

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年6月13日(13.06.2024)



(10) 国際公開番号
WO 2024/122205 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 83/04 (2006.01) *C08J 5/18* (2006.01)
B32B 27/00 (2006.01) *C08L 83/07* (2006.01)
C08F 299/08 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
C08G 77/04 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)

SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/038076

(22) 国際出願日: 2023年10月20日(20.10.2023)

(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 2022-197498 2022年12月9日(09.12.2022) JP
特願 2023-087306 2023年5月26日(26.05.2023) JP

(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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(71) 出願人: 富士フイルム株式会社 (FUJIFILM CORPORATION) [JP/JP]; 〒1068620 東京都港区西麻布2丁目2番30号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 林 大介 (HAYASHI, Daisuke); 〒2500193 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 稲田 寛 (INADA, Hiroshi); 〒2500193 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 山 ▲ 崎 ▼ 頌 平 (YAMAZAKI, Shohei); 〒2500193 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人太陽国際特許事務所 (TAIYO, NAKAJIMA & KATO); 〒1600022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 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,

(54) Title: POLYMER FILM, LAMINATE, WIRING BOARD, SILSESQUIOXANE POLYMER, AND POLYMER COMPOSITION

(54) 発明の名称: ポリマーフィルム、積層体、配線基板、シルセスキオキサンポリマー、及びポリマー組成物

(57) Abstract: Provided are a polymer film that contains a silsesquioxane polymer and has a dielectric tangent of 0.01 or less, and the application thereof.

(57) 要約: シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下である、ポリマーフィルム及びその応用。

WO 2024/122205 A1

明 細 書

発明の名称：

ポリマーフィルム、積層体、配線基板、シルセスキオキサンポリマー、及びポリマー組成物

技術分野

[0001] 本開示は、ポリマーフィルム、積層体、配線基板、シルセスキオキサンポリマー、及びポリマー組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、通信機器に使用される周波数は非常に高くなる傾向にある。高周波帯域における伝送損失を抑えるため、回路基板に用いられる絶縁材料の比誘電率と誘電正接とを低くすることが要求されている。回路基板を構成する部材として銅張積層板が好適に用いられ、銅張積層板の製造には、フィルムが好適に用いられる。

[0003] 例えば、特開 2021-27307 号公報には、1つの金属からなる金属層と、金属層の材料とは異なる材料で作られた非金属基板と、非金属基板上に直接形成された第1の変性シリコン硬化層と、金属層上に直接形成された第2の変性シリコン硬化層であって、第1の変性シリコン硬化層および第2の変性シリコン硬化層の両方が以下の化学式1を含む第2の変性シリコン硬化層と、第2の変性シリコン硬化層および第1の変性シリコン硬化層に直接結合したシリコン接着層と、を含み、シリコン接着層は次の化学式2を含有し、第1の変性シリコン硬化層、第2の変性シリコン硬化層およびシリコン接着層は、化学式1および化学式2を含有する、フレキシブルプリント回路基板が記載されている。特開 2020-185795 号公報には、樹脂フィルムと金属箔とを接着した積層体であって、樹脂フィルムと金属箔との間の接着層にシロキサン結合が存在しており、JISK 6854-2 に準拠して測定した樹脂フィルムと金属箔の間の層間接着強度が、10N/cm 以上である、積層体が記載されている。特開 2021-

054012号公報には、熱可塑性樹脂を含有する基材と、基材の一方の面側に位置する改質層と、改質層の基材とは反対の面側に位置し、熱硬化性樹脂を含有する接着層と、接着層の改質層とは反対の面側に位置する金属箔と、を有する、プリント配線基板用積層体が記載されている。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 通常、銅張積層板は、ポリマーフィルムの表面に銅箔を積層することによって製造される。また、配線基板は、銅張積層板と配線基材とを、銅張積層板におけるフィルムと配線基材とが接するように重ね合わせることによって製造される。配線基板を製造する場合には、密着性の観点から、配線基材の表面に形成されている段差に対してポリマーフィルムが追従して変形することが求められている。

一方、銅張積層板に、配線基材に対する段差追従性に優れるポリマーフィルムを用いた場合に、電子部品を実装する際に行うリフローはんだ付け工程において、層間剥離が生ずる場合があった。このため、配線基材に対する段差追従性を有することと、リフローはんだ付けの際の密着性に優れること（すなわち、耐熱性に優れること）との両立が求められていた。

[0005] 本発明の一実施形態が解決しようとする課題は、段差追従性及び耐熱性に優れるポリマーフィルム及び積層体を提供することである。

また、本発明の他の実施形態が解決しようとする課題は、配線パターン周辺における隙間が低減されており、かつ、耐熱性に優れる配線基板を提供することである。

また、本発明の他の実施形態が解決しようとする課題は、段差追従性及び耐熱性に優れるポリマーフィルムに使用可能なシルセスキオキサンポリマー及びポリマー組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決するための手段には、以下の態様が含まれる。

<1>

シルセスキオキサンポリマーを含み、

誘電正接が0.01以下である、ポリマーフィルム。

<2>

誘電正接は0.005以下である、<1>に記載のポリマーフィルム。

<3>

誘電正接は0.003以下である、<1>に記載のポリマーフィルム。

<4>

160℃における貯蔵弾性率が0.5MPa以下である、<1>~<3>のいずれか1つに記載のポリマーフィルム。

<5>

25℃~40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Aが 10^4 Pa~ 10^8 Paであり、150℃~250℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Bが 10^6 Pa以下である、<1>~<4>のいずれか1つに記載のポリマーフィルム。

<6>

貯蔵弾性率Aが 10^6 Pa~ 10^8 Paであり、貯蔵弾性率Bが 3×10^5 Pa以下である、<5>に記載のポリマーフィルム。

<7>

シルセスキオキサンポリマーは、架橋性基を有する、<1>~<6>のいずれか1つに記載のポリマーフィルム。

<8>

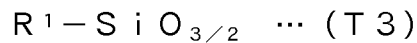
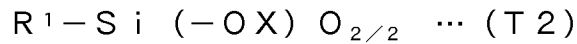
架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、<7>に記載のポリマーフィルム。

<9>

シルセスキオキサンポリマーは、重量平均分子量が1万~15万である、<1>~<8>のいずれか1つに記載のポリマーフィルム。

<10>

シルセスキオキサンポリマーは、下記式（Ｔ２）で表される部分構造及び下記式（Ｔ３）で表される部分構造を含み、式（Ｔ２）で表される部分構造に対する式（Ｔ３）で表される部分構造のモル比が５０以上である、＜１＞～＜９＞のいずれか１つに記載のポリマーフィルム。



式中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。Xは、水素原子、又は炭素数１～６のアルキル基を表す。

＜１１＞

シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、＜１＞～＜１０＞のいずれか１つに記載のポリマーフィルム。

＜１２＞

無機フィラーをさらに含む、＜１＞～＜１１＞のいずれか１つに記載のポリマーフィルム。

＜１３＞

厚さが１０μm以上である、＜１＞～＜１２＞のいずれか１つに記載のポリマーフィルム。

＜１４＞

ボンディングシートである、＜１＞～＜１３＞のいずれか１つに記載のポリマーフィルム。

＜１５＞

層Ａと、層Ａの少なくとも一方の面上に配置された層Ｂと、を含み、
層Ｂは、シルセスキオキサンポリマーを含み、
誘電正接が０．０１以下である、積層体。

＜１６＞

シルセスキオキサンポリマーは、架橋性基を有する、＜１５＞に記載の積層体。

＜１７＞

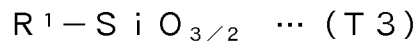
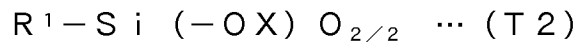
架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、＜16＞に記載の積層体。

＜18＞

シルセスキオキサンポリマーは、重量平均分子量が1万～15万である、＜15＞～＜17＞のいずれか1つに記載の積層体。

＜19＞

シルセスキオキサンポリマーは、下記式（T2）で表される部分構造及び下記式（T3）で表される部分構造を含み、式（T2）で表される部分構造に対する式（T3）で表される部分構造のモル比が50以上である、＜15＞～＜18＞のいずれか1つに記載の積層体。



式（T2）及び式（T3）中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。 X は、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

＜20＞

層Bは、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、＜15＞～＜19＞のいずれか1つに記載の積層体。

＜21＞

層Bは、無機フィラーをさらに含む、＜15＞～＜20＞のいずれか1つに記載の積層体。

＜22＞

層Aは、液晶ポリマーを含む、＜15＞～＜21＞のいずれか1つに記載の積層体。

＜23＞

液晶ポリマーは、芳香族ポリエステルアミドを含む、＜22＞に記載の積層体。

＜24＞

層Bは、厚さが10 μm 以上である、＜15＞～＜23＞のいずれか1つ

に記載の積層体。

< 2 5 >

層 A と、層 A の少なくとも一方の面上に配置された層 B と、を含み、
層 B は、< 1 > ~ < 1 4 > のいずれか 1 つに記載のポリマーフィルムであり、

誘電正接が 0. 0 1 以下である、積層体。

< 2 6 >

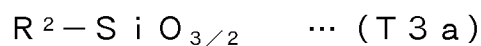
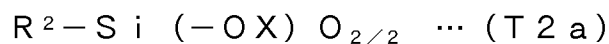
基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、配線パターン間及び配線パターン上に配置された層 B と、層 B 上に配置された層 A と、を備え、

層 B は、シルセスキオキサンポリマーを含み、

誘電正接が 0. 0 1 以下である、配線基板。

< 2 7 >

シルセスキオキサンポリマーは、下記式 (T 2 a) で表される部分構造及び下記式 (T 3 a) で表される部分構造を含み、式 (T 2 a) で表される部分構造に対する式 (T 3 a) で表される部分構造のモル比が 7 0 以上である、< 2 6 > に記載の配線基板。



式中、 R^2 はそれぞれ独立に、有機基を表し、各 R^2 は互いに連結していてもよい。X は、水素原子、又は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を表す。

< 2 8 >

層 B は、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、< 2 5 > 又は < 2 6 > に記載の配線基板。

< 2 9 >

層 B は、無機フィラーをさらに含む、< 2 6 > ~ < 2 8 > のいずれか 1 つに記載の配線基板。

< 3 0 >

層Aは、液晶ポリマーを含む、＜26＞～＜29＞のいずれか1つに記載の配線基板。＜31＞

液晶ポリマーは、芳香族ポリエステルアミドを含む、＜30＞に記載の配線基板。

＜32＞

層Bは、最も厚い部分の厚さが10 μ m以上である、＜26＞～＜31＞のいずれか1つに記載の配線基板。

＜33＞

基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、配線パターン間及び配線パターン上に配置された層Bと、層B上に配置された層Aと、を備え、

層Bは、＜1＞～＜14＞のいずれか1つに記載のポリマーフィルムであり、

誘電正接が0.01以下である、配線基板。

＜34＞

誘電正接が0.01以下である、シルセスキオキサンポリマー。

＜35＞

重量平均分子量が4000以上である、＜34＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。

＜36＞

誘電正接が0.005以下である、＜34＞又は＜35＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。

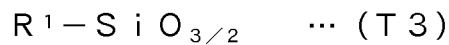
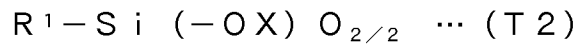
＜37＞

誘電正接が0.003以下である、＜34＞又は＜35＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。

＜38＞

下記式（T2）で表される部分構造及び下記式（T3）で表される部分構造を含み、式（T2）で表される部分構造に対する式（T3）で表される部

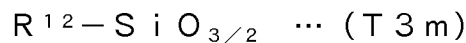
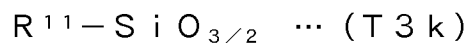
分構造のモル比が50以上である、＜34＞～＜37＞のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマー。



式(T2)及び式(T3)中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。Xは、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

＜39＞

式(T3)で表される部分構造は、下記式(T3k)で表される部分構造及び下記式(T3m)で表される部分構造を含み、式(T3k)で表される部分構造に対する式(T3m)で表される部分構造のモル比が0.01～99である、＜38＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。



式(T3k)中、 R^{11} は、無置換の芳香族炭化水素基、置換基を有する芳香族炭化水素基、又はビニル基であり、

式(T3m)中、 R^{12} は、ClogP値が2.5以上の脂肪族炭化水素基である。

＜40＞

R^{12} は、炭素数4以上の無置換の脂肪族炭化水素基、又は炭素数4以上の置換基を有する脂肪族炭化水素基である、＜39＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。

＜41＞

式(T3k)で表される部分構造に対する式(T3m)で表される部分構造のモル比が0.25～4である、＜39＞に記載のシルセスキオキサンポリマー。

＜42＞

架橋性基を有する、＜34＞～＜41＞のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマー。

<43>

架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、<42>に記載のシルセスキオキサンポリマー。

<44>

R^{11} は、スチリル基であり、 R^{12} は、炭素数6以上の無置換の脂肪族炭化水素基である、<39>～<41>のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマー。

<45>

25℃～40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Cが 10^4 Pa ～ 10^8 Pa であり、150℃～250℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Dが $3 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以下である、<39>～<42>のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマー。

<46>

R^{11} は、フェニル基であり、 R^{12} は、炭素数6以上の無置換の脂肪族炭化水素基である、<39>～<41>のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマー。

<47>

<34>～<46>のいずれか1つに記載のシルセスキオキサンポリマーを含むポリマー組成物。

<48>

シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、<47>に記載のポリマー組成物。

<49>

無機フィラーをさらに含む、<47>又は<48>に記載のポリマー組成物。

発明の効果

[0007] 本発明の一実施形態によれば、段差追従性及び耐熱性に優れるポリマーフ

ィルム及び積層体が提供される。

また、本発明の他の実施形態によれば、配線パターン周辺における隙間が低減されており、かつ、耐熱性に優れる配線基板が提供される。

また、本発明の他の実施形態によれば、段差追従性及び耐熱性に優れるポリマーフィルムに使用可能なシルセスキオキサンポリマー及びポリマー組成物が提供される。

発明を実施するための形態

[0008] 以下において、本開示の内容について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、本開示の代表的な実施態様に基づいてなされることがあるが、本開示はそのような実施態様に限定されるものではない。

なお、本明細書において、数値範囲を示す「～」とはその前後に記載される数値を下限值及び上限値として含む意味で使用される。

本開示中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本開示中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

また、本明細書における基（原子団）の表記において、置換及び無置換を記していない表記は、置換基を有さないものと共に置換基を有するものをも包含するものである。例えば「アルキル基」とは、置換基を有さないアルキル基（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。

本明細書において、「（メタ）アクリル」は、アクリル及びメタクリルの両方を包含する概念で用いられる語であり、「（メタ）アクリロイル」は、アクリロイル及びメタクリロイルの両方を包含する概念として用いられる語である。

また、本明細書中の「工程」の用語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であっても、その工程の所期の目的が達成さ

れば本用語に含まれる。

さらに、本開示において、2以上の好ましい態様の組み合わせは、より好ましい態様である。

また、本開示における重量平均分子量 (M_w) 及び数平均分子量 (M_n) は、特に断りのない限り、TSK gel Super HM-H (東ソー (株) 製の商品名) のカラムを使用したゲルパーミエーションクロマトグラフィ (GPC) 分析装置により、溶剤 PFP (ペンタフルオロフェノール) / クロロホルム = 1 / 2 (質量比)、示差屈折計により検出し、標準物質としてポリスチレンを用いて換算した分子量である。

[0009] [ポリマーフィルム]

本開示に係るポリマーフィルムは、シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下である。

[0010] 本発明者らが鋭意検討した結果、上記構成をとることにより、段差追従性及び耐熱性に優れるポリマーフィルムを提供できることを見出した。

上記効果が得られる詳細なメカニズムは不明であるが、以下のように推測される。

本開示に係るポリマーフィルムは、シルセスキオキサンポリマーを含む。シルセスキオキサンポリマーは、ケイ素原子に対して酸素原子が3つ結合した構造を有していることから、ポリマーフィルムの段差追従性及び耐熱性に寄与していると考えられる。

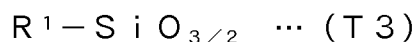
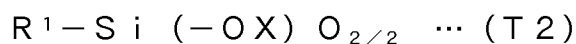
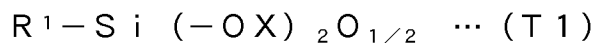
[0011] これに対して、特開2021-27307号公報、特開2020-185795号公報、及び特開2021-054012号公報には、シルセスキオキサンポリマーに着目した記載はない。

[0012] シルセスキオキサンポリマー

本開示に係るポリマーフィルムは、シルセスキオキサンポリマーを含む。本開示において、シルセスキオキサンポリマーとは、1個のケイ素原子に対して、1個の有機基と、3個の酸素原子が結合した構造を有するポリマーであり、1分子内にケイ素原子を13個以上有するポリマーである。

[0013] シルセスキオキサンポリマーの骨格構造は特に限定されず、カゴ型構造、ハシゴ型構造、及びランダム構造のいずれであってもよい。

[0014] シルセスキオキサンポリマーは、下記式 (T 1) で表される部分構造、下記式 (T 2) で表される部分構造、及び下記 (T 3) で表される部分構造からなる群より選択される少なくとも 1 種を含むことが好ましい。



式 (T 1) ~ 式 (T 3) 中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。 X は、水素原子、又は炭素数 1 ~ 6 のアルキル基を表す。

[0015] X で表されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、及び n -ブチル基が挙げられる。 X で表されるアルキル基の炭素数は、1 ~ 5 が好ましく、1 ~ 4 がより好ましく、1 ~ 3 がさらに好ましい。

[0016] R^1 で表される有機基としては、例えば、炭化水素基が挙げられる。炭化水素基は、炭化水素基中の少なくとも 1 つの炭素原子をヘテロ原子（好ましくは酸素原子、窒素原子、又は硫黄原子）に置き換えた基、炭化水素基中の少なくとも 1 つのメチレン基をカルボニル基に置き換えた基、及び、これらの組み合わせであってもよい。

[0017] 炭化水素基は、脂肪族炭化水素基であってもよく、芳香族炭化水素基であってもよい。

[0018] 脂肪族炭化水素基は、直鎖状又は分岐鎖状の飽和脂肪族炭化水素基であってもよく、直鎖状又は分岐鎖状の不飽和脂肪族炭化水素基であってもよい。

[0019] 脂肪族炭化水素基は、炭素数が 1 ~ 20 であることが好ましく、1 ~ 15 であることがより好ましい。脂肪族炭化水素基としては、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、 s -ブチル基、 t -ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基等の飽和脂肪族

炭化水素基；アリル基、ビニル基等の不飽和脂肪族炭化水素基が挙げられる。

[0020] 脂肪族炭化水素基は、脂環式炭化水素基であってもよい。また、脂環式炭化水素基は脂環式飽和炭化水素基であってもよく、脂環式不飽和炭化水素基であってもよい。脂環式炭化水素基としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロペンテニル基、及びシクロヘキセニル基が挙げられる。

脂肪族炭化水素基は置換基を有していてもよい。脂肪族炭化水素基における置換基としては、アリール基、水酸基、アミノ基、チオール基、エステル基、アルコキシ基、ハロゲン原子、及び後述する架橋性基が挙げられる。

[0021] 芳香族炭化水素基は、炭素数が6～18であることが好ましく、6～14であることがより好ましい。芳香族炭化水素基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、及びアントラセニル基が挙げられる。芳香族炭化水素基は置換基を有していてもよい。芳香族炭化水素基における置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、水酸基、アミノ基、チオール基、ハロゲン原子、及びビニル基が挙げられる。

[0022] 中でも、耐熱性を向上させる観点から、シルセスキオキサンポリマーは、架橋性基を有することが好ましく、 R^1 で表される有機基は架橋性基を含むことが好ましい。

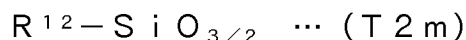
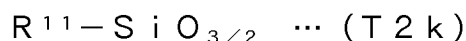
[0023] 架橋性基としては、例えば、ビニル基、アリル基、スチリル基、マレイミド基、エポキシ基、及び（メタ）アクリロイル基が挙げられる。中でも、誘電正接及び耐熱性の観点から、架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0024] また、耐熱性の観点から、シルセスキオキサンポリマーは、式（T2）で表される部分構造及び式（T3）で表される部分構造を含み、式（T2）で表される部分構造に対する式（T3）で表される部分構造のモル比が50以上であることが好ましく、70以上であることがより好ましく、90以上で

あることがさらに好ましく、99以上であることが特に好ましい。上記モル比の上限値は特に限定されない。

[0025] 式(T2)で表される部分構造に対する式(T3)で表される部分構造のモル比は、 $^{29}\text{Si-NMR}$ のピーク面積比から算出される。

[0026] また、誘電正接を低下させ、かつ、耐熱性を向上させる観点から、式(T3)で表される部分構造は、下記式(T3k)で表される部分構造及び下記式(T3m)で表される部分構造を含み、式(T3k)で表される部分構造に対する式(T3m)で表される部分構造のモル比が0.01~99であることが好ましい。



[0027] 式(T3k)中、 R^{11} は、無置換の芳香族炭化水素基、置換基を有する芳香族炭化水素基、又はビニル基である。

式(T3m)中、 R^{12} は、 ClogP 値が2.5以上の脂肪族炭化水素基である。

[0028] 本開示において、 ClogP 値は、PerkinElmer Informatics社製ChemDraw(登録商標)Professional(ver.16.0.1.4)を使用して算出される。

[0029] R^{11} で表される芳香族炭化水素基の具体例は、上記のとおりである。

また、芳香族炭化水素基が有する置換基の具体例は、上記のとおりである。

[0030] R^{12} で表される ClogP 値が2.5以上の脂肪族炭化水素基としては、上記脂肪族炭化水素基の具体例の中で、 ClogP 値が2.5以上のものが挙げられる。

[0031] 中でも、耐熱性の観点から、 R^{12} は、炭素数4以上の無置換の脂肪族炭化水素基、又は炭素数4以上の置換基を有する脂肪族炭化水素基であることが好ましい。 R^{12} の炭素数は4~30であることが好ましく、6~10であることがより好ましい。

- [0032] また、式 (T 3 k) で表される部分構造に対する式 (T 3 m) で表される部分構造のモル比は、0.25～4であることが好ましく、0.33～3であることがより好ましい。
- [0033] 態様1として、 R^{11} は、スチリル基であり、 R^{12} は、炭素数6以上の無置換の脂肪族炭化水素基であることが好ましい。態様1では、ポリマーと銅の熱膨張率差が小さくなるため、耐熱性が向上する。
- [0034] 態様2として、 R^{11} は、フェニル基であり、 R^{12} は、炭素数6以上の脂肪族炭化水素基であることが好ましい。態様2では、ポリマーと銅とが密着性に優れるため、耐熱性が向上する。
- [0035] 態様2において、25℃～40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Cは $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であることが好ましく、150℃～250℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Dは $3 \times 10^5\text{ Pa}$ 以下であることが好ましい。また、貯蔵弾性率Cは、25℃～40℃の温度範囲全てにおいて $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であることがより好ましく、貯蔵弾性率Dは、150℃～250℃の温度範囲全てにおいて $3 \times 10^5\text{ Pa}$ 以下であることがより好ましい。
- [0036] 貯蔵弾性率C及び貯蔵弾性率Dは、後述する160℃における貯蔵弾性率と同様の方法で測定される。「25℃～40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Cが $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ である」ということは、25℃～40℃のいずれかの温度で測定した測定値が、 $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ の範囲に入ることの意味する。すなわち、貯蔵弾性率が $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ となる温度が25℃～40℃の範囲に存在すればよく、貯蔵弾性率が 10^4 Pa 未満又は 10^8 Pa 超となる温度が存在していてもよい。

同様に、「150℃～250℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Dが $3 \times 10^5\text{ Pa}$ 以下である」ということは、150℃～250℃のいずれかの温度で測定した測定値が、 $3 \times 10^5\text{ Pa}$ 以下の範囲に入ることの意味する。

25℃～40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Cが $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であるか否かの判定は、以下の方法で行うことができる。例えば、25℃～40℃の範囲で5℃／分の速度で昇温しながら貯蔵弾性率を連続的に測

定したとき、測定値が $10^4 \text{ Pa} \sim 10^8 \text{ Pa}$ の範囲に入るか否かによって判定される。また、特定の温度（例えば、 25°C ）で貯蔵弾性率を測定して、当該温度における貯蔵弾性率が $10^4 \text{ Pa} \sim 10^8 \text{ Pa}$ であるか否かを判定する方法であってもよい。

[0037] 金属（特に、銅）に対する接着性の観点から、貯蔵弾性率Cは $10^6 \text{ Pa} \sim 10^8 \text{ Pa}$ であることがより好ましく、 $5 \times 10^6 \text{ Pa} \sim 5 \times 10^7 \text{ Pa}$ であることがさらに好ましい。

[0038] 金属（特に、銅）に対する接着性の観点から、貯蔵弾性率Dは 10^5 Pa 以下であることがより好ましい。

[0039] シルセスキオキサンポリマーの重量平均分子量は4000以上であることが好ましく、6000～15万であることがより好ましく、1万～15万であることがさらに好ましく、1万～10万であることが特に好ましい。重量平均分子量が1万以上であると、耐熱性により優れる。また、重量平均分子量が15万以下であると、段差追従性により優れる。

なお、本開示におけるシルセスキオキサンポリマーの重量平均分子量（ M_w ）及び数平均分子量（ M_n ）は、TSK gel SuperHM-H（東ソー（株）製の商品名）のカラムを使用したゲルパーミエーションクロマトグラフィ（GPC）分析装置により、溶剤テトラヒドロフラン、示差屈折計により検出し、標準物質としてポリスチレンを用いて換算した分子量である。

[0040] シルセスキオキサンポリマーの含有量は、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、ポリマーフィルムの全質量に対し、50質量%～100質量%であることが好ましく、60質量%～90質量%であることがより好ましい。

[0041] ー熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂ー

本開示に係るポリマーフィルムは、誘電正接、及び、段差追従性の観点から、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含むことが好ましい。

[0042] 熱可塑性樹脂は、熱可塑性エラストマーであってもよい。なお、エラストマーとは、弾性変形を示す高分子化合物を表す。すなわち外力を加えたときに、その外力に応じて変形し、かつ外力を除いたときには、短時間に元の形状を回復する性質を有する高分子化合物が該当する。

[0043] 熱可塑性樹脂としては、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、（メタ）アクリル樹脂、ポリスチレン樹脂、フッ素樹脂、ポリイミド樹脂、フッ素化ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、セルロースアシレート樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリオレフィン樹脂（例えば、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、環状オレフィンコポリマーからなる樹脂、脂環式ポリオレフィン樹脂）、ポリアリレート樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、フルオレン環変性ポリカーボネート樹脂、脂環変性ポリカーボネート樹脂、及びフルオレン環変性ポリエステル樹脂が挙げられる。

[0044] 熱可塑性エラストマーとしては、特に限定されず、例えば、スチレン由来の構成繰返し単位を含むエラストマー（ポリスチレン系エラストマー）、ポリエステル系エラストマー、ポリオレフィン系エラストマー、ポリウレタン系エラストマー、ポリアミド系エラストマー、ポリアクリル系エラストマー、シリコーン系エラストマー、ポリイミド系エラストマー等が挙げられる。なお、熱可塑性エラストマーは、水添物であってもよい。

[0045] ポリスチレン系エラストマーとしては、スチレンーブタジエーンスチレンブロック共重合体（SBS）、スチレンーイソプレーンスチレンブロック共重合体（SIS）、ポリスチレンーポリ（エチレンープロピレン）ジブロック共重合体（SEB）、ポリスチレンーポリ（エチレンープロピレン）ーポリスチレントリブロック共重合体（SEBPS）、スチレンーエチレンーブチレンースチレンブロック共重合体（SEBS）、及びポリスチレンーポリ（エチレン／エチレンープロピレン）ーポリスチレントリブロック共重合体（SEEPS）、スチレンーイソブチレンースチレンブロック共重合体（SIBS）

B S)、並びに、これらの水添物が挙げられる。

[0046] 中でも、本開示に係るポリマーフィルムは、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、芳香族炭化水素基を有する単量体に由来する構成単位を含む熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、ポリスチレン系エラストマーを含むことがより好ましく、スチレンーエチレンーブチレンースチレンブロック共重合体、又はスチレンーイソブチレンースチレンブロック共重合体、スチレンーエチレンープロピレンブロック共重合体、スチレンーエチレンープロピレンースチレンブロック共重合体、スチレンーエチレンーエチレンープロピレンースチレン共重合体を含むことがより好ましい。

[0047] 熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、オキサジン樹脂、ビスマレイミド樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、及びシリコーン樹脂が挙げられる。

[0048] シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂の含有量は、特に限定されないが、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、ポリマーフィルムの全質量に対し、5質量%～50質量%であることが好ましく、10質量%～40質量%であることがより好ましい。

[0049] ーフィラー

本開示に係るポリマーフィルムは、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、フィラーを含むことが好ましい。

[0050] フィラーとしては、粒子状でも繊維状のものでもよく、無機フィラーであってもよく、有機フィラーであってもよい。本開示に係るポリマーフィルムは、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、無機フィラーを含むことが好ましい。

[0051] 有機フィラーとしては、公知の有機フィラーを用いることができる。

有機フィラーの材質としては、例えば、ポリエチレン、ポリスチレン、尿素ホルマリンフィラー、ポリエステル、セルロース、アクリル樹脂、フッ素樹脂、硬化エポキシ樹脂、架橋ベンゾグアナミン樹脂、架橋アクリル樹脂、液晶ポリマー、及び、これらを2種以上含む材質が挙げられる。

[0052] また、有機フィラーは、ナノファイバーのような繊維状であってもよく、中空樹脂粒子であってもよい。

[0053] 中でも、有機フィラーとしては、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、フッ素樹脂粒子、ポリエステル系樹脂粒子、ポリエチレン粒子、液晶ポリマー粒子、又は、セルロース系樹脂のナノファイバーであることが好ましく、ポリテトラフルオロエチレン粒子、ポリエチレン粒子、又は、液晶ポリマー粒子であることがより好ましく、液晶ポリマー粒子であることが特に好ましい。ここで、液晶ポリマー粒子とは、限定的ではないが、液晶ポリマーを重合させ、粉碎機等で粉碎して、粉末状の液晶としたものをいう。液晶ポリマー粒子は、各層の厚みよりも小さいことが好ましい。

[0054] 有機フィラーの平均粒径は、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、 $5\text{ nm} \sim 20\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $100\text{ nm} \sim 10\text{ }\mu\text{m}$ であることがより好ましい。

[0055] 無機フィラーとしては、公知の無機フィラーを用いることができる。

無機フィラーの材質としては、例えば、 BN 、 Al_2O_3 、 AlN 、 TiO_2 、 SiO_2 、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、水酸化アルミニウム、炭酸カルシウム、及び、これらを2種以上含む材質が挙げられる。

中でも、無機フィラーとしては、誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、金属酸化物粒子、又は、繊維が好ましく、シリカ粒子、又は、チタニア粒子、又は、ガラス繊維がより好ましく、シリカ粒子、又は、ガラス繊維が特に好ましい。

無機フィラーの平均粒径は、フィルムの厚みの約20%～約40%であることが好ましく、例えば、フィルムの厚みの25%、30%又は35%にあるものを選択してもよい。粒子、又は、繊維が扁平状の場合には、短辺方向の長さを示す。

また、無機フィラーの平均粒径は、ポリマーフィルムの誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、 $5\text{ nm} \sim 20\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $10\text{ nm} \sim 10\text{ }\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $20\text{ nm} \sim 1\text{ }\mu\text{m}$ であること

がさらに好ましく、25 nm～500 nmであることが特に好ましい。

[0056] 本開示に係るポリマーフィルムは、フィラーを1種のみ含んでいても、2種以上含んでいてもよい。

本開示に係るポリマーフィルムがフィラーを含む場合、フィラーの含有量は、ポリマーフィルムの誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、ポリマーフィルムの全質量に対し、5質量%～50質量%であることが好ましく、10質量%～40質量%であることがより好ましい。

[0057] また、本開示に係るポリマーフィルムに含まれるシルセスキオキサンポリマーが架橋性基を有する場合、シルセスキオキサンポリマー同士を架橋させるために、本開示に係るポリマーフィルムは、重合開始剤を含むことが好ましい。

[0058] 重合開始剤は、加熱によってラジカルを発生する熱ラジカル重合開始剤であることが好ましい。熱ラジカル重合開始剤としては、例えば、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチル-4-メトキシバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、ジメチル-2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、1, 1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2, 2'-アゾビス(N-ブチル-2-メチルプロピオンアミド)、ジメチル-1, 1'-アゾビス(1-シクロヘキサンカルボキシレート)、2, 2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン] 2塩酸塩等のアゾ系化合物；1, 1-ジ(t-ヘキシルペルオキシ)シクロヘキサン、1, 1-ジ(t-ブチルペルオキシ)シクロヘキサン、2, 2-ジ(4, 4-ジ(t-ブチルペルオキシ)シクロヘキシル)プロパン、t-ヘキシルペルオキシイソプロピルモノカーボネート、t-ブチルペルオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、t-ブチルペルオキシラウレート、ジクミルペルオキシド、ジ-t-ブチルペルオキシド、t-ブチルペルオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ヘキシルペルオキシ-2-エチルヘキサノエート、クメンヒドロペルオ

キシド、 α -ブチルヒドロペルオキシド等の有機過酸化物；及び、過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム、過酸化水素等の無機過酸化物が挙げられる。

[0059] 重合開始剤の含有量は特に限定されないが、硬化性の観点から、ポリマーフィルムの全質量に対して、0.1質量%～10質量%であることが好ましく、1質量%～5質量%であることがより好ましい。

[0060] ーその他の添加剤ー

本開示に係るポリマーフィルムは、上述した成分以外のその他の添加剤を含んでいてもよい。

その他の添加剤としては、公知の添加剤を用いることができる。具体的には、例えば、硬化剤、レベリング剤、消泡剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、難燃剤、着色剤等が挙げられる。

[0061] 本開示に係るポリマーフィルムの平均厚みは、耐熱性及び段差追従性の観点から、10 μ m以上であることが好ましく、15 μ m～40 μ mであることがより好ましく、20 μ m～30 μ mであることがさらに好ましい。

[0062] 本開示に係るポリマーフィルムの誘電正接は0.01以下であり、0.006以下であることが好ましく、0.005以下であることがより好ましく、0.003以下であることがさらに好ましい。また、本開示に係るポリマーフィルムの誘電正接は0を超え0.004以下であることが好ましく、0を超え0.003以下であることがさらに好ましい。

[0063] 本開示において、誘電正接は、以下の方法により測定するものとする。

誘電正接の測定は、周波数28GHzで共振摂動法により実施する。ネットワークアナライザ（Agilent Technology社製「E8363B」）に28GHzの空洞共振器（（株）関東電子応用開発製「CP531」）を接続し、空洞共振器に測定試料を挿入し、温度25℃、湿度60%RH環境下、96時間の挿入前後の共振周波数の変化から測定する。

[0064] 段差追従性の観点から、本開示に係るポリマーフィルムは、160℃における貯蔵弾性率は、0.5MPa以下であることが好ましく、0.3MPa以下であることがより好ましい。貯蔵弾性率の下限值は特に限定されないが

、耐熱性の観点から、 0.01 MPa であることが好ましい。 160°C における貯蔵弾性率は、 $0.05\text{ MPa} \sim 0.5\text{ MPa}$ であることがより好ましい。

[0065] 本開示において、ポリマーフィルムの 160°C における貯蔵弾性率は、以下の方法で測定される。

[0066] レオメーター（製品名「RS6000」、英弘精機（株）製）を用いて、以下の条件でポリマーフィルムの 160°C における貯蔵弾性率を測定する。サンプルは厚みが約 0.1 mm となるように重ね合わせる。測定開始後5分時点での弾性率を読み取り、 $n=3$ 測定の平均値を算出する。

- ・フォース制御モード（ $F_n=2\text{ N}$ ）
- ・周波数： 1 Hz
- ・歪： 0.2%
- ・温度： 160°C 一定
- ・測定時間： 15 分

[0067] また、金属に対する接着性の観点から、本開示に係るポリマーフィルムは、 $25^{\circ}\text{C} \sim 40^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率Aが $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であることが好ましく、 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率Bが 10^6 Pa 以下であることが好ましい。金属に対する接着性の観点から、貯蔵弾性率Aは、 $25^{\circ}\text{C} \sim 40^{\circ}\text{C}$ の温度範囲全てにおいて $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であることがより好ましく、貯蔵弾性率Bは、 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ の温度範囲全てにおいて 10^6 Pa 以下であることがさらに好ましい。

[0068] 貯蔵弾性率A及び貯蔵弾性率Bは、上記 160°C における貯蔵弾性率と同様の方法で測定される。

「 $25^{\circ}\text{C} \sim 40^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率Aが $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ である」ということは、 $25^{\circ}\text{C} \sim 40^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度で測定した測定値が、 $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ の範囲に入ることの意味する。

同様に、「 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率Bが 10^6 Pa 以下である」ということは、 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度

で測定した測定値が、 $1.0 \times 10^6 \text{ Pa}$ 以下の範囲に入ることの意味する。

[0069] 金属（特に、銅）に対する接着性の観点から、本開示に係るポリマーフィルムは、貯蔵弾性率Aが $1.0 \times 10^6 \text{ Pa} \sim 1.0 \times 10^8 \text{ Pa}$ であることがより好ましく、貯蔵弾性率Bが $3 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以下であることがより好ましい。

金属（特に、銅）に対する接着性の観点から、本開示に係るポリマーフィルムは、貯蔵弾性率Aが $5 \times 10^6 \text{ Pa} \sim 5 \times 10^7 \text{ Pa}$ であることがさらに好ましく、貯蔵弾性率Bが $1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以下であることがさらに好ましい。

[0070] 本開示に係るポリマーフィルムは、ボンディングシートであることが好ましい。ボンディングシートとは、他の基材に対して貼り付けて用いられるものであり、接着機能を有するシートである。

[0071] [積層体]

本開示に係る積層体は、層Aと、層Aの少なくとも一方の面上に配置された層Bと、を含み、層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下である。

また、本開示に係る積層体は、層Aと、層Aの少なくとも一方の面上に配置された層Bと、を含み、層Bは、本開示に係るポリマーフィルムであってもよい。

[0072] 本開示に係る積層体は、シルセスキオキサンポリマーを含むことにより、層Bが段差追従層として機能し、段差追従性に優れる。また、シルセスキオキサンポリマーは、ケイ素原子に対して酸素原子が3つ結合した構造を有しており、積層体の耐熱性に寄与していると考えられる。

[0073] これに対して、特許文献1～特許文献3には、シルセスキオキサンポリマーに着目した記載はない。

[0074] <層A>

本開示に係る積層体は、後述する層Bが設けられる層Aを有する。層Aは、積層体の誘電正接を0.01以下とする観点から、誘電正接が0.01以下であるポリマーを含むことが好ましい。

[0075] 層Aは、誘電正接が0.01以下であるポリマーを1種のみ含んでいても

よく、2種以上含んでいてもよい。

[0076] 誘電正接が0.01以下であるポリマーの誘電正接は、積層体の誘電正接の観点から、0.006以下であることが好ましく、0を超え0.004以下であることがより好ましい。

[0077] 誘電正接が0.01以下であるポリマーとしては、例えば、液晶ポリマー、フッ素樹脂、環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合体、ポリエーテルエーテルケトン、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリフェニレンエーテル及びその変性物、ポリエーテルイミド等の熱可塑性樹脂；グリシジルメタクリレートとポリエチレンとの共重合体等のエラストマー；フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド、シアネート樹脂等の熱硬化性樹脂が挙げられる。

[0078] ー液晶ポリマーー

積層体の誘電正接の観点から、誘電正接が0.01以下であるポリマーは、液晶ポリマーであることが好ましい。すなわち、層Aは、液晶ポリマーを含むことが好ましい。

[0079] 液晶ポリマーの種類は特に限定されず、公知の液晶ポリマーを用いることができる。

また、液晶ポリマーは、溶融状態で液晶性を示すサーモトロピック液晶ポリマーであってもよく、溶液状態で液晶性を示すリオトロピック液晶ポリマーであってもよい。また、サーモトロピック液晶の場合は、450℃以下の温度で溶融するものであることが好ましい。

[0080] 液晶ポリマーとしては、例えば、液晶ポリエステル、液晶ポリエステルにアミド結合が導入された液晶ポリエステルアミド、液晶ポリエステルにエーテル結合が導入された液晶ポリエステルエーテル、及び、液晶ポリエステルにカーボネート結合が導入された液晶ポリエステルカーボネートが挙げられる。

[0081] また、液晶ポリマーは、液晶性の観点から、芳香環を有するポリマーであ

ることが好ましく、芳香族ポリエステル又は芳香族ポリエステルアミドであることがより好ましい。

[0082] さらに、液晶ポリマーは、芳香族ポリエステル又は芳香族ポリエステルアミドに、さらにイミド結合、カルボジイミド結合、イソシアヌレート結合等のイソシアネート由来の結合等が導入されたポリマーであってもよい。

[0083] また、液晶ポリマーは、原料モノマーとして芳香族化合物のみを用いてなる全芳香族液晶ポリマーであることが好ましい。

[0084] 液晶ポリマーとしては、例えば、以下の液晶ポリマーが挙げられる。

1) (i) 芳香族ヒドロキシカルボン酸と、(ii) 芳香族ジカルボン酸と、(iii) 芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシアミン及び芳香族ジアミンよりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物と、を重縮合させてなるもの。

2) 複数種の芳香族ヒドロキシカルボン酸を重縮合させてなるもの。

3) (i) 芳香族ジカルボン酸と、(ii) 芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシアミン及び芳香族ジアミンよりなる群から選ばれる少なくとも1種の化合物と、を重縮合させてなるもの。

4) (i) ポリエチレンテレフタレート等のポリエステルと、(ii) 芳香族ヒドロキシカルボン酸と、を重縮合させてなるもの。

ここで、芳香族ヒドロキシカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシアミン及び芳香族ジアミンは、それぞれ独立に、重縮合可能な誘導体に置き換えてもよい。

[0085] 液晶ポリマーの融点は、250℃以上であることが好ましく、250℃～350℃であることがより好ましく、260℃～330℃であることがさらに好ましい。

[0086] 本開示において、融点は、示差走査熱量分析装置を用いて測定される。例えば、製品名「DSC-60A Plus」（島津製作所製）を用いて測定される。なお、測定における昇温速度は10℃/分とする。

[0087] 液晶ポリマーの重量平均分子量は、1,000,000以下であることが

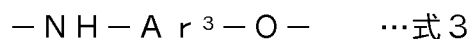
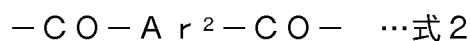
好ましく、3,000～300,000であることがより好ましく、5,000～100,000であることがさらに好ましく、5,000～30,000であることが特に好ましい。

[0088] 液晶ポリマーは、誘電正接をより低下させる観点から、芳香族ポリエステルアミドを含むことが好ましい。芳香族ポリエステルアミドとは、少なくとも1つの芳香環を有し、かつ、エステル結合及びアミド結合を有する樹脂である。中でも、耐熱性の観点から、芳香族ポリエステルアミドは、全芳香族ポリエステルアミドであることが好ましい。

[0089] 芳香族ポリエステルアミドは、結晶性ポリマーであることが好ましい。層Aは、結晶性の芳香族ポリエステルアミドを含むことが好ましい。層Aに含まれる芳香族ポリエステルアミドが結晶性であることで、誘電正接がより低下する。

なお、結晶性ポリマーとは、示差走査熱量測定（DSC）において、階段状の吸熱量変化ではなく、明確な吸熱ピークを有するものをいう。具体的には、例えば、昇温速度10℃/minで測定した際の吸熱ピークの半値幅が10℃以内であることを意味する。半値幅が10℃を超えるポリマー及び明確な吸熱ピークが認められないポリマーは、非晶性ポリマーとして結晶性ポリマーと区別される。

[0090] 芳香族ポリエステルアミドは、下記式1で表される構成単位、下記式2で表される構成単位、及び下記式3で表される構成単位を含むことが好ましい。



式1～式3中、 Ar^1 、 Ar^2 、及び Ar^3 はそれぞれ独立に、フェニレン基、ナフチレン基又はビフェニリレン基を表す。

以下、式1で表される構成単位等を、「単位1」等ともいう。

[0091] 単位1は、例えば、原料として芳香族ヒドロキシカルボン酸を用いること

により、導入することができる。

単位2は、例えば、原料として芳香族ジカルボン酸を用いることにより、導入することができる。

単位3は、例えば、原料として芳香族ヒドロキシルアミンを用いることにより、導入することができる。

[0092] ここで、芳香族ヒドロキシカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、及び芳香族ヒドロキシルアミンはそれぞれ独立に、重縮合可能な誘導体に置き換えてもよい。

[0093] 例えば、カルボキシ基をアルコキシカルボニル基又はアリーロキシカルボニル基に変換することにより、芳香族ヒドロキシカルボン酸及び芳香族ジカルボン酸を、芳香族ヒドロキシカルボン酸エステル及び芳香族ジカルボン酸エステルに置き換えることができる。

カルボキシ基をハロホルミル基に変換することにより、芳香族ヒドロキシカルボン酸及び芳香族ジカルボン酸を、芳香族ヒドロキシカルボン酸ハロゲン化物及び芳香族ジカルボン酸ハロゲン化物に置き換えることができる。

カルボキシ基をアシルオキシカルボニル基に変換することにより、芳香族ヒドロキシカルボン酸及び芳香族ジカルボン酸を、芳香族ヒドロキシカルボン酸無水物及び芳香族ジカルボン酸無水物に置き換えることができる。

芳香族ヒドロキシカルボン酸及び芳香族ヒドロキシアミンのようなヒドロキシ基を有する化合物の重縮合可能な誘導体の例としては、ヒドロキシ基をアシル化してアシルオキシ基に変換してなるもの（アシル化物）が挙げられる。

例えば、ヒドロキシ基をアシル化してアシルオキシ基に変換することにより、芳香族ヒドロキシカルボン酸及び芳香族ヒドロキシルアミンをそれぞれ、アシル化物に置き換えることができる。

芳香族ヒドロキシルアミンの重縮合可能な誘導体の例としては、アミノ基をアシル化してアシルアミノ基に変換してなるもの（アシル化物）が挙げられる。

例えば、アミノ基をアシル化してアシルアミノ基に変換することにより、芳香族ヒドロキシアミンをアシル化物に置き換えることができる。

[0094] 式1中、 $A r^1$ は、*p*-フェニレン基、2, 6-ナフチレン基、又は4, 4'-ビフェニリレン基であることが好ましく、2, 6-ナフチレン基であることがより好ましい。

[0095] $A r^1$ が*p*-フェニレン基である場合、単位1は、例えば、*p*-ヒドロキシア安息香酸に由来する構成単位である。

$A r^1$ が2, 6-ナフチレン基である場合、単位1は、例えば、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸に由来する構成単位である。

$A r^1$ が4, 4'-ビフェニリレン基である場合、単位1は、例えば、4'-ヒドロキシ-4-ビフェニルカルボン酸に由来する構成単位である。

[0096] 式2中、 $A r^2$ は、*p*-フェニレン基、*m*-フェニレン基、又は2, 6-ナフチレン基であることが好ましく、*m*-フェニレン基であることがより好ましい。

[0097] $A r^2$ が*p*-フェニレン基である場合、単位2は、例えば、テレフタル酸に由来する構成単位である。

$A r^2$ が*m*-フェニレン基である場合、単位2は、例えば、イソフタル酸に由来する構成単位である。

$A r^2$ が2, 6-ナフチレン基である場合、単位2は、例えば、2, 6-ナフタレンジカルボン酸に由来する構成単位である。

[0098] 式3中、 $A r^3$ は、*p*-フェニレン基又は4, 4'-ビフェニリレン基であることが好ましく、*p*-フェニレン基であることがより好ましい。

[0099] $A r^3$ が*p*-フェニレン基である場合、単位3は、例えば、*p*-アミノフェノールに由来する構成単位である。

$A r^3$ が4, 4'-ビフェニリレン基である場合、単位3は、例えば、4-アミノ-4'-ヒドロキシビフェニルに由来する構成単位である。

[0100] 単位1、単位2、及び単位3の合計含有量に対して、単位1の含有量は、30モル%以上であることが好ましく、単位2の含有量は、35モル%以下

であることが好ましく、単位3の含有量は35モル%以下であることが好ましい。

単位1の含有量は、単位1、単位2、及び単位3の合計含有量に対して、30モル%～80モル%であることがより好ましく、30モル%～60モル%であることがさらに好ましく、30モル%～40モル%であることが特に好ましい。

単位2の含有量は、単位1、単位2、及び単位3の合計含有量に対して、10モル%～35モル%であることが好ましく、20モル%～35モル%であることがさらに好ましく、30モル%～35モル%であることが特に好ましい。

単位3の含有量は、単位1、単位2、及び単位3の合計含有量に対して、10モル%～35モル%であることが好ましく、20モル%～35モル%であることがさらに好ましく、30モル%～35モル%であることが特に好ましい。

なお、各構成単位の合計含有量は、各構成単位の物質量（モル）を合計した値である。各構成単位の物質量は、芳香族ポリエステルアミドを構成する各構成単位の質量を、各構成単位の式量で割ることにより算出される。

[0101] 単位2の含有量と単位3の含有量との比率は、 $[\text{単位2の含有量}] / [\text{単位3の含有量}]$ （モル／モル）で表した場合に、好ましくは $0.9 / 1 \sim 1 / 0.9$ 、より好ましくは $0.95 / 1 \sim 1 / 0.95$ 、さらに好ましくは $0.98 / 1 \sim 1 / 0.98$ である。

[0102] なお、芳香族ポリエステルアミドは、単位1～単位3をそれぞれ独立に、2種以上有してもよい。また、芳香族ポリエステルアミドは、単位1～単位3以外の他の構成単位を有してもよい。他の構成単位の含有量は、全構成単位の合計含有量に対して、好ましくは10モル%以下、より好ましくは5モル%以下である。

[0103] 芳香族ポリエステルアミドは、芳香族ポリエステルアミドを構成する構成単位に対応する原料モノマーを溶融重合させることにより製造することが好

ましい。

[0104] 芳香族ポリエステルアミドの重量平均分子量は、1,000,000以下であることが好ましく、3,000~300,000であることがより好ましく、5,000~100,000であることがさらに好ましく、5,000~30,000であることが特に好ましい。

[0105] フッ素樹脂—

誘電正接が0.01以下であるポリマーは、耐熱性、及び、力学的強度の観点から、フッ素樹脂であってもよい。

[0106] 本開示において、フッ素樹脂の種類は特に限定されず、公知のフッ素樹脂を用いることができる。

[0107] フッ素樹脂としては、フッ素化 α -オレフィンモノマー、すなわち、少なくとも1つのフッ素原子を含む α -オレフィンモノマーに由来する構成単位を含むホモポリマー、及び、コポリマーが挙げられる。また、フッ素樹脂としては、フッ素化 α -オレフィンモノマーに由来する構成単位と、フッ素化 α -オレフィンモノマーに対して反応性の非フッ素化エチレン性不飽和モノマーに由来する構成単位と、を含むコポリマーが挙げられる。

[0108] フッ素化 α -オレフィンモノマーとしては、 $\text{CF}_2=\text{CF}_2$ 、 $\text{CHF}=\text{CF}_2$ 、 $\text{CH}_2=\text{CF}_2$ 、 $\text{CHCl}=\text{CHF}$ 、 $\text{CClF}=\text{CF}_2$ 、 $\text{CCl}_2=\text{CF}_2$ 、 $\text{CClF}=\text{CClF}$ 、 $\text{CHF}=\text{CCl}_2$ 、 $\text{CH}_2=\text{CClF}$ 、 $\text{CCl}_2=\text{CClF}$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}=\text{CF}_2$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}=\text{CHF}$ 、 $\text{CF}_3\text{CH}=\text{CF}_2$ 、 $\text{CF}_3\text{CH}=\text{CH}_2$ 、 $\text{CHF}_2\text{CH}=\text{CHF}$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}=\text{CF}_2$ 、及びパーフルオロ（炭素数2~8のアルキル）ビニルエーテル（例えば、パーフルオロメチルビニルエーテル、パーフルオロプロピルビニルエーテル、及びパーフルオロオクチルビニルエーテル）が挙げられる。中でも、フッ素化 α -オレフィンモノマーは、テトラフルオロエチレン（ $\text{CF}_2=\text{CF}_2$ ）、クロロトリフルオロエチレン（ $\text{CClF}=\text{CF}_2$ ）、（パーフルオロブチル）エチレン、フッ化ビニリデン（ $\text{CH}_2=\text{CF}_2$ ）、及び、ヘキサフルオロプロピレン（ $\text{CF}_2=\text{CFCF}_3$ ）よりなる群から選ばれた少なくとも1種のモノマーであることが好ましい。

。

非フッ素化エチレン性不飽和モノマーとしては、エチレン、プロピレン、ブテン、エチレン性不飽和芳香族モノマー（例えば、スチレン及び α -メチルスチレン）等が挙げられる。

フッ素化 α -オレフィンモノマーは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

また、非フッ素化エチレン性不飽和モノマーは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0109] フッ素樹脂としては、例えば、ポリクロロトリフルオロエチレン（PCTFE）、ポリ（クロロトリフルオロエチレン-プロピレン）、ポリ（エチレン-テトラフルオロエチレン）（ETFE）、ポリ（エチレン-クロロトリフルオロエチレン）（ECTFE）、ポリ（ヘキサフルオロプロピレン）、ポリ（テトラフルオロエチレン）（PTFE）、ポリ（テトラフルオロエチレン-エチレン-プロピレン）、ポリ（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン）（FEP）、ポリ（テトラフルオロエチレン-プロピレン）（FEMP）、ポリ（テトラフルオロエチレン-パーフルオロプロピレンビニルエーテル）、ポリ（テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル）（PFA）（例えば、ポリ（テトラフルオロエチレン-パーフルオロプロピルビニルエーテル））、ポリビニルフルオリド（PVF）、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）、ポリ（フッ化ビニリデン-クロロトリフルオロエチレン）、パーフルオロポリエーテル、パーフルオロスルホン酸、及びパーフルオロポリオキセタンが挙げられる。

[0110] フッ素樹脂は、フッ素化エチレン又はフッ素化プロピレンに由来する構成単位を有していてもよい。

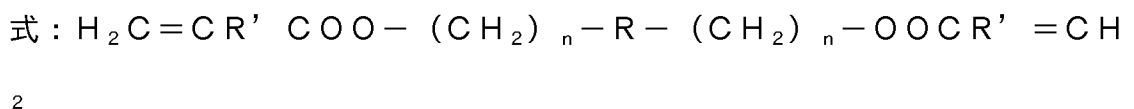
フッ素樹脂は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0111] フッ素樹脂は、FEP、PFA、ETFE、又は、PTFEであることが好ましい。

F E P は、デュポン (D u P o n t) 社よりテフロン (登録商標) F E P (T E F L O N (登録商標) F E P) の商品名、又は、ダイキン工業 (株) よりネオフロン F E P (N E O F L O N F E P) の商品名で入手可能である。P F A は、ダイキン工業 (株) よりネオフロン P F A (N E O F L O N P F A) の商品名、デュポン (D u P o n t) 社よりテフロン (登録商標) P F A (T E F L O N (登録商標) P F A) の商品名、又は、ソルベイ・ソレクシス (S o l v a y S o l e x i s) 社よりハイフロン P F A (H Y F L O N P F A) の商品名で入手可能である。

[0112] フッ素樹脂は、P T F E を含むことがより好ましい。P T F E は、P T F E ホモポリマー、一部が変性された P T F E ホモポリマー、又は、これらの一方若しくは両方を含む組合せであってもよい。一部が変性された P T F E ホモポリマーは、ポリマーの全質量を基準として、テトラフルオロエチレン以外のコモノマーに由来する構成単位を 1 質量%未満含むことが好ましい。

[0113] フッ素樹脂は、架橋性基を有する架橋性フルオロポリマーであってもよい。架橋性フルオロポリマーは、従来公知の架橋方法によって架橋させることができる。代表的な架橋性フルオロポリマーの 1 つは、(メタ) アクリロイルオキシを有するフルオロポリマーである。例えば、架橋性フルオロポリマーは、



で表すことができる。式中、R は、フッ素化 α -オレフィンモノマーに由来する構成単位を含むオリゴマー鎖であり、R' は H 又は $-\text{CH}_3$ であり、n は 1 ~ 4 である。R は、テトラフルオロエチレンに由来する構成単位を含むフッ素系オリゴマー鎖であってもよい。

[0114] フッ素樹脂上の (メタ) アクリロイルオキシ基を介してラジカル架橋反応を開始するために、(メタ) アクリロイルオキシ基を有するフルオロポリマーをフリーラジカル源に曝露することによって、架橋フルオロポリマー網目構造を形成することができる。フリーラジカル源は、特に制限はないが、光

ラジカル重合開始剤、又は、有機過酸化物が好適に挙げられる。適切な光ラジカル重合開始剤及び有機過酸化物は当技術分野においてよく知られている。架橋性フルオロポリマーは市販されており、例えば、デュポン社製のバイトンBが挙げられる。

[0115] ー環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物ー

誘電正接が0.01以下であるポリマーは、環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物であってもよい。

[0116] 環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物としては、例えば、ノルボルネン又は多環ノルボルネン系モノマーのような環状オレフィンモノマーに由来する構成単位を有する熱可塑性樹脂が挙げられる。

[0117] 環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物は、上記環状オレフィンの開環重合体や2種以上の環状オレフィンを用いた開環共重合体の水素添加物であってもよく、環状オレフィンと、鎖状オレフィン又はビニル基の如きエチレン性不飽和結合を有する芳香族化合物などとの付加重合体であってもよい。また、環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物には、極性基が導入されていてもよい。

[0118] 環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0119] 環状脂肪族炭化水素基の環構造としては、単環であっても、2以上の環が縮合した縮合環であっても、橋掛け環であってもよい。

環状脂肪族炭化水素基の環構造としては、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロオクタン環、イソボロン環、ノルボルナン環、ジシクロペンタン環等が挙げられる。

環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物としては、特に制限はなく、環状脂肪族炭化水素基を有する（メタ）アク

リレート化合物、環状脂肪族炭化水素基を有する（メタ）アクリルアミド化合物、環状脂肪族炭化水素基を有するビニル化合物等が挙げられる。中でも、環状脂肪族炭化水素基を有する（メタ）アクリレート化合物が好ましく挙げられる。また、環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物は、単官能エチレン性不飽和化合物であっても、多官能エチレン性不飽和化合物であってもよい。

環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物における環状脂肪族炭化水素基の数は、1以上であればよく、2以上有していてもよい。

環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物は、少なくとも1種の環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物を重合してなる重合体であればよく、2種以上環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物であってもよいし、環状脂肪族炭化水素基を有しない他のエチレン性不飽和化合物との共重合体であってもよい。

また、環状脂肪族炭化水素基とエチレン性不飽和結合を有する基とを有する化合物の重合物は、シクロオレフィンポリマーであることが好ましい。

[0120] ポリフェニレンエーテル

誘電正接が0.01以下であるポリマーは、ポリフェニレンエーテルであってもよい。

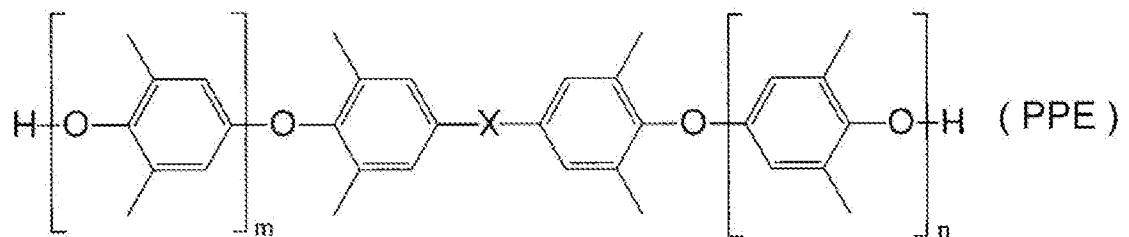
ポリフェニレンエーテルは、分子末端のフェノール性水酸基の1分子当たりの平均個数（末端水酸基数）が、誘電正接、及び、耐熱性の観点から、1個～5個であることが好ましく、1.5個～3個であることがより好ましい。

ポリフェニレンエーテルの末端水酸基数は、例えば、ポリフェニレンエーテルの製品の規格値からわかる。また、末端水酸基数は、例えば、ポリフェニレンエーテル1モル中に存在する全てのポリフェニレンエーテルの1分子当たりのフェノール性水酸基の個数の平均値として表される。

ポリフェニレンエーテルは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0121] ポリフェニレンエーテルとしては、例えば、2,6-ジメチルフェノールと2官能フェノール及び3官能フェノールの少なくともいずれか一方とからなるポリフェニレンエーテル、並びに、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)が挙げられる。ポリフェニレンエーテルは、より具体的には、式(PPE)で表される構造を有する化合物であることが好ましい。

[0122] [化1]



[0123] 式(PPE)中、Xは、炭素数1～3のアルキレン基又は単結合を表し、mは、0～20の整数を表し、nは、0～20の整数を表し、mとnとの合計は、1～30の整数を表す。

上記Xにおける上記アルキレン基としては、例えば、ジメチルメチレン基が挙げられる。

[0124] ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量(Mw)は、製膜後に熱硬化する場合には、耐熱性、及び、膜形成性の観点から、500～5,000であることが好ましく、500～3,000であることが好ましい。また、熱硬化しない場合には、特に限定されないが、3,000～100,000であることが好ましく、5,000～50,000であることが好ましい。

[0125] ー芳香族ポリエーテルケトンー

誘電正接が0.01以下であるポリマーは、芳香族ポリエーテルケトンであってもよい。

[0126] 芳香族ポリエーテルケトンとしては、特に限定されず、公知の芳香族ポリエーテルケトンを用いることができる。

[0127] 芳香族ポリエーテルケトンは、ポリエーテルエーテルケトンであることが好ましい。

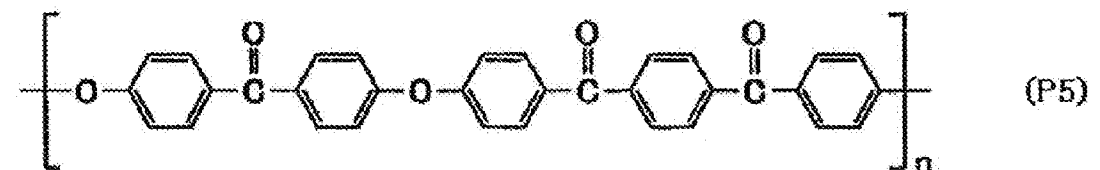
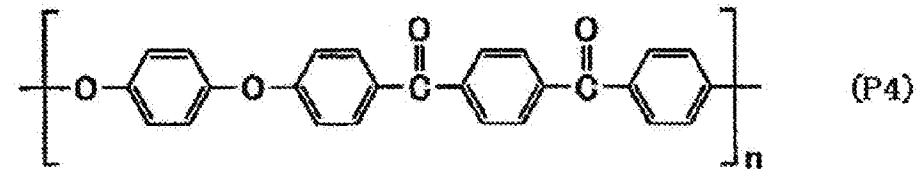
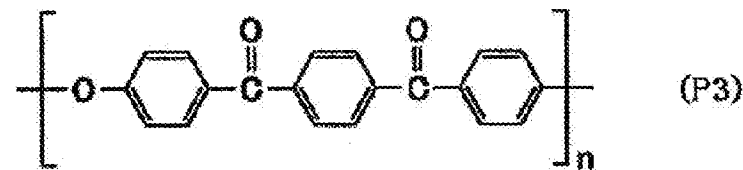
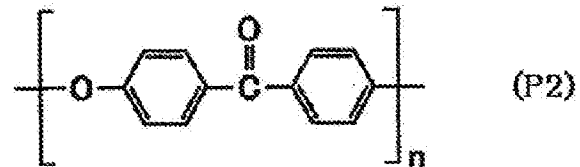
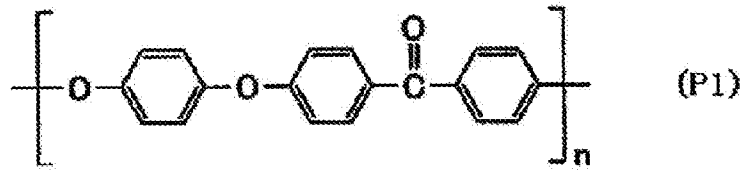
[0128] ポリエーテルエーテルケトンは、芳香族ポリエーテルケトンの1種であり、エーテル結合、エーテル結合、及びカルボニル結合の順に結合が配置されたポリマーである。各結合間は、2価の芳香族基により連結されていることが好ましい。

芳香族ポリエーテルケトンは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0129] 芳香族ポリエーテルケトンとしては、例えば、下記式（P 1）で表される化学構造を有するポリエーテルエーテルケトン（P E E K）、下記式（P 2）で表される化学構造を有するポリエーテルケトン（P E K）、下記式（P 3）で表される化学構造を有するポリエーテルケトンケトン（P E K K）、下記式（P 4）で表される化学構造を有するポリエーテルエーテルケトンケトン（P E E K K）、及び下記式（P 5）で表される化学構造を有するポリエーテルケトンエーテルケトンケトン（P E K E K K）が挙げられる。

[0130]

[化2]



[0131] 式(P1)～(P5)の各々のnは、機械的特性の観点から、10以上が好ましく、20以上がより好ましい。一方、芳香族ポリエーテルケトンを容易に製造できる点では、nは、5,000以下が好ましく、1,000以下がより好ましい。すなわち、nは、10～5,000が好ましく、20～1,000がより好ましい。

[0132] 誘電正接が0.01以下であるポリマーの含有量は、積層体の誘電正接の観点から、層Aの全質量に対し、10質量%以上であることが好ましく、20質量%以上であることがより好ましく、20質量%～100質量%である

ことが特に好ましい。

[0133] 誘電正接が0.01以下であるポリマーが液晶ポリマーである場合、積層体の誘電正接の観点から、層Aの全質量に対し、10質量%以上であることが好ましく、20質量%以上であることがより好ましく、20質量%～50質量%であることが特に好ましい。

[0134] 層Aは、誘電正接が0.01以下であるポリマー以外にフィラーを含んでいてもよい。

[0135] —フィラー—

フィラーとしては、粒子状でも繊維状のものでもよく、無機フィラーであってもよく、有機フィラーであってもよい。無機フィラー及び有機フィラーの具体例は上記のとおりである。

[0136] 中でも、層Aに含まれるフィラーは、積層体の誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、有機フィラーであることが好ましく、液晶ポリマー粒子であることがより好ましい。

[0137] 層Aは、フィラーを1種のみ含んでいても、2種以上含んでいてもよい。

層Aがフィラーを含む場合、フィラーの含有量は、積層体の誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、層Aの全質量に対し、30質量%～95質量%であることが好ましく、50質量%～90質量%であることがより好ましく、60質量%～80質量%であることが特に好ましい。

[0138] —その他の添加剤—

層Aは、上述した成分以外のその他の添加剤を含んでいてもよい。

層Aに含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様と同様である。

[0139] また、層Aは、その他の添加剤として、誘電正接が0.01以下であるポリマー以外の樹脂を含んでいてもよい。

誘電正接が0.01以下であるポリマー以外の樹脂の例としては、ポリプロピレン、ポリアミド、液晶ポリエステル以外のポリエステル、ポリフェニ

レンスルフィド、ポリエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリフェニレンエーテル及びその変性物、ポリエーテルイミド等の液晶ポリエステル以外の熱可塑性樹脂；グリシジルメタクリレートとポリエチレンとの共重合体等のエラストマー；フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、シアネート樹脂等の熱硬化性樹脂が挙げられる。

[0140] 層Aにおけるその他の添加剤の総含有量は、誘電正接が0.01以下であるポリマーの含有量100質量部に対して、好ましくは25質量部以下であり、より好ましくは10質量部以下であり、さらに好ましくは5質量部以下である。

[0141] 層Aの平均厚みは、特に制限はないが、積層体の誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、 $5\mu\text{m}$ ～ $90\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $10\mu\text{m}$ ～ $70\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $15\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であることが特に好ましい。

[0142] 本開示に係る積層体における各層の平均厚みの測定方法は、以下のとおりである。

[0143] 積層体を、積層体の面内方向に垂直な面で切断し、その断面において、5点以上厚みを測定し、それらの平均値を平均厚みとする。

[0144] 積層体の誘電正接を0.01以下とする観点から、層Aの誘電正接は0.01以下であることが好ましく、0.005以下であることがより好ましく、0を超え0.003以下であることがさらに好ましい。

[0145] <層B>

本開示に係る積層体は、上記層Aの少なくとも一方の面に層Bを有する。層Bは、表面層（最外層）であることが好ましい。

[0146] 層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含む。層Bに含まれるシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれるシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様と同様である。

[0147] 層Bは、積層体の誘電正接、及び、段差追従性の観点から、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含むことが

好ましい。層Bに含まれていてもよい熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよい熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂の好ましい態様と同様である。

[0148] 層Bは、積層体の誘電正接、耐熱性、及び段差追従性の観点から、フィラーを含むことがより好ましい。

[0149] 層Bに含まれていてもよいフィラーの好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよいフィラーの好ましい態様と同様である。

[0150] また、層Bに含まれるシルセスキオキサンポリマーが架橋性基を有する場合、シルセスキオキサンポリマー同士を架橋させるために、層Bは、重合開始剤を含むことが好ましい。層Bに含まれていてもよい重合開始剤の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよい重合開始剤の好ましい態様と同様である。

[0151] 層Bは、上記以外のその他の添加剤を含んでいてもよい。

層Bに含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様と同様である。

[0152] 層Bは、表面層（最外層）であることが好ましい。層Bは段差追従性に優れるため、金属配線との貼り合わせにおいて、密着性に優れる。

[0153] 層Bの平均厚みは、耐熱性及び段差追従性の観点から、 $10\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $15\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $20\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

[0154] 積層体の誘電正接を 0.01 以下とする観点から、層Bの誘電正接は 0.01 以下であることが好ましく、 0.006 以下であることがより好ましく、 0 を超え 0.004 以下であることがさらに好ましい。

[0155] 段差追従性の観点から、層Bの 160°C における弾性率は、 0.5MPa 以下であることが好ましく、 0.3MPa 以下であることがより好ましい。弾性率の下限値は特に限定されないが、耐熱性の観点から、 0.01MPa であることが好ましい。

[0156] 本開示において、層Bの160℃における弾性率は、以下の方法で測定される。

[0157] まず、積層体をミクロトーム等で断面切削し、光学顕微鏡で観察した画像から、層Bを特定する。次に、特定した層Bにおける弾性率を、ナノインデントーション法を用いて、押し込み弾性率として測定する。押し込み弾性率は、微小硬度計（製品名「DUH-W201」、（株）島津製作所製）を用い、160℃において、ビッカース圧子により0.28mN/秒の荷重速度で負荷をかけ、最大荷重10mNを10秒間保持した後に、0.28mN/秒の荷重速度で除荷を行うことにより、測定する。

[0158] 本開示に係る積層体は、耐熱性及び段差追従性の観点から、上記層A及び上記層Bに加え、層Cをさらに有することが好ましく、上記層Bと、上記層Aと、上記層Cとをこの順で有することがより好ましい。

[0159] <層C>

層Cは、接着層であることが好ましい。すなわち、層Cは、表面層（最外層）であることが好ましい。

[0160] 層Cは、積層体の誘電正接の観点から、少なくとも1種のポリマーを含むことが好ましい。

[0161] 層Cに用いられるポリマーの好ましい態様は、層Aに用いられる、誘電正接が0.01以下のポリマーの好ましい態様と同様である。

[0162] 層Cに含まれるポリマーは、層A又は層Bに含まれるポリマーと同じであってもよく、異なってもよいが、層Aと層Cとの密着性の観点から、層Aに含まれるポリマーと同じであることが好ましい。

[0163] また、層Cは、金属層と層Aとを接着させるため、エポキシ樹脂を含むことが好ましい。

[0164] エポキシ樹脂は、多官能エポキシ化合物の架橋体であることが好ましい。多官能エポキシ化合物とは、エポキシ基を2つ以上有する化合物のことをいう。多官能エポキシ化合物におけるエポキシ基の数は、2～4であることが好ましい。

[0165] 特に、層Cは、積層体の誘電正接、及び、金属層との接着性の観点から、芳香族ポリエステルアミド及びエポキシ樹脂を含むことが好ましい。

[0166] 層Cは、フィラーを含んでいてもよい。

層Cに用いられるフィラーの好ましい態様は、層Aに用いられるフィラーの好ましい態様と同様である。

[0167] 層Cは、上記以外のその他の添加剤を含んでいてもよい。

層Cに用いられるその他の添加剤の好ましい態様は、後述する以外、層Aに用いられるその他の添加剤の好ましい態様と同様である。

[0168] 層Cの平均厚みは、積層体の誘電正接、及び、金属との密着性の観点から、層Aの平均厚みよりも薄いことが好ましい。

[0169] 層Aの平均厚み T^A と層Cの平均厚み T^C との比である T^A/T^C の値は、積層体の誘電正接、及び、金属層との密着性の観点から、1より大きいことが好ましく、2～100であることがより好ましく、2.5～20であることがさらに好ましく、3～10であることが特に好ましい。

層Bの平均厚み T^B と層Cの平均厚み T^C との比である T^B/T^C の値は、積層体の誘電正接、及び、金属層との密着性の観点から、1より大きいことが好ましく、2～100であることがより好ましく、2.5～20であることがさらに好ましく、3～10であることが特に好ましい。

[0170] さらに、層Cの平均厚みは、フィルムの誘電正接、及び、金属層との密着性の観点から、 $0.1\mu\text{m} \sim 20\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.5\mu\text{m} \sim 15\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $1\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m}$ であることがさらに好ましく、 $2\mu\text{m} \sim 8\mu\text{m}$ であることが特に好ましい。

[0171] 本開示に係る積層体の平均厚みは、強度、及び、金属層との積層体にした際の電気特性（特性インピーダンス）の観点から、 $6\mu\text{m} \sim 200\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $12\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $20\mu\text{m} \sim 80\mu\text{m}$ であることが特に好ましい。

[0172] 積層体の平均厚みは、任意の5箇所について、接着式の膜厚計、例えば、

電子マイクロメータ（製品名「K G 3 0 0 1 A」、アンリツ社製）を用いて測定し、それらの平均値とする。

[0173] ＜積層体の物性＞

本開示に係る積層体は、誘電正接が0.01以下であることが好ましく、0.006以下であることがより好ましく、0を超え0.004以下であることがさらに好ましい。

[0174] ＜積層体の製造方法＞

（製膜）

本開示に係る積層体の製造方法は、特に制限はなく、公知の方法を参照することができる。

[0175] 製膜方法としては、例えば、共流延法、重層塗布法、共押出法等が好適に挙げられる。中でも、製膜方法は、共流延法であることが好ましい。

[0176] 積層体における多層構造を共流延法又は重層塗布法により製造する場合、液晶ポリマー等の各層の成分をそれぞれ溶媒に溶解又は分散した層A形成用組成物、層B形成用組成物、層C形成用組成物等を用いて、共流延法又は重層塗布法を行うことが好ましい。

[0177] 溶媒としては、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、1,1-ジクロロエタン、1,2-ジクロロエタン、1,1,2,2-テトラクロロエタン、1-クロロブタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；p-クロロフェノール、ペンタクロロフェノール、ペンタフルオロフェノール等のハロゲン化フェノール；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン等のエーテル；アセトン、シクロヘキサノン等のケトン；酢酸エチル、γ-ブチロラクトン等のエステル；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート等のカーボネート；トリエチルアミン等のアミン；ピリジン等の含窒素複素環芳香族化合物；アセトニトリル、スクシニトリル等のニトリル；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン等のアミド、テトラメチル尿素等の尿素化合物；ニトロメタン、ニトロベンゼン等のニトロ化合物；ジメチル

スルホキシド、スルホラン等の硫黄化合物；ヘキサメチルリン酸アミド、トリ n-ブチルリン酸等のリン化合物等が挙げられ、それらを2種以上用いてもよい。

[0178] 溶媒としては、腐食性が低く、取り扱い易いことから、非プロトン性化合物、特にハロゲン原子を有しない非プロトン性化合物を主成分とする溶媒が好ましく、溶媒全体に占める非プロトン性化合物の割合は、好ましくは50質量%～100質量%、より好ましくは70質量%～100質量%、特に好ましくは90質量%～100質量%である。また、上記非プロトン性化合物としては、液晶ポリマーを溶解し易いことから、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、テトラメチル尿素、N-メチルピロリドン等のアミド又はγ-ブチロラクトン等のエステルを用いることが好ましく、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、及びN-メチルピロリドンがより好ましい。

[0179] また、溶媒としては、液晶ポリマーを溶解し易いことから、双極子モーメントが3～5である化合物を主成分とする溶媒が好ましく、溶媒全体に占める双極子モーメントが3～5である化合物の割合は、好ましくは50質量%～100質量%、より好ましくは70質量%～100質量%、特に好ましくは90質量%～100質量%である。

上記非プロトン性化合物として、双極子モーメントが3～5である化合物を用いることが好ましい。

[0180] また、溶媒としては、除去し易いことから、1気圧における沸点が220℃以下である化合物を主成分とする溶媒が好ましく、溶媒全体に占める1気圧における沸点が220℃以下である化合物の割合は、好ましくは50質量%～100質量%、より好ましくは70質量%～100質量%、特に好ましくは90質量%～100質量%である。

上記非プロトン性化合物として、1気圧における沸点が220℃以下である化合物を用いることが好ましい。

[0181] また、本開示に係る積層体の製造方法は、上記共流延法、重層塗布法及び

共押出法等により製造する場合、支持体を使用してもよい。

支持体としては、例えば、金属ドラム、金属バンド、ガラス板、樹脂フィルム又は金属箔が挙げられる。中でも、支持体は、金属ドラム、金属バンド、又は樹脂フィルムが好ましい。

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリイミド（PI）フィルムが挙げられ、市販品の例としては、宇部興産（株）製UーピレックスS及びUーピレックスR、東レデュポン（株）製カプトン、並びに、SKCコーロンPI社製IF30、IF70及びLV300等が挙げられる。

また、支持体は、容易に剥離できるように、表面に表面処理層が形成されていてもよい。表面処理層は、ハードクロムメッキ、フッ素樹脂等を用いることができる。

支持体の平均厚みは、特に制限はないが、好ましくは $25\ \mu\text{m}$ 以上 $75\ \mu\text{m}$ 以下であり、より好ましくは $50\ \mu\text{m}$ 以上 $75\ \mu\text{m}$ である。

[0182] また、流延、又は、塗布された膜状の組成物（塗膜）から溶媒の少なくとも一部を除去する方法としては、特に制限はなく、公知の乾燥方法を用いることができる。

[0183] （延伸）

本開示に係る積層体は、分子配向を制御し、熱膨張係数や力学物性を調整する観点で、適宜、延伸を組み合わせることができる。延伸の方法は、特に制限はなく、公知の方法を参照することができ、溶媒を含んだ状態で実施してもよく、乾膜の状態で実施してもよい。溶媒を含んだ状態での延伸は、積層体を把持して伸長してもよく、伸長せずに乾燥による自己収縮を利用して実施してもよい。延伸は、無機フィラー等の添加によってフィルム脆性が低下した場合に、破断伸度や破断強度を改善する目的で特に有効である。

[0184])

<用途>

本開示に係る積層体は、種々の用途に用いることができる、中でも、プリント配線板などの電子部品用フィルムに好適に用いることができ、フレキシ

ブルプリント回路基板により好適に用いることができる。

また、本開示に係る積層体は、金属接着用液晶ポリマーフィルムとして好適に用いることができる。

[0185] [配線基板]

本開示に係る配線基板は、基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、配線パターン間及び配線パターン上に配置された層Bと、層B上に配置された層Aと、を備え、層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下である。

また、本開示に係る配線基板は、基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、配線パターン間及び配線パターン上に配置された層Bと、層B上に配置された層Aと、を備え、層Bは、本開示に係るポリマーフィルムであってもよい。

[0186] 本開示に係る配線基板は、シルセスキオキサンポリマーを含むことから、配線パターン周辺における隙間が低減されており、かつ、耐熱性に優れる。

[0187] <基材>

基材の材質は特に限定されないが、樹脂を含むことが好ましく、液晶ポリマーを含むことが好ましく、液晶ポリマーフィルムであることがより好ましい。

[0188] 基材の平均厚みは特に限定されないが、 $5\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $10\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $20\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

[0189] <配線パターン>

本開示に係る配線基板は、基材の少なくとも一方の面上に配線パターンを有する。配線パターン間及び配線パターン上には層Bが配置されていることから、本開示に係る配線基板において、配線パターンは埋設されている。配線パターンは、例えば、以下の方法により、配線基板に埋設させることができる。まず、基材上に金属層を形成し、金属層をパターン状にエッチングする。これにより、配線パターン付き基材が得られる。次に、配線パターン付

き基材と、層A及び層Bを有する他の基材とを、配線パターン付き基材における配線パターンと層Bとが接するように重ねる。配線パターン付き基材と他の基材とを重ねた後、貼り合わせてもよいし熱融着してもよい。これにより、配線パターンが埋設された配線基板が得られる。

[0190] 配線パターンの材質は特に限定されないが、金属であることが好ましく、銀又は銅であることがより好ましい。

[0191] 配線パターンの厚さは特に限定されないが、 $5\mu\text{m}\sim40\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $5\mu\text{m}\sim35\mu\text{m}$ であることがより好ましい。

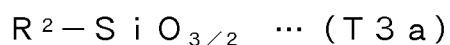
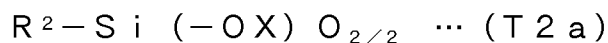
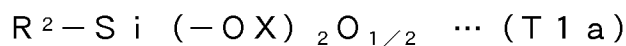
[0192] 配線パターンの厚さは、ミクロトームで配線基板を切削し、光学顕微鏡で観察することにより、測定される。

[0193] <層B>

本開示に係る配線基板は、配線パターン間及び配線パターン上に層Bを有する。層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含む。

[0194] 本開示に係る配線基板の製造工程では加熱処理を行うことが好ましく、本開示に係る配線基板における層Bに含まれるシルセスキオキサンポリマーは、原料として用いられるシルセスキオキサンポリマーが熱硬化されたものであることが好ましい。すなわち、原料として、架橋性基を有するシルセスキオキサンポリマーを用いた場合には、層Bは、分子間で架橋している架橋構造を有するシルセスキオキサンポリマーを含むことが好ましい。

[0195] シルセスキオキサンポリマーは、下記式(T1a)で表される部分構造、下記式(T2a)で表される部分構造、及び下記(T3a)で表される部分構造からなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。



式(T1a)～式(T3a)中、 R^2 はそれぞれ独立に、有機基を表し、各 R^2 は互いに連結していてもよい。Xは、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

- [0196] 各 R^2 が互いに連結していない場合には、 R^2 としては、上記式 (T 1) ~ 式 (T 3) における R^1 と同様のものが挙げられる。
- [0197] 各 R^2 が互いに連結している場合には、 R^2 は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも 1 種の架橋性基に由来する構造を含むことが好ましい。具体的に、架橋性基に由来する構造とは、架橋性基の重合により得られる構造を意味する。
- [0198] また、耐熱性の観点から、シルセスキオキサンポリマーは、式 (T 2 a) で表される部分構造及び式 (T 3 a) で表される部分構造を含み、式 (T 2 a) で表される部分構造に対する式 (T 3 a) で表される部分構造のモル比が 50 以上であることが好ましく、70 以上であることがより好ましい。上記モル比の上限値は特に限定されない。
- [0199] 式 (T 2 a) で表される部分構造に対する式 (T 3 a) で表される部分構造のモル比は、 ^{29}Si -NMR のピーク面積比から算出される。
- [0200] シルセスキオキサンポリマーの含有量は、誘電正接及び耐熱性の観点から、層 B の全質量に対し、50 質量%~100 質量%であることが好ましく、60 質量%~90 質量%であることがより好ましい。
- [0201] 層 B は、誘電正接、及び、段差追従性の観点から、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含むことが好ましい。本開示に係る配線基板における層 B に含まれていてもよい熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよい熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂の好ましい態様と同様である。
- [0202] 層 B は、誘電正接及び耐熱性の観点から、フィラーを含むことがより好ましい。
- [0203] 層 B に含まれていてもよいフィラーの好ましい態様は、本開示に係る積層体における層 B に含まれていてもよいフィラーの好ましい態様と同様である。
- [0204] 層 B は、上記以外のその他の添加剤を含んでいてもよい。
層 B に含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様は、本開示に係る

るポリマーフィルムに含まれていてもよいその他の添加剤の好ましい態様と同様である。

[0205] 層Bは、最も厚い部分の厚さが、 $10\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $15\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $20\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。ここでいう最も厚い部分とは、配線パターンが埋設されていない部分を意味する。

[0206] <層A>

本開示に係る配線基板は、層Bが設けられる層Aを有する。層Aの好ましい態様は、本開示に係る積層体に含まれる層Aの好ましい態様と同様である。

[0207] 本開示に係る配線基板は、耐熱性の観点から、上記層A及び上記層Bに加え、層Cをさらに有することが好ましく、層Cは、層A上に配置されていることが好ましい。層Cの好ましい態様は、本開示に係る積層体に含まれていてもよい層Cの好ましい態様と同様である。

[0208] <配線基板の製造方法>

(第1態様)

本開示に係る配線基板の製造方法における第1態様は、配線パターン付き基材の配線パターン上に、本開示に係る積層体を重ね合わせる工程と、配線パターン付き基材と本開示に係る積層体とを重ね合わせた状態で加熱して、配線基板を得る工程と、を含むことが好ましい。配線パターン付き基材と積層体とは、配線パターン付き基材の配線パターンと、積層体における層Bとが接するように重ね合わせる。

[0209] ー重ね合わせ工程ー

本開示に係る配線基板の製造方法の第1態様では、配線パターン付き基材の配線パターン上に、本開示に係る積層体を重ね合わせる。

[0210] 積層体を重ね合わせる場合、配線パターン上に積層体を載置するだけでもよいし、圧力を加えて押し付けながら配線パターン上に積層体を圧接するようにしてもよい。

[0211] 配線パターン付き基材は、基材の一方の面にのみ配線パターンが形成されていてもよく、基材の両方の面に配線パターンが形成されていてもよい。

[0212] 配線パターン付き基材は、公知の方法を用いて作製することができる。例えば、基材の少なくとも一方の面に金属層を貼り合わせて、基材と、基材の少なくとも一方の面に配置された金属層と、を備える配線基板を得る。金属層に対して、公知のパターニング処理を施すことにより、配線パターン付き基材が得られる。

[0213] 配線パターン付き基材における基材及び配線パターンの好ましい態様は、上記配線基板の欄で説明した基材及び配線パターンの好ましい態様と同様である。

[0214] ー加熱工程ー

本開示の配線基板の製造方法の第1態様では、上記重ね合わせ工程の後、配線パターン付き基材と本開示に係る積層体とを重ね合わせた状態で加熱して、配線基板を得る。

[0215] 加熱方法は特に限定されず、例えば、熱プレス機を用いて行うことができる。

[0216] 加熱温度は、50℃～300℃であることが好ましく、100℃～250℃であることがより好ましい。

[0217] 加熱する際に、加圧することが好ましい。圧力は、0.5 MPa～30 MPaであることが好ましく、1 MPa～20 MPaであることがより好ましい。

[0218] 加熱時間は特に限定されず、例えば、1分～2時間である。

[0219] (第2態様)

本開示に係る配線基板の製造方法の第2態様は、支持体上に層A形成用溶液を塗布して層Aを形成する工程と、層A上に、本開示に係るポリマーフィルムと、配線パターン付き基材とをこの順に重ね合わせる工程と、層Aが形成された支持体、本開示に係るポリマーフィルム、及び配線パターン付き基材を重ね合わせた状態で加熱して、配線基板を得る工程と、を含むことが好

ましい。ポリマーフィルムと配線パターン付き基材とは、配線パターン付き基材の配線パターンと、ポリマーフィルムとが接するように重ね合わせる。

[0220] 支持体としては、上記積層体の製造方法で用いられる支持体と同様のものが挙げられる。

[0221] 配線パターン付き基材の詳細は、上記第1態様と同様である。

[0222] 加熱工程の詳細は、上記第1態様と同様である。

[0223] <用途>

本開示に係る配線基板は、種々の用途に用いることができる、中でも、本開示に係る配線基板は、フレキシブルプリント回路基板に好適に用いることができる。

[0224] [シルセスキオキサンポリマー]

本開示に係るシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれるシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様と同様である。

[0225] 本開示に係るシルセスキオキサンポリマーは、誘電正接が0.01以下であり、0.006以下であることが好ましく、0.005以下であることがより好ましく、0.003以下であることがさらに好ましく、0.0025以下であることが特に好ましい。また、本開示に係るシルセスキオキサンポリマーの誘電正接は0を超え0.01以下であることが好ましい。

[0226] [ポリマー組成物]

本開示に係るポリマー組成物は、本開示に係るシルセスキオキサンポリマーを含む。

本開示に係るポリマー組成物に含まれるシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれるシルセスキオキサンポリマーの好ましい態様と同様である。

[0227] 本開示に係るポリマー組成物は、シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含むことが好ましい。

本開示に係るポリマー組成物に含まれていてもよい熱可塑性樹脂又は熱硬

化性樹脂の好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよい熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂の好ましい態様と同様である。

[0228] 本開示に係るポリマー組成物は、無機フィラーをさらに含むことが好ましい。

本開示に係るポリマー組成物に含まれていてもよい無機フィラーの好ましい態様は、本開示に係るポリマーフィルムに含まれていてもよい無機フィラーの好ましい態様と同様である。

実施例

[0229] 以下に実施例を挙げて本開示をさらに具体的に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、処理手順等は、本開示の趣旨を逸脱しない限り、適宜、変更することができる。したがって、本開示の範囲は以下に示す具体例に限定されるものではない。

[0230] 片面銅張複層フィルム（積層体）及びボンディングシート（ポリマーフィルム）の作製に用いた各材料の詳細は以下のとおりである。

[0231] <<片面銅張複層フィルムにおける層Aの材料>>

<ポリマー>

- ・ P 1 : 下記製造方法に従って作製した芳香族ポリエステルアミド
- ・ P 6 : ポリフェニレンエーテル樹脂（製品名「S 2 0 2 A」、旭化成ケミカルズ社製

[0232] ー芳香族ポリエステルアミド P 1 の合成ー

攪拌装置、トルクメータ、窒素ガス導入管、温度計、及び還流冷却器を備えた反応器に、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸 940.9 g（5.0 モル）、イソフタル酸 415.3 g（2.5 モル）、アセトアミノフェン 377.9 g（2.5 モル）、及び無水酢酸 867.8 g（8.4 モル）を入れ、反応器内のガスを窒素ガスで置換した後、窒素ガス気流下、攪拌しながら、室温（23℃、以下同じ）から140℃まで60分かけて昇温し、140℃で3時間還流させた。

次いで、副生酢酸及び未反応の無水酢酸を留去しながら、150℃から3

00℃まで5時間かけて昇温し、300℃で30分保持した。その後、反応器から内容物を取り出し、室温まで冷却した。得られた固形物を、粉砕機で粉砕して、粉末状の芳香族ポリエステルアミドA1aを得た。芳香族ポリエステルアミドA1aの流動開始温度は、193℃であった。また、芳香族ポリエステルアミドA1aは、全芳香族ポリエステルアミドであった。

芳香族ポリエステルアミドA1aを、窒素雰囲気下、室温から160℃まで2時間20分かけて昇温し、次いで160℃から180℃まで3時間20分かけて昇温し、180℃で5時間保持することにより固相重合させた後、冷却した。次いで、粉砕機で粉砕して、粉末状の芳香族ポリエステルアミドA1bを得た。芳香族ポリエステルアミドA1bの流動開始温度は、220℃であった。

芳香族ポリエステルアミドA1bを、窒素雰囲気下、室温から180℃まで1時間25分かけて昇温し、次いで180℃から255℃まで6時間40分かけて昇温し、255℃で5時間保持することにより固相重合させた後、冷却して、粉末状の芳香族ポリエステルアミドP1を得た。

芳香族ポリエステルアミドP1の流動開始温度は、302℃であった。また、芳香族ポリエステルアミドP1の融点を、示差走査熱量分析装置を用いて測定した結果、311℃であった。芳香族ポリエステルアミドP1の誘電正接は、0.003であった。芳香族ポリエステルアミドP1は、140℃のN-メチルピロリドンに対する溶解度が1質量%以上であった。

[0233] <フィラー>

- ・PP-1：下記製造方法に従って作製した液晶ポリマー粒子
- ・PP-2：下記製造方法に従って作製した液晶ポリマー粒子

[0234] ー液晶ポリマー粒子PP-1の合成ー

攪拌装置、トルクメータ、窒素ガス導入管、温度計及び還流冷却器を備えた反応器に、2-ヒドロキシー-6-ナフトエ酸1034.99g（5.5モル）、2,6-ナフタレンジカルボン酸89.18g（0.41モル）、テレフタル酸236.06g（1.42モル）、4,4-ジヒドロキシビフェ

ニル 341.39 g (1.83 モル) 及び触媒として酢酸カリウムと酢酸マグネシウムを入れた。反応器内のガスを窒素ガスで置換した後、無水酢酸（水酸基に対して 1.08 モル当量）を更に添加した。窒素ガス気流下、撹拌しながら、室温から 150℃まで 15 分かけて昇温し、150℃で 2 時間還流させた。

次いで、副生した酢酸及び未反応の無水酢酸を留去しながら、150℃から 310℃まで 5 時間かけて昇温し、重合物を取り出して室温まで冷却した。得られた重合物を室温から 295℃まで 14 時間かけて昇温し、295℃で 1 時間固相重合した。固相重合後、5 時間かけて室温冷却し、液晶ポリマー粒子 PP-1 を得た。液晶ポリマー粒子 PP-1 は、メジアン径 (D50) が 7 μm であり、誘電正接が 0.0007 であり、融点が 334℃であった。

[0235] ー液晶ポリマー粒子 PP-2 の合成ー

国際公開第 2019/240153 号に記載の製造例 1 を参考にして、球状液晶ポリマー粒子を作製した。液晶ポリマー粒子 PP-2 は、メジアン径 (D50) が 10 μm であり、誘電正接が 0.0021 であり、融点が 325℃であった。

[0236] <<複層フィルムにおける層 B、及び、ボンディングシート<の材料>>

<シルセスキオキサンポリマー>

300 mL の三口フラスコにメチルトリメトキシシラン (0.3 mol)、メチルイソブチルケトン 75.0 g を混合し、外温 80℃で加熱しながら撹拌した。ここに 0.1 質量%の水酸化カリウム水溶液 18.0 g を 5 分間かけて等速滴下し、そのまま 5 時間加熱しながら撹拌した。加熱中、ディーンスターク装置を用いて還流されるメタノールを系外に除去しながら反応を行った。撹拌を止めて水浴にて室温 (25℃) まで冷却した後、メチルイソブチルケトン 150 g、5 質量%の食塩水 150 g を添加して、有機相を抽出した。有機相を 5 質量%の食塩水 150 g で 1 回、純水 150 g で 2 回、順次洗浄し、硫酸マグネシウム 45 g で乾燥した後、50℃35 mmHg の減

圧下で濃縮することにより、シルセスキオキサンポリマーSQ1のメチルイソブチルケトン溶液を得た。

シルセスキオキサンポリマーSQ2～SQ8については、シルセスキオキサンポリマーSQ1の合成に用いたメチルトリメトキシシランを、下記原料にそれぞれ変更することにより合成した。

シルセスキオキサンポリマーSQ9～SQ16については、シルセスキオキサンポリマーSQ1の合成に用いたメチルトリメトキシシラン0.3molを、下記2種の原料にそれぞれ変更し、下記の使用量に調整することにより合成した。

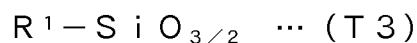
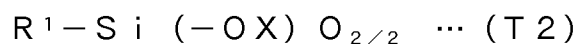
- ・SQ2の原料：フェニルトリメトキシシラン
- ・SQ3の原料：ビニルトリメトキシシラン
- ・SQ4の原料：アリルトリメトキシシラン
- ・SQ5の原料：スチリルトリメトキシシラン
- ・SQ6の原料：N-[3-(トリメトキシシリル)プロピル]マレインイミド
- ・SQ7の原料：[2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル]トリメトキシシラン
- ・SQ8の原料：メタクリル酸3-(トリメトキシシリル)プロピル
- ・SQ9の原料：スチリルトリメトキシシラン(0.15mol)／デシルトリメトキシシラン(0.15mol)
- ・SQ10の原料：スチリルトリメトキシシラン(0.075mol)／デシルトリメトキシシラン(0.225mol)
- ・SQ11の原料：スチリルトリメトキシシラン(0.15mol)／ヘキシルトリメトキシシラン(0.15mol)
- ・SQ12の原料：ビニルトリメトキシシラン(0.15mol)／デシルトリメトキシシラン(0.15mol)
- ・SQ13の原料：フェニルトリメトキシシラン(0.15mol)／ヘキシルトリメトキシシラン(0.15mol)

・SQ14の原料：フェニルトリメトキシシラン（0.15mol）／オクチルトリメトキシシラン（0.15mol）

・SQ15の原料：フェニルトリメトキシシラン（0.12mol）／ヘキシルトリメトキシシラン（0.18mol）

・SQ16の原料：フェニルトリメトキシシラン（0.18mol）／オクチルトリメトキシシラン（0.12mol）

[0237] シルセスキオキサソポリマーSQ1～SQ8はいずれも、式（T2）で表される部分構造及び下記式（T3）で表される部分構造を含んでいた。



[0238] ・SQ1：式（T2）及び式（T3）中、R¹はメチル基である。

・SQ2：式（T2）及び式（T3）中、R¹はフェニル基である。

・SQ3：式（T2）及び式（T3）中、R¹はビニル基である。

・SQ4：式（T2）及び式（T3）中、R¹はアリル基である。

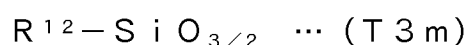
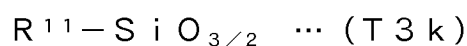
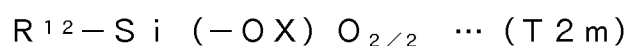
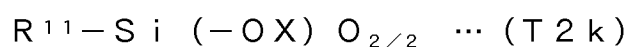
・SQ5：式（T2）及び式（T3）中、R¹はスチリル基である。

・SQ6：式（T2）及び式（T3）中、R¹は3-マレイミドプロピル基である。

・SQ7：式（T2）及び式（T3）中、R¹は2-（3,4-エポキシシクロヘキシル）エチル基である。

・SQ8：式（T2）及び式（T3）中、R¹はメタクリロイルオキシプロピル基である。

[0239] シルセスキオキサソポリマーSQ9～SQ16はいずれも、式（T2k）及び式（2m）で表される部分構造、並びに、下記式（T3k）及び式（T3m）で表される部分構造を含んでいた。



- [0240] ・ S Q 9 : 式 (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はスチリル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はデシル基である。
- ・ S Q 1 0 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はスチリル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はデシル基である。
- ・ S Q 1 1 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はスチリル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はヘキシル基である。
- ・ S Q 1 2 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はビニル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はデシル基である。
- ・ S Q 1 3 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はフェニル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はヘキシル基である。
- ・ S Q 1 4 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はフェニル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はオクチル基である。
- ・ S Q 1 5 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はフェニル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はヘキシル基である。
- ・ S Q 1 6 : (T 2 k) 及び式 (T 3 k) 中、 R ¹¹ はフェニル基であり、式 (T 2 m) 及び式 (T 3 m) 中、 R ¹² はオクチル基である。

[0241] <シリコーン樹脂>

- ・ S 1 : ジメチルポリシロキサン

[0242] <熱可塑性樹脂>

- ・ P 2 : スチレンーエチレンーブチレンーstyレンブロック共重合体、製品名「タフテックM1913」、旭化成ケミカルズ社製

[0243] <熱硬化性樹脂>

- ・ T 1 : ビスマレイミド樹脂、製品名「MIR-3000」、日本化薬社製

[0244] <重合開始剤 (熱ラジカル重合開始剤) >

- ・ V 1 : クメンヒドロペルオキシド

[0245] <フィラー>

- ・ F 1 : シリカ粒子、製品名「SC2500-SPJ」、(株) アドマテックス製

・ F 2 : ポリテトラフルオロエチレン (P T F E) 樹脂粒子、製品名「 T F - 9 2 0 5 」、 3 M 社製

[0246] 次に、複層フィルム及びボンディングシートを作製するために、層 A 形成用溶液、層 B 形成用溶液、層 C 形成用溶液を調製した。なお、ボンディングシートは、層 B 形成用溶液を用いて作製した。

[0247] 一層 A 形成用溶液の調製

表 1 に記載のポリマー及びフィラーを表 1 に記載の含有量 (質量 %) で混合し、 N - メチルピロリドンを加え、固形分濃度が 2 5 質量 % となるように調整し、層 A 形成用溶液を得た。

[0248] 一層 B 形成用溶液の調製

表 2 に記載のシルセスキオキサンポリマー、その他の樹脂 (熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂) 、重合開始剤、及びフィラーを、表 2 に記載の含有量 (質量 %) で混合し、メチルイソブチルケトンを加え、固形分濃度が 5 0 質量 % となるように調整し、層 B 形成用溶液を得た。

[0249] 一層 C 形成用溶液の調製

芳香族ポリエステルアミド P 1 8 質量部を、 N - メチルピロリドン 9 2 質量部に加え、窒素雰囲気下、 1 4 0 ° C 4 時間攪拌し、芳香族ポリエステルアミド溶液 P 1 (固形分濃度 8 質量 %) を得た。

芳香族ポリエステルアミド溶液 P 1 (1 0 . 0 質量部) に対して、アミノフェノール型エポキシ樹脂 (製品名「 J E R 6 3 0 」、三菱化学 (株) 製) 0 . 0 4 質量部を混合し、層 C 形成用溶液を調製した。

[0250] [片面銅張複層フィルムの作製]

層 C 形成用溶液を、アプリケーションターを用いて、銅箔 (福田金属箔粉工業 (株) 製、 C F - T 4 X - S V - 1 8 、厚み 1 8 μ m 、貼り付け面 (処理面) の表面粗さ R _z 0 . 8 5 μ m) の処理面上に塗布し、 1 5 0 ° C で 1 時間送風乾燥した。乾燥後の層 C の膜厚は 3 μ m であった。得られた層 C の上に、アプリケーションターを用い、層 A 形成用溶液を塗布し、 5 0 ° C で 3 時間送風乾燥した。その後、窒素雰囲気下で 3 0 0 ° C で 3 時間のアニール処理を実施した。

層 A の膜厚は表 1 に記載の通りであった。得られた層 A 上に、アプリーケーターを用いて層 B 形成用溶液を塗布し、90℃で2時間送風乾燥することで、銅層、層 C、層 A、層 B をこの順に有する積層体（片面銅張複層フィルム）を得た。

[0251] [ボンディングシートの作製]

ポリテトラフルオロエチレンシート上に層 B 形成用溶液を、アプリーケーターを用いて塗布し、90℃で2時間送風乾燥した。その後、ポリテトラフルオロエチレンシートから剥離することで、ボンディングシートを得た。

[0252] [配線基板の作製]

ー配線パターン付き基材の作製ー

銅箔（製品名「CF-T9DA-SV-18」、平均厚み18μm、福田金属箔粉工業（株）製）と、基材として液晶ポリマーフィルム（製品名「CTQ-50」、平均厚み50μm、クラレ社製）を準備した。銅箔の処理面が基材と接するように、銅箔と基材と銅箔とをこの順に重ねた。ラミネータ（製品名「真空ラミネータV-130」、ニッコー・マテリアルズ社製）を使用して、140℃及びラミネート圧0.4MPaの条件で1分間のラミネート処理を行い、両面銅張積層板の前駆体を得た。続いて、熱圧着機（製品名「MP-SNL」、（株）東洋精機製作所製）を用いて、得られた両面銅張積層板の前駆体を、300℃及び4.5MPaの条件で10分間熱圧着することにより、両面銅張積層板を作製した。

上記両面銅張積層板の両面の銅箔に対してそれぞれエッチングしてパターンニングを施し、基材の両側にグランド線及び3対の信号線を含む配線パターン付き基材を作製した。信号線の長さは50mm、幅は特性インピーダンスが50Ωになるように設定した。

[0253] ー配線基板の作製方法 Aー

実施例1～実施例18、実施例22～実施例33では、上記片面銅張複層フィルムを用いて配線基板を作製した。

[0254] 得られた片面銅張複層フィルムの層 B 側に、上記配線パターン付き基材を

重ね合わせ、 160°C 及び 4 MPa の条件で、1時間の熱プレスを行うことにより、配線基板を得た。

得られた配線基板には、配線パターン（グラウンド線及び信号線）が埋設されており、配線パターンの厚みは $18\text{ }\mu\text{m}$ であった。

[0255] ー配線基板の作製方法Bー

実施例19～実施例21では、上記ボンディングシートを用いて配線基板を作製した。

得られた層C形成用溶液を、アプリーターを用いて、銅箔（福田金属箔粉工業（株）製、CF-T4X-SV-18、厚み $18\text{ }\mu\text{m}$ 、貼り付け面（処理面）の表面粗さ $R_z 0.85\text{ }\mu\text{m}$ ）の処理面上に塗布し、 150°C で1時間送風乾燥した。乾燥後の層Cの膜厚は $3\text{ }\mu\text{m}$ であった。得られた層Cの上に、アプリーターを用いて層A形成用溶液を塗布し、 50°C で3時間送風乾燥した。その後、窒素雰囲気下、 300°C で3時間のアニール処理を実施した。層Aの膜厚は表1に記載の通りであった。得られた層A上に、上記ボンディングシートを載せ、さらに、ボンディングシート上に上記配線パターン付き基材を重ね合わせ、 160°C 及び 4 MPa の条件で、1時間の熱プレスを行うことにより、配線基板を得た。

配線基板には、配線パターン（グラウンド線及び信号線）が埋設されており、配線パターンの厚みは $18\text{ }\mu\text{m}$ であった。

[0256] <<評価>>

作製した片面銅張複層フィルム及びボンディングシートについて、下記に示す測定及び評価を行い、結果を表3に記載した。

[0257] <<測定法>>

〔片面銅張複層フィルムの 160°C における弾性率〕

片面銅張複層フィルムの層Bにおける弾性率を、ナノインデンテーション法を用いて、押し込み弾性率として測定した。押し込み弾性率は、微小硬度計（製品名「DUH-W201」、（株）島津製作所製）を用い、 160°C において、ビッカース圧子により 0.28 mN /秒の荷重速度で負荷をかけ

、最大荷重 10 mN を 10 秒間保持した後に、0.28 mN/秒の荷重速度で除荷を行うことにより、測定した。

[0258] [ボンディングシートの 160℃における弾性率]

レオメーター（製品名「RS6000」、英弘精機（株）製）を用いて、以下の条件でボンディングシートの 160℃における貯蔵弾性率を測定した。なお、片面銅張複層フィルム中のボンディングシートは、ボンディングシート部分を剥離して測定を行った。サンプルは厚みが約 0.1 mm となるように重ね合わせた。測定開始 5 分時点での弾性率を読み取り、 $n = 3$ 測定の平均値を算出した。

- ・フォース制御モード ($F_n = 2\text{ N}$)
- ・周波数：1 Hz
- ・歪：0.2%
- ・温度：160℃一定
- ・測定時間：15分

[0259] [貯蔵弾性率 A、B]

レオメーター（製品名「RS6000」、英弘精機（株）製）を用いて、以下の条件でボンディングシートの貯蔵弾性率を測定した。片面銅張複層フィルムの層 B に関しては、層 B のみを切削して取り出して測定した。サンプルは厚みが約 0.1 mm となるように重ね合わせた。各温度での弾性率を読み取り、 $n = 3$ 測定の平均値を算出した。

- ・フォース制御モード ($F_n = 2\text{ N}$)
- ・周波数：1 Hz
- ・歪：0.2%
- ・温度：25℃～250℃
- ・昇温速度：5℃/分

[0260] [貯蔵弾性率 C、D]

レオメーター（製品名「RS6000」、英弘精機（株）製）を用いて、以下の条件でシルセスキオキサンポリマーの貯蔵弾性率を測定した。溶媒を

揮発させた後のシルセスキオキサンポリマーを用いて、サンプル厚みが約0.1 mmとなるように重ね合わせた。各温度での弾性率を読み取り、 $n = 3$ 測定の平均値を算出した。

- ・フォース制御モード ($F_n = 2\text{ N}$)
- ・周波数: 1 Hz
- ・歪: 0.2%
- ・温度: 25°C ~ 250°C
- ・昇温速度: 5°C/分

[0261] [25°C ~ 40°Cにおける貯蔵弾性率A]

片面銅張複層フィルムの層B又はボンディングシートにおいて、25°C ~ 40°Cにおける貯蔵弾性率Aを評価した。具体的には、25°C ~ 40°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Aが特定の数値範囲に入るか否かを判定した。評価基準は、以下のとおりである。

A: 25°C ~ 40°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Aが $5 \times 10^6\text{ Pa} \sim 5 \times 10^7\text{ Pa}$ である。

B: 25°C ~ 40°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Aが $10^6\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であり、評価Aに該当しない。

C: 25°C ~ 40°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Aが $10^4\text{ Pa} \sim 10^8\text{ Pa}$ であり、評価A及び評価Bに該当しない。

D: 上記評価A ~ Cのいずれにも該当しない。

[0262] [150°C ~ 250°Cにおける貯蔵弾性率B]

片面銅張複層フィルムの層B又はボンディングシートにおいて、150°C ~ 250°Cにおける貯蔵弾性率Bを評価した。具体的には、150°C ~ 250°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Bが特定の数値範囲に入るか否かを判定した。評価基準は、以下のとおりである。

A: 150°C ~ 250°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Bが 10^5 Pa 以下である。

B: 150°C ~ 250°Cのいずれかの温度で貯蔵弾性率Bが $3 \times 10^5\text{ Pa}$

以下であり、評価Aに該当しない。

C：150℃～250℃のいずれかの温度で貯蔵弾性率Bが 10^6 Pa以下であり、評価A及び評価Bに該当しない。

D：上記評価A～Cのいずれにも該当しない。

[0263] [25℃～40℃における貯蔵弾性率C]

シルセスキオキサンポリマーにおいて、25℃～40℃における貯蔵弾性率Cを評価した。具体的には、25℃～40℃のいずれかの温度で貯蔵弾性率Cが特定の数値範囲に入るか否かを判定した。評価基準は、貯蔵弾性率Aと同じである。

[0264] [150℃～250℃における貯蔵弾性率D]

シルセスキオキサンポリマーにおいて、150℃～250℃における貯蔵弾性率Dを評価した。具体的には、150℃～250℃のいずれかの温度で貯蔵弾性率Dが特定の数値範囲に入るか否かを判定した。評価基準は、貯蔵弾性率Bと同じである。

[0265] [誘電正接]

片面銅張複層フィルム及び配線基板の誘電正接は、銅張積層板の銅箔を塩化第二鉄の水溶液で除去し、純水で洗浄後、乾燥して得られたフィルムを用いて測定した。ボンディングシートに関しては、ボンディングシートそのままを用いて測定した。

誘電正接の測定は、周波数28GHzで共振摂動法により実施した。ネットワークアナライザ（Agilent Technology社製「E8363B」）に28GHzの空洞共振器（（株）関東電子応用開発製「CP531」）を接続し、空洞共振器に測定試料を挿入し、温度25℃、湿度60%RH環境下、96時間の挿入前後の共振周波数の変化から、測定試料の誘電正接を測定した。

[0266] [段差追従性]

—配線基板の作製Aで作製した配線基板—

配線基板をミクロトームで厚み方向に沿って切削し、断面を光学顕微鏡で

観察した。層Bと配線パターンとの間において面内方向に生じる隙間の長さL1を測定した。10箇所における平均値を算出した。

—配線基板の作製Bで作製した配線基板—

配線基板をミクロトームで厚み方向に沿って切削し、断面を光学顕微鏡で観察した。ボンディングシートと配線パターンと間において面内方向に生じる隙間の長さL1を測定した。10箇所における平均値を算出した。

A : L1は2 μ m未満である。

B : L1は2 μ m以上4 μ m未満である。

C : L1は4 μ m以上である

[0267] [耐熱性A : ハンダ浸漬試験]

配線基板を30mm×30mmサイズに切り出し、評価サンプルとした。評価サンプルを288℃の熱はんだ中に10秒間ずつ3回浸漬した。浸漬した後の評価サンプルを剃刀で切削し、断面を光学顕微鏡で観察し、下記の評価基準に基づいて、剥離状態を評価した。

A : 剥離が認められなかった。

B : 1mm以下の幅で剥離が認められた。

C : 1mmより大きい幅で剥離が認められた。

[0268] [耐熱性B : リフロー模擬試験]

配線基板を30mm×30mmサイズに切り出し、評価サンプルとした。評価サンプルを、温度85℃相対湿度85%の恒温恒湿槽にて168時間処理した。その後、260℃に設定したオーブンに、評価サンプルを入れ、15分加熱した。加熱後の評価サンプルを剃刀で切削し、断面を光学顕微鏡で観察し、剥離状態を評価した。

A : 剥離が認められなかった。

B : 1mm以下の幅で剥離が認められた。

C : 1mmより大きい幅で剥離が認められた。

[0269] [耐熱性C : リフロー模擬試験]

配線基板を30mm×30mmサイズに切り出し、評価サンプルとした。

評価サンプルを、温度 85℃ 相対湿度 95% の恒温恒湿槽にて 168 時間処理した。その後、260℃ に設定したオーブンに、評価サンプルを入れ、15 分加熱した。加熱後の評価サンプルを剃刀で切削し、断面を光学顕微鏡で観察し、剥離状態を評価した。

A : 剥離が認められなかった。

B : 1 mm 以下の幅で剥離が認められた。

C : 1 mm より大きい幅で剥離が認められた。

[0270] 表中、S Q は、シルセスキオキサンポリマーを意味する。「T 3 / T 2」は、片面銅張複層フィルムの層 B 又はボンディングシートに含まれるシルセスキオキサンポリマーにおいて、式 (T 2) で表される部分構造に対する式 (T 3) で表される部分構造のモル比を意味する。「T 3 a / T 2 a」は、配線基板の層 B に含まれるシルセスキオキサンポリマーにおいて、式 (T 2 a) で表される部分構造に対する式 (T 3 a) で表される部分構造のモル比を意味する。

[0271]

[表1]

	配線材料 作製方法	膜A					
		底層		フィラー		厚み (μm)	誘電 正接
		種類	含有率	種類	含有率		
実施例 1	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 2	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 3	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 4	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 5	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 6	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 7	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 8	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 9	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 10	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 11	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 12	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 13	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 14	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 15	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 16	A	P6	100	—	—	27	0.003
実施例 17	A	P1	30	PP-1	70	20	0.002
実施例 18	A	P1	30	PP-2	70	27	0.004
実施例 19	B	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 20	B	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 21	B	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 22	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 23	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 24	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 25	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 26	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 27	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 28	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 29	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 30	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 31	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 32	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
実施例 33	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
比較例 1	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002
比較例 2	A	P1	30	PP-1	70	27	0.002

[0272] [表2]

	脱脂/水/オイル/シート																	
	SQ							その他の樹脂		炭素繊維/樹脂		ガラス		厚み (μm)	弾性率A E (MPa)	弾性率B E (MPa)	160℃での 弾性率 E (MPa)	
	種類	Nw	T3/T2	弾性率E (MPa)	弾性率D (MPa)	含有率	種類	含有率	種類	含有率	種類	含有率						
実施例 1	SQ1	11000	50	0.004	B	C	100	--	--	--	--	--	--	25	0.004	B	C	0.35
実施例 2	SQ2	11000	60	0.004	B	C	100	--	--	--	--	--	--	25	0.004	B	C	0.35
実施例 3	SQ3	40000	75	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 4	SQ4	11000	80	0.004	B	C	97	--	--	V1	2	--	--	25	0.004	B	C	0.35
実施例 5	SQ5	52000	80	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 6	SQ6	66000	85	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 7	SQ7	30000	70	0.007	B	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.007	B	C	0.40
実施例 8	SQ8	11000	80	0.007	B	B	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.007	B	C	0.40
実施例 9	SQ5	160000	85	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.70
実施例 10	SQ5	9300	20	0.008	B	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.008	B	C	0.35
実施例 11	SQ1	3000	4	0.009	D	A	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.009	D	A	0.001
実施例 12	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	P2	23	V1	3	--	--	25	0.003	C	B	0.25
実施例 13	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	T1	23	V1	3	--	--	25	0.004	C	B	0.30
実施例 14	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	--	--	V1	3	F1	23	25	0.003	D	C	0.45
実施例 15	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	--	--	V1	3	F2	23	25	0.003	D	C	0.45
実施例 16	SQ5	52000	80	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 17	SQ5	52000	80	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	30	0.004	D	C	0.40
実施例 18	SQ5	52000	80	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 19	SQ5	52000	80	0.004	D	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.004	D	C	0.40
実施例 20	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	P2	23	V1	3	--	--	25	0.003	C	B	0.25
実施例 21	SQ5	52000	80	0.004	D	C	74	T1	23	V1	3	--	--	25	0.004	C	B	0.30
実施例 22	SQ9	17000	>99	0.003	B	B	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.003	B	C	0.40
実施例 23	SQ10	14000	>99	0.002	A	A	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.002	A	B	0.30
実施例 24	SQ11	41000	>99	0.003	B	C	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.003	B	C	0.40
実施例 25	SQ12	34000	99	0.003	B	A	97	--	--	V1	3	--	--	25	0.003	B	B	0.30
実施例 26	SQ13	11000	99	0.003	A	A	100	--	--	--	--	--	--	25	0.003	A	A	0.10
実施例 27	SQ13	6000	99	0.004	A	A	100	--	--	--	--	--	--	25	0.004	A	A	0.05
実施例 28	SQ14	11000	99	0.003	C	A	100	--	--	--	--	--	--	25	0.003	C	A	0.01
実施例 29	SQ15	13000	99	0.003	B	A	100	--	--	--	--	--	--	25	0.003	B	A	0.05
実施例 30	SQ16	11000	99	0.003	A	A	100	--	--	--	--	--	--	25	0.003	A	A	0.10
実施例 31	SQ11	41000	>99	0.003	B	C	74	P2	23	V1	3	--	--	25	0.003	B	B	0.30
実施例 32	SQ13	11000	99	0.003	A	A	74	T1	23	V1	3	--	--	25	0.003	B	C	0.40
実施例 33	SQ13	11000	99	0.003	A	A	74	--	--	V1	3	F1	23	25	0.003	A	B	0.20
比較例 1	--	--	--	--	--	--	--	P2	100	--	--	--	--	25	0.002	A	A	0.10
比較例 2	--	--	--	--	--	--	--	S1	100	--	--	--	--	25	0.004	D	A	0.001

[0273]

[表3]

	試験条件		評価			
	SQ	透過率	段差形成性	耐熱性A	耐熱性B	耐熱性C
	T3a/T2a	正値				
実施例1	65	0.0025	A	A	B	C
実施例2	65	0.0025	A	A	B	C
実施例3	80	0.0025	A	A	A	B
実施例4	65	0.0025	A	A	A	B
実施例5	85	0.0025	A	A	A	B
実施例6	88	0.0025	A	A	A	B
実施例7	75	0.004	A	A	B	C
実施例8	65	0.004	A	A	B	C
実施例9	88	0.0025	B	A	A	B
実施例10	30	0.0045	A	A	B	C
実施例11	15	0.0055	A	A	B	C
実施例12	85	0.002	A	A	A	B
実施例13	85	0.0025	A	A	A	B
実施例14	65	0.002	A	A	A	B
実施例15	85	0.002	A	A	A	B
実施例16	85	0.003	A	A	A	B
実施例17	65	0.0025	A	A	A	B
実施例18	85	0.0035	A	A	A	B
実施例19	85	0.0025	A	A	A	B
実施例20	85	0.002	A	A	A	B
実施例21	85	0.0025	A	A	A	B
実施例22	>99	0.002	A	A	A	A
実施例23	>99	0.002	A	A	A	A
実施例24	>99	0.002	A	A	A	A
実施例25	99	0.003	A	A	A	A
実施例26	99	0.002	A	A	A	A
実施例27	99	0.0025	A	A	A	B
実施例28	99	0.002	A	A	A	A
実施例29	99	0.002	A	A	A	A
実施例30	99	0.002	A	A	A	A
実施例31	>99	0.002	A	A	A	A
実施例32	99	0.002	A	A	A	A
実施例33	99	0.002	A	A	A	A
比較例1	—	0.0023	A	C	C	C
比較例2	—	0.0025	A	C	C	C

[0274] 表3に示すように、実施例1～実施例18、実施例22～実施例33では、積層体が、層Aと、層Aの少なくとも一方の面上に配置された層Bと、を含み、層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下であるため、段差追従性及び耐熱性に優れる。

実施例19～実施例21では、ポリマーフィルムが、シルセスキオキサンポリマーを含み、誘電正接が0.01以下であるため、段差追従性及び耐熱性に優れる。

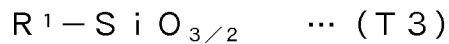
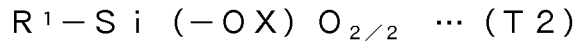
[0275] 一方、比較例1及び比較例2では、積層体における層Bがシルセスキオキサンポリマーを含まず、耐熱性に劣ることが分かった。

[0276] なお、2022年12月9日に出願された日本国特許出願2022-197498号、及び、2023年5月26日に出願された日本国特許出願2023-087306号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。また、本明細書に記載された全ての文献、特許出願及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書中に参照により取り込まれる。

請求の範囲

- [請求項1] シルセスキオキササンポリマーを含み、
誘電正接が0.01以下である、ポリマーフィルム。
- [請求項2] 前記誘電正接は0.005以下である、請求項1に記載のポリマーフィルム。
- [請求項3] 前記誘電正接は0.003以下である、請求項1に記載のポリマーフィルム。
- [請求項4] 160℃における貯蔵弾性率が0.5MPa以下である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項5] 25℃～40℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Aが 10^4 Pa～ 10^8 Paであり、150℃～250℃のいずれかの温度における貯蔵弾性率Bが 10^6 Pa以下である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項6] 前記貯蔵弾性率Aが 10^6 Pa～ 10^8 Paであり、前記貯蔵弾性率Bが 3×10^5 Pa以下である、請求項5に記載のポリマーフィルム。
- [請求項7] 前記シルセスキオキササンポリマーは、架橋性基を有する、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項8] 前記架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、請求項7に記載のポリマーフィルム。
- [請求項9] 前記シルセスキオキササンポリマーは、重量平均分子量が1万～15万である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項10] 前記シルセスキオキササンポリマーは、下記式(T2)で表される部分構造及び下記式(T3)で表される部分構造を含み、前記式(T2)で表される部分構造に対する前記式(T3)で表される部分構造のモル比が50以上である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載

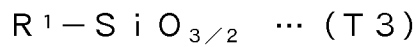
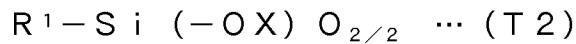
のポリマーフィルム。



式中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。 X は、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

- [請求項11] 前記シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項12] 無機フィラーをさらに含む、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項13] 厚さが10 μm 以上である、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項14] ボンディングシートである、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルム。
- [請求項15] 層Aと、前記層Aの少なくとも一方の面上に配置された層Bと、を含み、
前記層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含み、
誘電正接が0.01以下である、積層体。
- [請求項16] 前記シルセスキオキサンポリマーは、架橋性基を有する、請求項15に記載の積層体。
- [請求項17] 前記架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、請求項16に記載の積層体。
- [請求項18] 前記シルセスキオキサンポリマーは、重量平均分子量が1万～15万である、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。
- [請求項19] 前記シルセスキオキサンポリマーは、下記式(T2)で表される部分構造及び下記式(T3)で表される部分構造を含み、前記式(T2)で表される部分構造に対する前記式(T3)で表される部分構造の

モル比が50以上である、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。



式(T2)及び式(T3)中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。 X は、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

[請求項20] 前記層Bは、前記シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。

[請求項21] 前記層Bは、無機フィラーをさらに含む、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。

[請求項22] 前記層Aは、液晶ポリマーを含む、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。

[請求項23] 前記液晶ポリマーは、芳香族ポリエステルアミドを含む、請求項22に記載の積層体。

[請求項24] 前記層Bは、厚さが10 μ m以上である、請求項15～請求項17のいずれか1項に記載の積層体。

[請求項25] 層Aと、前記層Aの少なくとも一方の面上に配置された層Bと、を含み、

前記層Bは、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルムであり、

誘電正接が0.01以下である、積層体。

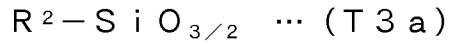
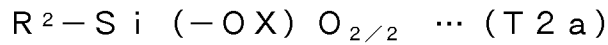
[請求項26] 基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、前記配線パターン間及び前記配線パターン上に配置された層Bと、前記層B上に配置された層Aと、を備え、

前記層Bは、シルセスキオキサンポリマーを含み、

誘電正接が0.01以下である、配線基板。

[請求項27] 前記シルセスキオキサンポリマーは、下記式(T2a)で表される

部分構造及び下記式（T 3 a）で表される部分構造を含み、前記式（T 2 a）で表される部分構造に対する前記式（T 3 a）で表される部分構造のモル比が70以上である、請求項26に記載の配線基板。



式中、 R^2 はそれぞれ独立に、有機基を表し、各 R^2 は互いに連結していてもよい。Xは、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

[請求項28] 前記層Bは、前記シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、請求項26又は請求項27に記載の配線基板。

[請求項29] 前記層Bは、無機フィラーをさらに含む、請求項26又は請求項27に記載の配線基板。

[請求項30] 前記層Aは、液晶ポリマーを含む、請求項26又は請求項27に記載の配線基板。

[請求項31] 前記液晶ポリマーは、芳香族ポリエステルアミドを含む、請求項30に記載の配線基板。

[請求項32] 前記層Bは、最も厚い部分の厚さが $10\mu m$ 以上である、請求項26又は請求項27に記載の配線基板。

[請求項33] 基材と、基材の少なくとも一方の面上に配置された配線パターンと、前記配線パターン間及び前記配線パターン上に配置された層Bと、前記層B上に配置された層Aと、を備え、

前記層Bは、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載のポリマーフィルムであり、

誘電正接が0.01以下である、配線基板。

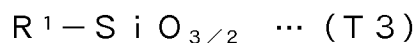
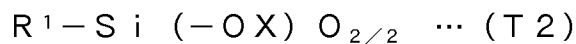
[請求項34] 誘電正接が0.01以下である、シルセスキオキサンポリマー。

[請求項35] 重量平均分子量が4000以上である、請求項34に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項36] 前記誘電正接が0.005以下である、請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマー。

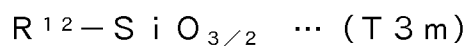
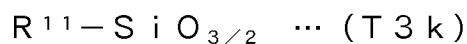
[請求項37] 前記誘電正接が0.003以下である、請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項38] 下記式(T2)で表される部分構造及び下記式(T3)で表される部分構造を含み、前記式(T2)で表される部分構造に対する前記式(T3)で表される部分構造のモル比が50以上である、請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマー。



式(T2)及び式(T3)中、 R^1 はそれぞれ独立に、有機基を表す。 X は、水素原子、又は炭素数1～6のアルキル基を表す。

[請求項39] 前記式(T3)で表される部分構造は、下記式(T3k)で表される部分構造及び下記式(T3m)で表される部分構造を含み、前記式(T3k)で表される部分構造に対する前記式(T3m)で表される部分構造のモル比が0.01～99である、請求項38に記載のシルセスキオキサンポリマー。



式(T3k)中、 R^{11} は、無置換の芳香族炭化水素基、置換基を有する芳香族炭化水素基、又はビニル基であり、

式(T3m)中、 R^{12} は、 $Cl o g P$ 値が2.5以上の脂肪族炭化水素基である。

[請求項40] 前記 R^{12} は、炭素数4以上の無置換の脂肪族炭化水素基、又は炭素数4以上の置換基を有する脂肪族炭化水素基である、請求項39に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項41] 前記式(T3k)で表される部分構造に対する前記式(T3m)で表される部分構造のモル比が0.25～4である、請求項39に記載

のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項42] 架橋性基を有する、請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項43] 前記架橋性基は、ビニル基、アリル基、スチリル基、及びマレイミド基からなる群より選択される少なくとも1種である、請求項42に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項44] 前記 R^{11} は、スチリル基であり、前記 R^{12} は、炭素数6以上の無置換の脂肪族炭化水素基である、請求項39に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項45] $25^{\circ}\text{C} \sim 40^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率 C が $10^4 \text{ Pa} \sim 10^8 \text{ Pa}$ であり、 $150^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ のいずれかの温度における貯蔵弾性率 D が $3 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以下である、請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項46] 前記 R^{11} は、フェニル基であり、前記 R^{12} は、炭素数6以上の無置換の脂肪族炭化水素基である、請求項39に記載のシルセスキオキサンポリマー。

[請求項47] 請求項34又は請求項35に記載のシルセスキオキサンポリマーを含むポリマー組成物。

[請求項48] 前記シルセスキオキサンポリマー以外の、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂をさらに含む、請求項47に記載のポリマー組成物。

[請求項49] 無機フィラーをさらに含む、請求項47に記載のポリマー組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/038076

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 83/04(2006.01)i; **B32B 27/00**(2006.01)i; **C08F 299/08**(2006.01)i; **C08G 77/04**(2006.01)i; **C08J 5/18**(2006.01)i;
C08L 83/07(2006.01)i; **C08L 101/00**(2006.01)i; **H05K 1/03**(2006.01)i

FI: C08L83/04; B32B27/00 101; C08L83/07; C08L101/00; C08G77/04; H05K1/03 610H; H05K1/03 610R; C08J5/18 CFH;
C08F299/08

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)

C08L83/04; B32B27/00; C08F299/08; C08G77/04; C08J5/18; C08L83/07; C08L101/00; H05K1/03

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	JP 2008-297490 A (SHOWA DENKO KK) 11 December 2008 (2008-12-11) claims, paragraphs [0001]-[0002], examples	1-21, 24-29, 32-49
Y		22-23, 30-31
X	JP 2022-77323 A (AJINOMOTO KK) 23 May 2022 (2022-05-23) claims, paragraphs [0052], [0227], [0231]-[0234], examples	1-21, 24-29, 32-33
Y		22-23, 30-31
X	JP 2010-34414 A (SEKISUI CHEMICAL CO LTD) 12 February 2010 (2010-02-12) claims, paragraphs [0009], [0056], [0090], [0094], examples	1-3, 9-13, 15, 18-21, 24-25, 34-41, 45-49
Y		26-29, 32-33
X	JP 2020-96168 A (NISSAN CHEMICAL CORP) 18 June 2020 (2020-06-18) examples	34-37
Y	WO 2021/157507 A1 (AGC INC.) 12 August 2021 (2021-08-12) paragraphs [0001]-[0002], [0040]	22-23, 30-31



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

04 December 2023

Date of mailing of the international search report

19 December 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

International application No.

PCT/JP2023/038076

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2020-123657 A (DENSO CORP) 13 August 2020 (2020-08-13) fig. 1, 8-9	26-29, 32-33
A	小西化学工業-ポリシルセスキオキサン, https://konishi-chem.co.jp/development/psq/ , (KONISHI CHEMICAL IND CO., LTD. -Polysilsesquioxane.) Product Lineup of SR series, Basic physical properties list of SR-13H	34-37
A	WO 2020/090346 A1 (DOW TORAY CO., LTD.) 07 May 2020 (2020-05-07)	1-49
A	JP 2019-94381 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 20 June 2019 (2019-06-20)	1-49
A	JP 2-178330 A (INTERNATL BUSINESS MACH CORP <IBM>) 11 July 1990 (1990-07-11)	1-49

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/038076

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2008-297490	A	11 December 2008	(Family: none)	
JP	2022-77323	A	23 May 2022	(Family: none)	
JP	2010-34414	A	12 February 2010	(Family: none)	
JP	2020-96168	A	18 June 2020	(Family: none)	
WO	2021/157507	A1	12 August 2021	TW	202138200 A
JP	2020-123657	A	13 August 2020	(Family: none)	
WO	2020/090346	A1	07 May 2020	CN	113166540 A
				KR	10-2021-0084531 A
JP	2019-94381	A	20 June 2019	(Family: none)	
JP	2-178330	A	11 July 1990	US	4981530 A
				US	5286572 A
				EP	371287 A1

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08L 83/04(2006.01)i; B32B 27/00(2006.01)i; C08F 299/08(2006.01)i; C08G 77/04(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; C08L 83/07(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; H05K 1/03(2006.01)i FI: C08L83/04; B32B27/00 101; C08L83/07; C08L101/00; C08G77/04; H05K1/03 610H; H05K1/03 610R; C08J5/18 CFH; C08F299/08										
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）） C08L83/04; B32B27/00; C08F299/08; C08G77/04; C08J5/18; C08L83/07; C08L101/00; H05K1/03										
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table>			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
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	JP 2008-297490 A（昭和電工株式会社）11.12.2008（2008-12-11） 特許請求の範囲，[0001]-[0002]，実施例	1-21，24-29，32-49								
Y		22-23，30-31								
X	JP 2022-77323 A（味の素株式会社）23.05.2022（2022-05-23） 特許請求の範囲，[0052]，[0227]，[0231]-[0234]，実施例	1-21，24-29，32-33								
Y		22-23，30-31								
X	JP 2010-34414 A（積水化学工業株式会社）12.02.2010（2010-02-12） 特許請求の範囲，[0009]，[0056]，[0090]，[0094]，実施例	1-3，9-13，15， 18-21，24-25， 34-41，45-49								
Y		26-29，32-33								
X	JP 2020-96168 A（日産化学株式会社）18.06.2020（2020-06-18） 実施例	34-37								
Y	WO 2021/157507 A1（AGC株式会社）12.08.2021（2021-08-12） [0001]-[0002]，[0040]	22-23，30-31								
☒ 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、一般的技术水準を示すもの “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 04.12.2023		国際調査報告の発送日 19.12.2023								
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） 前田 直樹 4J 4804 電話番号 03-3581-1101 内線 3457								

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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
Y	JP 2020-123657 A (株式会社デンソー) 13.08.2020 (2020 - 08 - 13) 図 1, 8 ~ 9	26-29, 32-33
A	小西化学工業-ポリシルセスキオキサン, https://konishi-chem.co.jp/development/psq/ SRシリーズ製品ラインナップ, SR-13H 基礎物性一覧	34-37
A	W0 2020/090346 A1 (ダウ・東レ株式会社) 07.05.2020 (2020 - 05 - 07)	1-49
A	JP 2019-94381 A (信越化学工業株式会社) 20.06.2019 (2019 - 06 - 20)	1-49
A	JP 2-178330 A (インターナショナル・ビジネス・マシーンズ・コーポレーション) 11.07.1990 (1990 - 07 - 11)	1-49

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/JP2023/038076

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2008-297490	A	11.12.2008	(ファミリーなし)			
JP	2022-77323	A	23.05.2022	(ファミリーなし)			
JP	2010-34414	A	12.02.2010	(ファミリーなし)			
JP	2020-96168	A	18.06.2020	(ファミリーなし)			
WO	2021/157507	A1	12.08.2021	TW	202138200	A	
JP	2020-123657	A	13.08.2020	(ファミリーなし)			
WO	2020/090346	A1	07.05.2020	CN	113166540	A	
				KR	10-2021-0084531	A	
JP	2019-94381	A	20.06.2019	(ファミリーなし)			
JP	2-178330	A	11.07.1990	US	4981530	A	
				US	5286572	A	
				EP	371287	A1	