×	×

請求の範囲

[請求項1] (A) ヒドロシリル基を有する有機化合物由来の、ヒドロシリル基の水素原子が除されて形成される構成単位と、

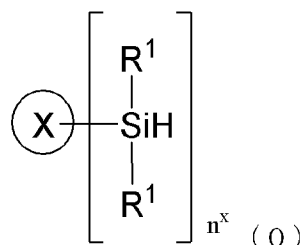
(B) 炭素－炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位と、

(C) 炭素－炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物由来の、炭素－炭素不飽和結合がC＝C結合又はC－C結合に変換されて形成される構成単位と

を有するエポキシ樹脂。

[請求項2] (A) ヒドロシリル基を有する有機化合物が、式(0)：

[化1]



(式中、R¹は、同一又は異なって、水素原子、炭素数1～18のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよく、

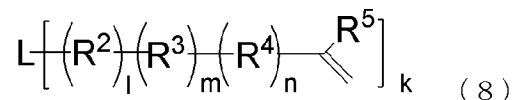
X環は、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2個連結した構造を有する環を示し、n^xは1、2、3、又は4を示す。)

で表される化合物である、

請求項1に記載のエポキシ樹脂。

[請求項3] (B) 炭素－炭素不飽和結合を有し、且つエポキシ基を有さない化合物が、式(8)：

[化2]



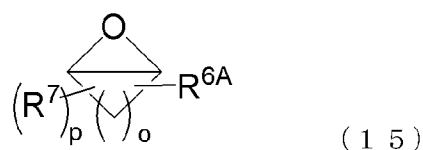
(式中、 R^2 は炭素数1～8のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 R^3 は、 $*-COO-$ 又は $*-O-CO-$ を示し(前記「*」は R^2 又はLと結合する側を示す)。 R^4 は、炭素数1～4のアルキレン基を示し、この基は、一部の炭素原子が酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 R^5 は、メチル基又は水素原子を示す。Lはk価の有機基を示す。lはそれぞれ独立に0または1を示す。mはそれぞれ独立に0または1を示す。nはそれぞれ独立に0または1を示す。kは1～6の整数を示す。なお、 R^2 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。 R^3 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。 R^4 は複数存在するとき、それぞれを同一の基とすることができ、あるいは、一部又は全部を異なる基とすることもできる。)

で表される化合物である、

請求項2に記載のエポキシ樹脂。

[請求項4] (C) 炭素-炭素不飽和結合及びエポキシ基を有する化合物が、式(15)：

[化3]



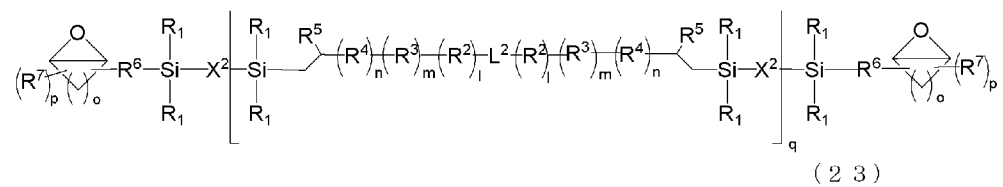
(式中、 R^{6A} は、炭素数2～18のアルケニル基もしくはアルキニ

ル基を示し、この基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 R^7 は炭素数1～18のアルキル基、炭素数2～9のアルケニル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示し、これらの基は、一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 o は0～6の整数を示す。 p は0～3の整数を示す。)

で表される化合物であり、
請求項3に記載のエポキシ樹脂。

[請求項5] 式(23)：

[化4]



(式中、 R^6 は、炭素数2～18のアルキレン基を示し、この基は、ケイ素原子に直接結合した炭素原子を除く一部の炭素原子が、酸素原子及び窒素原子からなる群より選ばれる少なくとも1種の原子で置換されていてもよい。 L^2 は、一部の炭素原子が酸素原子で置換されていてもよい直鎖又は分岐鎖状のアルカン、飽和炭化水素環、不飽和炭化水素環、含窒素複素環、あるいは、飽和炭化水素環及び／又は不飽和炭化水素環が2～6個縮合した構造を有する環もしくは2個連結した構造を有する環から、2個の水素原子を除いて得られる2価の基を示す。 q は平均値で0より大きく20以下の正数を示す。 X^2 は、前記X環から2個水素原子が除かれて得られる2価の基を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^7 、 l 、 m 、 n 、 o 、及び p は前記と同義である。)

で表される、請求項4に記載のエポキシ樹脂。

[請求項6] 請求項1～5のいずれかに記載のエポキシ樹脂と、硬化触媒及び／又

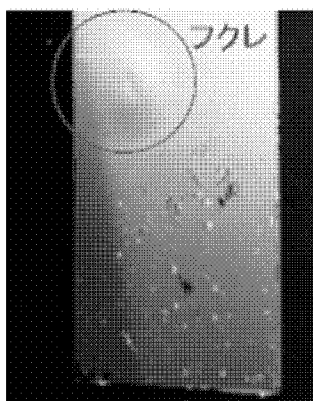
は硬化剤とを含む、エポキシ樹脂組成物。

[請求項7] 請求項6に記載のエポキシ樹脂組成物の硬化物。

[請求項8] 請求項6に記載のエポキシ樹脂組成物、又は、請求項7に記載の硬化物を構成要素として含む、半導体封止体、液状封止材、ポッティング材、シール材、プリント基板材料又は複合材料。

[請求項9] 請求項6に記載のエポキシ樹脂組成物の製造方法であって、
前記エポキシ樹脂と、硬化触媒及び／又は硬化剤とを混合する工程を含む、製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/013257

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08G59/30 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C08G59/30

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 1971-2018

Registered utility model specifications of Japan 1996-2018

Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2008-505945 A (3M ESPE AG.) 28 February 2008, claims 7, 14, paragraphs [0067]-[0074], [0088], [0092]-[0099], [0118]-[0123], examples & US 2008/0031830 A1; claims, paragraphs [0075]-[0078], [0091], [0096]-[0099], [0121]-[0124], examples & WO 2006/005369 A1 & EP 1765265 A1 & CA 2573403 A1 & CN 101060827 A & AU 2004321435 A1	1-9

☒ 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

"I" 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

14 June 2018 (14.06.2018)

Date of mailing of the international search report

26 June 2018 (26.06.2018)

Name and mailing address of the ISA/

Japan Patent Office

3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,

Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/013257

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2015/041325 A1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 26 March 2015, claims, paragraphs [0001], [0035], examples & US 2016/0237202 A1 ; claims, paragraphs [0001], [0063], examples & CN 105873976 A & TW 201518393 A	1-4, 6-9 5
X A	JP 2011-094115 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 12 May 2011, claims, paragraph [0076], examples & US 2011/0076465 A1; claims, paragraph [0089], examples & EP 2305754 A1 & KR 10-2011-0035927 A & TW 201129614 A	1-3, 6-9 4, 5
X A	JP 2017-003707 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 05 January 2017, claims, paragraphs [0125], [0126], examples & US 2016/0357105 A1; claims, paragraphs [0137], [0138], examples & EP 3103831 A1 & CN 106249547 A & KR 10-2016-0144317 A & TW 201713709 A	1-3, 6-9 4, 5
X A	WO 2014/046095 A1 (JNC CORPORATION) 27 March 2014, claims, examples & US 2015/0368397 A1; claims, examples & TW 201414790 A	1, 6-9 2-5
X A	WO 2012/111765 A1 (JNC CORPORATION) 23 August 2012, claims, examples & US 2013/0320264 A1 ; claims, examples & KR 10-2014-0007840 A & TW 201239034 A	1, 6-9 2-5
X A	JP 2010-254814 A (CHISSO CORP.) 11 November 2010, claims, examples & US 2010/0273937 A1; claims, examples	1, 6-9 2-5
X A	JP 2005-272492 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 06 October 2005, claims, paragraphs [0010], [0019]-[0023], examples (Family: none)	1, 6-9 2-5
X A	JP 2003-519705 A (3M ESPE AG.) 24 June 2003, claims, page 23, line 5 to page 24, line 7, examples & US 2003/0035899 A1; claims, paragraphs [0072]-[0077], examples & WO 2001/051540 A2 & EP 1246859 A2 & DE 10001228 A & AU 2515901 A	1, 6-9 2-5
X A	JP 2004-527602 A (3M ESPE AG.) 09 September 2004, claims, paragraph [0025], examples & US 2004/0186202 A1; claims, paragraphs [0076]-[0084], examples & WO 2002/066535 A1 & EP 1368402 A1	1, 6-9 2-5

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08G59/30(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08G59/30

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2008-505945 A（スリーエム イーエスピーイー アーゲー） 2008.02.28, 特許請求の範囲、請求項7、14、[0067] - [0074]、[0088]、[0092] - [0099]、[0118] - [0123]、実施例 & US 2008/0031830 A1 ; claims、[0075] - [0078]、[0091]、[0096] - [0099]、[0121] - [0124]、 examples & WO 2006/005369 A1 & EP 1765265 A1 & CA 2573403 A1 & CN 101060827 A & AU 2004321435 A1	1-9

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

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

国際調査を完了した日

14.06.2018

国際調査報告の発送日

26.06.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

大▲わき▼ 弘子

4 J

3346

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	WO 2015/041325 A1 (信越化学工業株式会社) 2015.03.26, 特許請求の範囲、[0001]、[0035]、実施例 & US 2016/0237202 A1 ; claims、[0001]、[0063]、examples & CN 105873976 A & TW 201518393 A	1-4, 6-9 5
X A	JP 2011-094115 A (信越化学工業株式会社) 2011.05.12, 特許請求の範囲、[0076]、実施例 & US 2011/0076465 A1 ; claims、[0089]、examples & EP 2305754 A1 & KR 10-2011-0035927 A & TW 201129614 A	1-3, 6-9 4, 5
X A	JP 2017-003707 A (信越化学工業株式会社) 2017.01.05, 特許請求の範囲、[0125]、[0126]、実施例 & US 2016/0357105 A1 ; claims、[0137]、[0138]、examples & EP 3103831 A1 & CN 106249547 A & KR 10-2016-0144317 A & TW 201713709 A	1-3, 6-9 4, 5
X A	WO 2014/046095 A1 (JNC株式会社) 2014.03.27, 特許請求の範囲、実施例 & US 2015/0368397 A1 ; claims、examples & TW 201414790 A	1, 6-9 2-5
X A	WO 2012/111765 A1 (JNC株式会社) 2012.08.23, 特許請求の範囲、実施例 & US 2013/0320264 A1 ; claims、examples & KR 10-2014-0007840 A & TW 201239034 A	1, 6-9 2-5
X A	JP 2010-254814 A (チッソ株式会社) 2010.11.11, 特許請求の範囲、実施例 & US 2010/0273937 A1 ; claims、examples	1, 6-9 2-5
X A	JP 2005-272492 A (信越化学工業株式会社) 2005.10.06, 特許請求の範囲、[0010]、[0019] - [0023]、実施例 (ファミリーなし)	1, 6-9 2-5
X A	JP 2003-519705 A (スリーエム エスペ アーゲー) 2003.06.24, 特許請求の範囲、第23頁5行-第24頁7行、実施例 & US 2003/0035899 A1 ; claims、[0072] - [0077]、examples & WO 2001/051540 A2 & EP 1246859 A2 & DE 10001228 A & AU 2515901 A	1, 6-9 2-5

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 2004-527602 A (スリーエム エス ペー アーゲー) 2004.09.09, 特 許請求の範囲、[0 0 2 5]、実施例 & US 2004/0186202 A1 ; claims、[0 0 7 6] – [0 0 8 4]、examples & WO 2002/066535 A1 & EP 1368402 A1	1, 6-9 2-5