

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年5月4日(04.05.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/074886 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 33/04 (2006.01) C08K 5/527 (2006.01)
C08J 5/24 (2006.01) C08K 5/5399 (2006.01)
C08K 5/3415 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
C08K 5/521 (2006.01) H05K 1/03 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/040575

(22) 国際出願日: 2022年10月31日(31.10.2022)

(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 2021-178896 2021年11月1日(01.11.2021) JP

(71) 出願人: 株式会社 レゾナック (RESONAC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 坂本 徳彦 (SAKAMOTO, Norihiko); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 須藤 恭介 (SUDO, Kyosuke); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 北嶋 貴代 (KITAJIMA, Takayo); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 島岡 伸治 (SHIMAOKA, Shinji); 〒1006606 東京都千

代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人大谷特許事務所(OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門ESビル7階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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,

(54) Title: RESIN COMPOSITION, PREPREG, LAMINATED PLATE, METAL-CLAD LAMINATED PLATE, PRINTED WIRING BOARD, AND SEMICONDUCTOR PACKAGE

(54) 発明の名称: 樹脂組成物、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージ

(57) Abstract: Provided is a resin composition that has low thermal expansion properties and exhibits high strength of adhesion with a metal foil and high solder heat resistance. Also provided are a prepreg, a laminated plate, a metal-clad laminated plate, a printed wiring board, and a semiconductor package that are produced using the resin composition. Specifically, the resin composition contains (A) an acrylic polymer and (B) a thermosetting resin, said resin composition further including (C) at least one compound selected from the group consisting of (C1) phosphate ester compounds, (C2) phosphazene compounds, and (C3) phosphaphenanthrene compounds.

(57) 要約: 低熱膨張性を有し、且つ、金属箔との高い接着強度と高いはんだ耐熱性も発現する樹脂組成物を提供する。さらに、当該樹脂組成物を用いて製造される、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージを提供する。前記樹脂組成物は、具体的には、(A) アクリルポリマー及び (B) 熱硬化性樹脂を含有する樹脂組成物であって、さらに、(C) (C1) リン酸エステル化合物、(C2) ホスファゼン化合物及び (C3) ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種を含む、樹脂組成物である。



WO 2023/074886 A1

CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：

樹脂組成物、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージ

技術分野

[0001] 本開示は、樹脂組成物、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージに関する。

背景技術

[0002] 近年、プリント配線板の配線密度の高度化及び高集積化の進展に伴い、特に半導体パッケージ基板用途においては、部品実装時及びパッケージ組み立て時における、チップと基板との熱膨張率の差に起因した「反り」が大きな課題となっている。反りは半導体素子とプリント配線板との接続不良を引き起こす要因の1つとされており、反りの低減が求められている。

半導体パッケージが反る要因の1つとしては、半導体素子とプリント配線板との熱膨張率の差が挙げられる。一般的には、半導体素子の熱膨張率よりもプリント配線板の熱膨張率の方が大きいいため、半導体素子実装時にかかる熱履歴等によって応力が発生して反りが生ずるものである。したがって、半導体パッケージの反りを抑制するためには、プリント配線板の熱膨張率を小さくして半導体素子の熱膨張率との差を小さくする必要がある。

[0003] ここで、ガラスクロスに樹脂組成物を含浸して得られるプリプレグの熱膨張率は、下記式で示される、Scapery式に従うことが一般的に知られている。

$$A \doteq (A_r E_r F_r + A_g E_g F_g) / (E_r F_r + E_g F_g)$$

(上記式中、Aはプリプレグの熱膨張率、A_rは樹脂組成物の熱膨張率、E_rは樹脂組成物の弾性率、F_rは樹脂組成物の体積分率、A_gはガラスクロスの熱膨張率、E_gはガラスクロスの弾性率、F_gはガラスクロスの体積分率を表す。)

上記 S c a p e r y 式から、任意の体積分率において同一の物性のガラスクロスを使用した場合、樹脂組成物の弾性率及び熱膨張率を低減することによってプリプレグの低熱膨張化が可能になると考えられる。

- [0004] 低熱膨張性が得られる樹脂組成物としては、ポリビスマレイミド化合物をシロキサン化合物で変性した「シロキサン変性マレイミド化合物」を含有する樹脂組成物が挙げられる（例えば、特許文献1参照）。また、低弾性率が得られる樹脂組成物としては、アクリルポリマーを含有する樹脂組成物が挙げられる（例えば、特許文献2参照）。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2014-129521号公報
特許文献2：国際公開第2017/195902号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] しかしながら、特許文献1に記載のシロキサン変性マレイミド化合物を含有する樹脂組成物では、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性において、更なる改善の余地があった。また、特許文献2に記載のように、アクリルポリマー等の熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂とを含有する樹脂組成物は、アクリルポリマー等の熱可塑性樹脂によって低弾性とすることができる一方で、当該熱可塑性樹脂を含有するが故にはんだ耐熱性が低下する傾向にある。

そのため、低熱膨張性を有し、且つ、金属箔との高い接着強度と高いはんだ耐熱性も発現する樹脂組成物の開発が切望されている。

- [0007] 本開示は、上記状況に鑑み、低熱膨張性を有し、且つ、金属箔との高い接着強度と高いはんだ耐熱性も発現する樹脂組成物を提供することを目的とする。さらに、当該樹脂組成物を用いて製造される、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージを提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者等は前記目的を達成すべく検討を進めた結果、本開示により前記目的を達成できることを見出した。

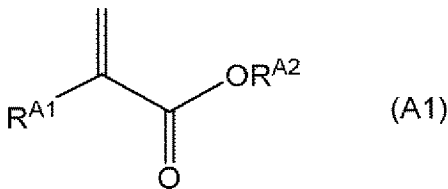
本開示は、下記 [1] ~ [12] を含む。

[1] (A) アクリルポリマー及び (B) 熱硬化性樹脂を含有する樹脂組成物であって、

さらに、(C) (C1) リン酸エステル化合物、(C2) ホスファゼン化合物及び (C3) ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種を含む、樹脂組成物。

[2] 前記 (A) 成分が、下記一般式 (A1) で表される (メタ) アクリル酸エステル由来の構造単位を含むアクリルポリマーである、上記 [1] に記載の樹脂組成物。

[化1]



(式中、 R^{A1} は水素原子又はメチル基を示し、 R^{A2} はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示す。)

[3] 前記 (A) 成分の含有量が、前記 (A) 成分 ~ (C) 成分の総量 100 質量部に対して 5 ~ 50 質量部である、上記 [1] 又は [2] に記載の樹脂組成物。

[4] 前記 (B) 成分が、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ビスマレイミドトリアジン樹脂、シアネート樹脂、イソシアネート樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、オキセタン樹脂、アミノ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アリル樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、シリコーン樹脂、トリアジン樹脂及びメラミン樹脂からなる群から選択される少なくとも1種を含む、上記 [1] ~ [3] のいずれかに記載の樹脂組成物。

[5] 前記(B)成分が、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物及びその誘導体からなる群から選択される少なくとも1種を含む、上記[1]～[4]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[6] 前記(B)成分が、シロキサン変性マレイミド化合物を含む、上記[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[7] さらに(D)フィラーを含有する、上記[1]～[6]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[8] 基材と、上記[1]～[7]のいずれかに記載の樹脂組成物の半硬化物と、を含むプリプレグ。

[9] 上記[8]に記載のプリプレグを含む積層板。

[10] 金属箔と、上記[8]に記載のプリプレグの硬化物と、を含む金属張り積層板。

[11] 上記[9]に記載の積層板又は上記[10]に記載の金属張り積層板を含むプリント配線板。

[12] 上記[11]に記載のプリント配線板と、半導体素子と、を含む半導体パッケージ。

発明の効果

[0009] 本開示によれば、低熱膨張性を有し、且つ、金属箔との高い接着強度と高い耐熱性も発現する樹脂組成物を提供することができる。また、前記樹脂組成物を用いた、プリプレグ、積層板、金属張り積層板、プリント配線板及び半導体パッケージを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0010] 本明細書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、数値範囲の下限値及び上限値は、それぞれ他の数値範囲の下限値又は上限値と任意に組み合わせられる。数値範囲「AA～BB」という表記においては、両端の数値AA及びBBがそれぞれ下限値及び上限値として数値範囲に含まれる。

本明細書において、例えば、「10以上」という記載は、10及び10を

超える数値を意味し、数値が異なる場合もこれに準ずる。また、例えば、「10以下」という記載は、10及び10未満の数値を意味し、数値が異なる場合もこれに準ずる。

また、本明細書に例示する各成分及び材料は、特に断らない限り、1種を単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。本明細書において、組成物中の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。

[0011] 本明細書において、「固形分」とは、水分、有機溶剤等の揮発する物質以外の樹脂組成物中の成分のことをいう。すなわち、固形分は、25℃付近で液状、水飴状又はワックス状のものも含み、必ずしも固体であることを意味するものではない。

本明細書における記載事項を任意に組み合わせた態様も本開示及び本実施形態に含まれる。

[0012] [樹脂組成物]

本実施形態の1つは、(A) アクリルポリマー（以下、「(A)成分」と称することがある。）及び(B) 熱硬化性樹脂（以下、「(B)成分」と称することがある。）を含有する樹脂組成物であって、さらに、(C) (C1) リン酸エステル化合物、(C2) ホスファゼン化合物及び(C3) ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種を含む、樹脂組成物である。ここで、本実施形態では、「(C1) リン酸エステル化合物、(C2) ホスファゼン化合物及び(C3) ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種」を(C)成分としている。

以下、本実施形態の樹脂組成物が含有する各成分について順に詳述する。

[0013] <(A) アクリルポリマー>

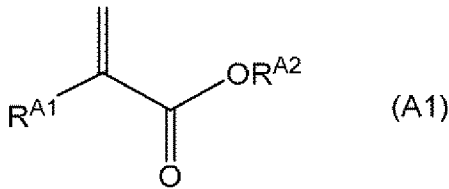
(A)成分はアクリルポリマーであり、より詳細には、(メタ)アクリル酸エステルをモノマーとする重合体である。なお、本実施形態において、「(メタ)アクリル酸」とは、「アクリル酸」と「メタクリル酸」の双方を示

す。

(A) 成分は 1 種を単独で用いてもよいし、2 種以上を併用してもよい。

[0014] (A) 成分は、(メタ) アクリル酸エステルに由来する構成単位を含むアクリルポリマーであるということもでき、下記一般式 (A1) で表される (メタ) アクリル酸エステル由来の構成単位を含むアクリルポリマーであることが好ましい。

[0015] [化2]



(式中、 $\text{R}^{\text{A}1}$ は水素原子又はメチル基を示し、 $\text{R}^{\text{A}2}$ はアルキル基、シクロアルキル基、アリーール基又はアラールキル基を示す。)

[0016] $\text{R}^{\text{A}2}$ で示されるアルキル基の炭素数は、1~20 が好ましく、1~15 がより好ましく、2~10 がさらに好ましい。アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、2-エチルヘキシル基等が挙げられる。当該アルキル基は置換基を有していてもよい。アルキル基の置換基としては、シクロアルキル基、水酸基、ハロゲン、含酸素炭化水素基、含窒素環状基等が挙げられる。シクロアルキル置換アルキル基の合計炭素数は、6~13 が好ましく、7~10 がより好ましい。シクロアルキル置換アルキル基としては、ノルボルニルメチル基、トリシクロデシルエチル基等が挙げられる。

$\text{R}^{\text{A}2}$ で示されるシクロアルキル基の炭素数は、6~13 が好ましく、7~10 がより好ましい。シクロアルキル基としては、シクロヘキシル基、ノルボルニル基、トリシクロデカニル基、イソボルニル基、アダマンチル基等が挙げられる。これらの中でも、シクロアルキル基としては、ノルボルニル基、トリシクロデカニル基、イソボルニル基が好ましい。

$\text{R}^{\text{A}2}$ で示されるアリーール基の炭素数は、6~13 が好ましく、6~10 がより好ましい。アリーール基としては、フェニル基、ノニルフェニル基等が挙

げられる。

R^{A2}で示されるアラルキル基の炭素数は、7～15が好ましく、7～11がより好ましい。アラルキル基としては、ベンジル基、4-メチルベンジル基等が挙げられる。

[0017] (A) アクリルポリマーの具体例としては、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸プロピル、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸エチレングリコールメチルエーテル、(メタ)アクリル酸シクロヘキシル、(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシエチル、(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシプロピル、(メタ)アクリル酸イソボルニル、(メタ)アクリル酸トリシクロ[5.2.1.0(2,6)]デカ-8-イル、(メタ)アクリル酸イソデシル、(メタ)アクリル酸オクタデシル、(メタ)アクリル酸ラウリル、(メタ)アクリル酸アリル、(メタ)アクリル酸ノルボルニルメチル、(メタ)アクリル酸トリシクロデシルエチル、(メタ)アクリル酸フェニル、(メタ)アクリル酸ノニルフェニル、(メタ)アクリル酸ベンジル、(メタ)アクリル酸4-メチルベンジル等が挙げられる。

[0018] (A) 成分は、特に限定されるものではないが、架橋性官能基を有するアクリルポリマーであることが好ましい。架橋性官能基を有するアクリルポリマーとしては、(メタ)アクリル酸エステルと、架橋性の官能基を有する共重合モノマー（以下、単に「架橋性共重合モノマー」と称することがある。）との共重合体が挙げられる。上記架橋性共重合モノマーは、カルボキシ基、水酸基、アミノ基、ビニル基、グリシジル基、エポキシ基等の架橋性の官能基を有することが好ましい。これらの中でも、低吸湿性及びはんだ耐熱性の観点から、架橋性の官能基としては、エポキシ基が好ましい。

上記架橋性共重合モノマーは、二重結合を有する化合物であることが好ましい。

[0019] 上記架橋性共重合モノマーとしては、アクリル酸、メタクリル酸等のカル

ポキシ基を有するモノマー；アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル等のエポキシ基を有するモノマー；アクリル酸ヒドロキシエチル、アクリル酸ヒドロキシプロピル、メタクリル酸ヒドロキシエチル、メタクリル酸ヒドロキシプロピル等の水酸基を有するモノマー；アクリル酸ジメチルアミノエチル、メタクリル酸ジメチルアミノエチル等のアミノ基を有するモノマー；アクリルアミド、メタクリルアミド、ジメチルアクリルアミド、ジメチルメタクリルアミド等のアミド基を有するモノマー；アクリルニトリル等のニトリル基を有するモノマーなどが挙げられる。これらは1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、電気絶縁信頼性の観点から、カルボキシ基を有するモノマー、エポキシ基を有するモノマー、水酸基を有するモノマー、アミノ基を有するモノマーが好ましく、低吸湿性及びはんだ耐熱性の観点から、エポキシ基を有するモノマーがより好ましく、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジルがさらに好ましい。

[0020] また、(A) アクリルポリマーは、アクリル酸N-ビニルピロリドン、メタクリル酸N-ビニルピロリドン、N-アクリロイルモルホリン、N-メタクリロイルモルホリン、芳香族ビニル化合物、N-置換マレイミド化合物及び上記一般式(A1)で表されるもの以外の(メタ)アクリル酸エステル等からなる群から選択される重合性モノマーと、(メタ)アクリル酸エステルとの共重合体であってもよい。

[0021] (A)成分が、(メタ)アクリル酸エステルと、架橋性共重合モノマーとの共重合体である場合、(メタ)アクリル酸エステルの使用量は、(メタ)アクリル酸エステルと架橋性共重合モノマーとの総量100質量部に対して、70~99.5質量部が好ましく、80~98質量部がより好ましく、90~97質量部がさらに好ましい。

架橋性共重合モノマーの使用量は、(メタ)アクリル酸エステルと架橋性共重合モノマーとの総量100質量部に対して、0.5~30質量部が好ましく、2~25質量部がより好ましく、3~20質量部がさらに好ましい。このような範囲とすることにより、はんだ耐熱性、金属箔との接着強度、

絶縁信頼性等がより向上する傾向にある。

(A) アクリルポリマーの全原料モノマー中、(メタ)アクリル酸エステルと架橋性共重合モノマーとの合計含有量は、80質量%以上が好ましく、90質量%以上がより好ましく、95質量%以上がさらに好ましく、100質量%であってもよい。

[0022] (A) 成分がエポキシ基を有する場合、そのエポキシ当量は、1,000~18,000g/eqが好ましく、2,000~15,000g/eqがより好ましく、3,000~10,000g/eqがさらに好ましく、3,500~7,000g/eqが特に好ましい。エポキシ当量が前記下限値以上であれば、基板の寸法安定性が保持される傾向にあり、前記上限値以下であれば、硬化物のガラス転移温度の低下が抑えられて基板のはんだ耐熱性が良好となる傾向にある。

(A) 成分のエポキシ当量は、(メタ)アクリル酸グリシジルとこれと共重合可能な他のモノマーとを共重合する際、共重合比を適宜調整することで調節可能である。

エポキシ基を有する(A)アクリルポリマーの市販品としては、例えば、「HTR-860」(ナガセケムテックス株式会社製、商品名、エポキシ当量2,900g/eq)、「テイサンレジン(登録商標)SG-P3」(ナガセケムテックス株式会社製、商品名、エポキシ当量4,761~14,285g/eq、重量平均分子量35万~85万)、「KH-CT-865」(昭和電工マテリアルズ株式会社製、商品名、エポキシ当量3,300g/eq)等が挙げられる。

[0023] (A) 成分の重量平均分子量(Mw)は、50,000~1,500,000が好ましく、低弾性及び伸び率を向上させる観点から、100,000~1,300,000がより好ましく、100,000~1,100,000であってもよいし、100,000~950,000であってもよいし、また、300,000~1,100,000であってもよいし、500,000~1,000,000であってもよいし、700,000~1,000

、000であってもよい。(A)成分の重量平均分子量が前記下限値以上であれば、(A)成分と(B)成分とが完全に相容することなく相分離構造が形成され易い傾向にあり、前記上限値以下であれば、溶剤に溶解させ易く、取り扱い性及び分散性に優れる傾向にある。

なお、(A)成分は、重量平均分子量の異なる2種以上を組み合わせてもよい。

ここで、本明細書において、重量平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)分析によって測定される値であって、標準ポリスチレン換算値を意味する。GPC分析は、テトラヒドロフラン(THF)を溶解液として用いて行うことができる。なお、重量平均分子量の詳細な測定方法は、実施例に記載の通りである。

[0024] なお、(A)成分は、25℃で粉状であってもよいし、25℃で液状であってもよいが、有機溶剤への溶解性及び樹脂組成物中における(A)成分の分散性に優れるという観点から、25℃で液状であることが好ましい。

[0025] 本実施形態の樹脂組成物中における(A)成分の含有量は、特に限定されないが、前記(A)～(C)成分の総量100質量部に対して、5～50質量部が好ましく、10～45質量部がより好ましく、15～40質量部がさらに好ましく、15～35質量部が特に好ましい。(A)成分の含有量が前記下限値以上であれば、(A)成分の優れた特徴である低弾性及び柔軟性が十分に得られる傾向にあり、また、前記上限値以下であれば、金属箔との十分な接着強度及び高いはんだ耐熱性が得られる傾向にある。

[0026] <(B)熱硬化性樹脂>

(B)成分としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ビスマレイミドトリアジン樹脂、シアネート樹脂、イソシアネート樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、オキセタン樹脂、アミノ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アリル樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、シリコーン樹脂、トリアジン樹脂、メラミン樹脂等が挙げられる。これらの中でも、(B)成分としては、エポキシ樹脂、マレイ

ミド化合物が好ましい。

(B) 成分としては、1種を単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0027] (エポキシ樹脂)

前記エポキシ樹脂としては、1分子中に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂であることが好ましい。ここで、エポキシ樹脂は、グリシジルエーテルタイプのエポキシ樹脂、グリシジルアミンタイプのエポキシ樹脂、グリシジルエステルタイプのエポキシ樹脂等に分類される。これらの中でも、グリシジルエーテルタイプのエポキシ樹脂が好ましい。

エポキシ樹脂は、主骨格の違いによっても種々のエポキシ樹脂に分類され、上記それぞれのタイプのエポキシ樹脂において、さらに、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、ビスフェノールS型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂等の脂環式エポキシ樹脂；脂肪族鎖状エポキシ樹脂；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、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールFノボラック型エポキシ樹脂、フェノールアラルキルノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキルノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；スチルベン型エポキシ樹脂；ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂等のナフトレン骨格含有型エポキシ樹脂；ビフェニル型エポキシ樹脂；キシリレン型エポキシ樹脂；ジヒドロアントラセン型エポキシ樹脂などに分類される。

これらの中でも、エポキシ樹脂としては、はんだ耐熱性及び低熱膨張性の観点から、ナフトレン骨格含有型エポキシ樹脂が好ましく、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂がより好ましい。

[0028] エポキシ樹脂の重量平均分子量は、200～1,000であってもよく、300～900であってもよい。エポキシ樹脂の重量平均分子量が前記下限値以上であれば、はんだ耐熱性に優れる傾向にあり、前記上限値以下であれ

ば、低弾性及び柔軟性が発現し易い傾向にある。

エポキシ樹脂のエポキシ当量は、相容性の観点から、150～500 g / eqであってもよく、150～450 g / eqであってもよく、150～300 g / eqであってもよい。

[0029] (マレイミド化合物)

前記マレイミド化合物としては、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物(b1) [以下、単に「マレイミド化合物(b1)」又は「(b1)成分」と称することがある。] 及びその誘導体からなる群から選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。換言すると、前記(B)成分は、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物及びその誘導体からなる群から選択される少なくとも1種を含む態様が好ましい。

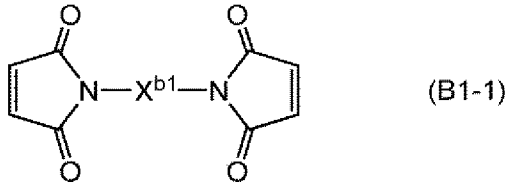
なお、上記「その誘導体」としては、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物(b1)と、後述するジアミン化合物等のアミン化合物との付加反応物などが挙げられる。

[0030] マレイミド化合物(b1)としては、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物であれば特に限定されない。マレイミド化合物(b1)の具体例としては、例えば、ビス(4-マレイミドフェニル)メタン、ポリフェニルメタンマレイミド、ビス(4-マレイミドフェニル)エーテル、ビス(4-マレイミドフェニル)スルホン、3,3'-ジメチル-5,5'-ジエチル-4,4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、4-メチル-1,3-フェニレンビスマレイミド、m-フェニレンビスマレイミド、2,2-ビス[4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン等の芳香族マレイミド化合物；1,6-ビスマレイミド-(2,2,4-トリメチル)ヘキサン、ピロリロン酸バインダ型長鎖アルキルビスマレイミド等の脂肪族マレイミド化合物などが挙げられる。これらの中でも、金属箔との接着性及び機械特性の観点から、マレイミド化合物(b1)としては、芳香族マレイミド化合物が好ましく、芳香族ビスマレイミド化合物がより好ましく、2,2-ビス[4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン、3,3

’-ジメチル-5, 5’-ジエチル-4, 4’-ジフェニルメタンビスマレイミドがさらに好ましい。

[0031] マレイミド化合物 (b1) としては、下記一般式 (B1-1) で表される化合物が好ましい。

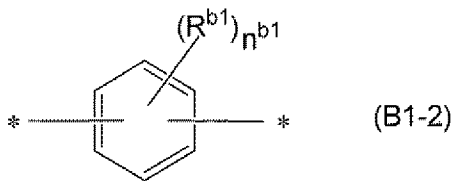
[0032] [化3]



(式中、 X^{b1} は2価の有機基を示す。)

[0033] 上記一般式 (B1-1) 中の X^{b1} が示す2価の有機基としては、下記一般式 (B1-2)、(B1-3)、(B1-4) 又は (B1-5) で表される基が挙げられる。

[0034] [化4]



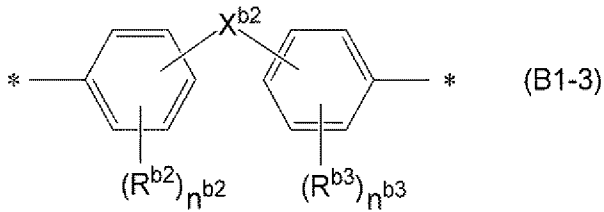
(式中、 R^{b1} は、炭素数1~5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 n^{b1} は、0~4の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0035] R^{b1} が示す炭素数1~5の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、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。該脂肪族炭化水素基としては、炭素数1~3の脂肪族炭化水素基が好ましく、メチル基がより好ましい。

n^{b1} は0~4の整数を示し、入手容易性の観点から、0~2の整数が好ましく、0であることがより好ましい。 n^{b1} が2以上の整数である場合、複数の R^{b1} 同士は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0036]

[化5]



(式中、 R^{b2} 及び R^{b3} は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{b2} は炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基、単結合、又は下記一般式(B1-3-1)で表される2価の基を示す。 n^{b2} 及び n^{b3} は、各々独立に、0～4の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0037] R^{b2} 及び R^{b3} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明は、上記一般式(B1-2)中の R^{b1} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明と同じである。

X^{b2} が示す炭素数1～5のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、1,2-ジメチレン基、1,3-トリメチレン基、1,4-テトラメチレン基、1,5-ペンタメチレン基等が挙げられる。該アルキレン基としては、炭素数1～3のアルキレン基が好ましく、メチレン基がより好ましい。

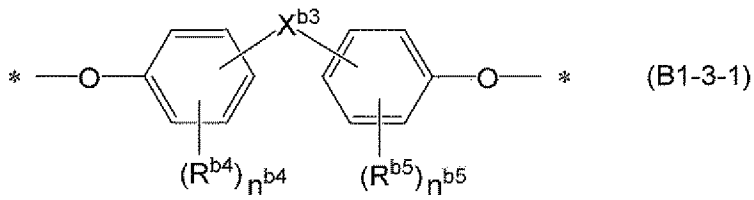
X^{b2} が示す炭素数2～5のアルキリデン基としては、例えば、エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、ブチリデン基、イソブチリデン基、ペンチリデン基、イソペンチリデン基等が挙げられる。該アルキリデン基としては、イソプロピリデン基が好ましい。

n^{b2} 及び n^{b3} は、0～4の整数を示し、入手容易性の観点から、0～2の整数が好ましく、0又は2がより好ましい。 n^{b2} が2以上の整数である場合、複数の R^{b2} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。 n^{b3} が2以上の整数である場合、複数の R^{b3} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

X^{b2} が示す一般式(B1-3-1)で表される2価の基は以下の通りであ

る。

[0038] [化6]



(式中、 R^{b4} 及び R^{b5} は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{b3} は、炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基又は単結合を示す。 n^{b4} 及び n^{b5} は、各々独立に、0～4の整数を示す。 $*$ は結合位置を示す。)

[0039] R^{b4} 及び R^{b5} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明は、上記一般式(B1-2)中の R^{b1} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明と同じである。

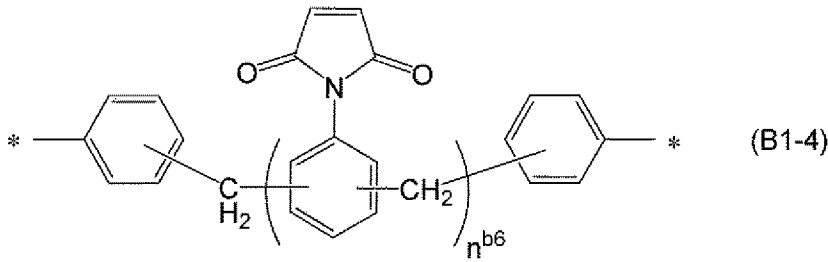
X^{b3} が示す炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基としては、上記一般式(B1-3)中の X^{b2} が示す炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基と同じものが挙げられる。これらの中でも、金属箔との接着性、はんだ耐熱性、ガラス転移温度及び熱膨張係数の観点から、イソプロピリデン基が好ましい。

X^{b3} が示す基の中でも、炭素数2～5のアルキリデン基が好ましく、イソプロピリデン基がより好ましい。

n^{b4} 及び n^{b5} は0～4の整数を示し、入手容易性の観点から、0～2の整数が好ましく、0であることがより好ましい。 n^{b4} が2以上の整数である場合、複数の R^{b4} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。 n^{b5} が2以上の整数である場合、複数の R^{b5} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

[0040]

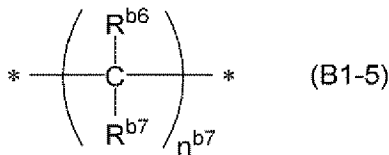
[化7]



(式中、 n^{b6} は、1～10の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0041] n^{b6} は、入手容易性の観点から、1～5の整数が好ましく、1～3の整数がより好ましい。

[0042] [化8]



(式中、 R^{b6} 及び R^{b7} は、各々独立に、水素原子又は炭素数1～5の脂肪族炭化水素基を示す。 n^{b7} は、1～8の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0043] R^{b6} 及び R^{b7} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明は、上記一般式(B1-2)中の R^{b1} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明と同じである。

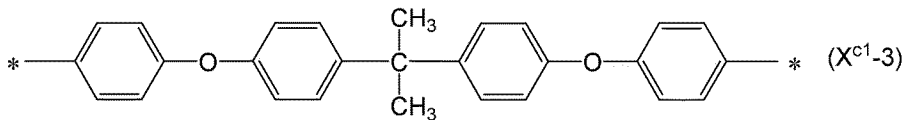
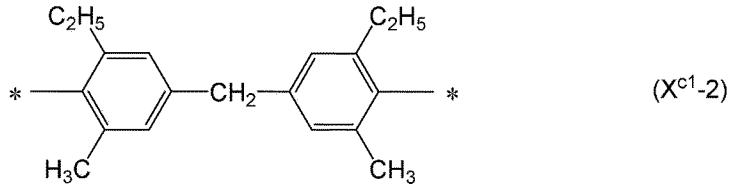
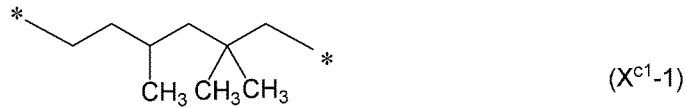
n^{b7} は1～8の整数を示し、1～3の整数が好ましく、1であることがより好ましい。

n^{b7} が2以上の整数である場合、複数の R^{b6} 同士、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよく、複数の R^{b7} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

[0044] 上記一般式(B1-1)中の X^{b1} としては、比誘電率及び誘電正接(以下、これらを「誘電特性」と称する。)の観点から、下記式(X^{b1-1})～(X^{b1-3})のいずれかで表される2価の基であることが好ましく、下記式(X^{b1-3})で表される2価の基であることがより好ましい。

[0045]

[化9]



(式中、*は、マレイミド基中の窒素原子との結合位置を示す。)

[0046] マレイミド化合物としては、有機溶剤への溶解性、相容性、金属箔との接着性及び誘電特性の観点から、マレイミド化合物 (b 1) の誘導体が好ましい。

マレイミド化合物 (b 1) の誘導体としては、マレイミド化合物 (b 1) 由来の構造単位と、第 1 級アミノ基を有するアミン化合物 (b 2) [以下、「アミン化合物 (b 2)」又は「(b 2) 成分」と略称することがある。] 由来の構造単位と、を有する変性マレイミド化合物 (Z) [以下、「変性マレイミド化合物 (Z)」又は「(Z) 成分」と略称することがある。] であることが好ましい。

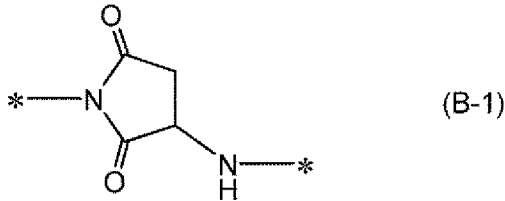
つまり、本実施形態の樹脂組成物は、(B) 成分として前記マレイミド化合物を含有し、且つ、当該マレイミド化合物が、N-置換マレイミド基を少なくとも 2 個以上有するマレイミド化合物 (b 1) 由来の構造単位と第 1 級アミノ基を有するアミン化合物 (b 2) 由来の構造単位と、を有する変性マレイミド化合物である態様が好ましい。

なお、変性マレイミド化合物 (Z) に含まれる (b 1) 成分由来の構造単位及び (b 2) 成分由来の構造単位は、各々について、1 種からなるものであってもよく、2 種以上の組み合わせからなるものであってもよい。

[0047] 変性マレイミド化合物 (Z) は、(b 1) 成分が有するマレイミド基と (

b 2) 成分が有する第 1 級アミノ基とが付加反応してなる、下記式 (B-1) で表される構造を含む化合物であることが好ましい。

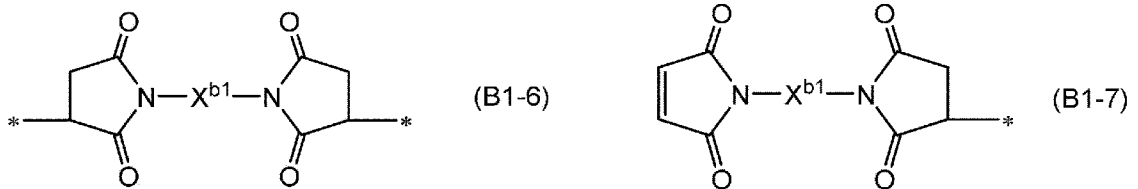
[化10]



(*は他の構造への結合位置を示す。)

[0048] (b 1) 成分由来の構造単位としては、例えば、下記一般式 (B 1-6) で表される基及び下記一般式 (B 1-7) で表される基からなる群から選択される 1 種以上が挙げられる。

[0049] [化11]



(式中、 X^{b1} は上記一般式 (B 1-1) 中の X^{b1} と同じであり、*は他の構造への結合位置を示す。)

[0050] 変性マレイミド化合物 (Z) 中における (b 1) 成分由来の構造単位の含有量は、特に限定されないが、50~95質量%が好ましく、70~92質量%がより好ましく、75~90質量%がさらに好ましい。(b 1) 成分由来の構造単位の含有量が上記範囲内であれば、誘電特性が良好となる傾向にある。

[0051] アミン化合物 (b 2) は、アミノ基を 2 個以上有する化合物が好ましく、アミノ基を 2 個有するジアミン化合物がより好ましい。

アミン化合物 (b 2) としては、例えば、4, 4' -ジアミノジフェニルメタン、4, 4' -ジアミノ-3, 3' -ジメチルジフェニルメタン、3, 3' -ジエチル-4, 4' -ジアミノジフェニルメタン、4, 4' -ジアミノジフェニルエーテル、4, 4' -ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'

ージアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルケトン、4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノビフェニル、2, 2'-ジメチル-4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジヒドロキシベンジジン、2, 2-ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、3, 3'-ジメチル-5, 5'-ジエチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 2-ビス(4-アミノフェニル)プロパン、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 3-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、1, 3-ビス[1-[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]-1-メチルエチル]ベンゼン、1, 4-ビス[1-[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]-1-メチルエチル]ベンゼン、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン、3, 3'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、9, 9-ビス(4-アミノフェニル)フルオレン等の芳香族ジアミン化合物；第1級アミノ基を有するアミン変性シロキサン化合物などが挙げられる。

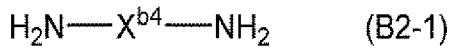
[0052] これらの中でも、(b2)成分としては、低熱膨張性の観点から、第1級アミノ基を有するアミン変性シロキサン化合物が好ましい。

つまり、変性マレイミド化合物(Z)は、シロキサン変性マレイミド化合物(Z)であることが好ましい。換言すると、(B)成分は、シロキサン変性マレイミド化合物を含むことが好ましい。

[0053] アミン化合物(b2)としては、下記一般式(B2-1)で表される化合物が好ましい。

[0054]

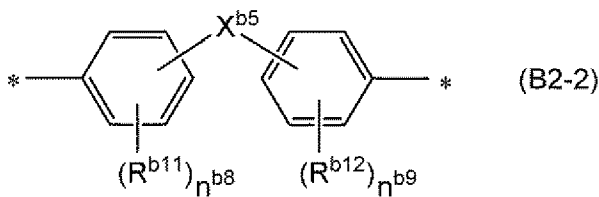
[化12]



(式中、 $\text{X}^{\text{b}4}$ は2価の有機基を示す。)

[0055] (b2)成分は、上記一般式(B2-1)中の $\text{X}^{\text{b}4}$ が、下記一般式(B2-2)で表される2価の基である芳香族ジアミン化合物〔以下、「芳香族ジアミン化合物(B2-2)」と略称することがある。〕を含有することが好ましい。

[0056] [化13]



(式中、 $\text{R}^{\text{b}11}$ 及び $\text{R}^{\text{b}12}$ は、各々独立に、炭素数1~5の脂肪族炭化水素基、炭素数1~5のアルコキシ基、水酸基又はハロゲン原子を示す。 $\text{X}^{\text{b}5}$ は、炭素数1~5のアルキレン基、炭素数2~5のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基、フルオレニレン基、単結合、又は下記一般式(B2-2-1)若しくは(B2-2-2)で表される2価の基を示す。 $\text{n}^{\text{b}8}$ 及び $\text{n}^{\text{b}9}$ は、各々独立に、0~4の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0057] 上記一般式(B2-2)中の $\text{R}^{\text{b}11}$ 及び $\text{R}^{\text{b}12}$ が示す炭素数1~5の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、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。

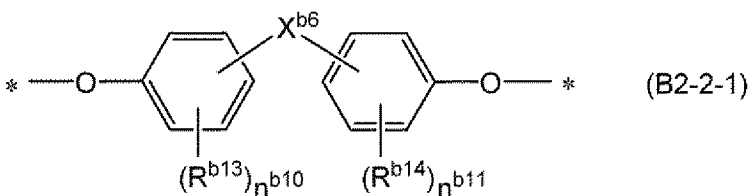
$\text{X}^{\text{b}5}$ が示す炭素数1~5のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、1,2-ジメチレン基、1,3-トリメチレン基、1,4-テトラメチレン基、1,5-ペンタメチレン基等が挙げられる。

$\text{X}^{\text{b}5}$ が示す炭素数2~5のアルキリデン基としては、例えば、エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、ブチリデン基、イソブチリデン基、ペンチリデン基、イソペンチリデン基等が挙げられる。

n^{b8} 及び n^{b9} は、0～4の整数を示し、入手容易性の観点から、0又は1が好ましい。 n^{b8} 又は n^{b9} が2以上の整数である場合、複数の R^{b11} 同士又は複数の R^{b12} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

上記一般式(B2-2)中の X^{b5} が示す一般式(B2-2-1)で表される2価の基は以下の通りである。

[0058] [化14]



(式中、 R^{b13} 及び R^{b14} は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{b6} は炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基、*m*-フェニレンジイソプロピリデン基、*p*-フェニレンジイソプロピリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基又は単結合を示す。 n^{b10} 及び n^{b11} は、各々独立に、0～4の整数を示す。*は結合位置を示す。)

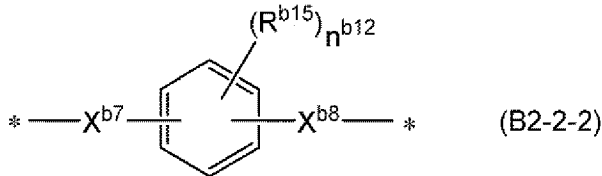
[0059] 上記一般式(B2-2-1)中の R^{b13} 及び R^{b14} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明は、上記一般式(B2-2)中の R^{b11} 及び R^{b12} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基についての説明と同じである。

X^{b6} が示す炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基についての説明は、上記一般式(B2-2)中の X^{b5} が示す炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基についての説明と同じである。

n^{b10} 及び n^{b11} は0～4の整数を示し、入手容易性の観点から、0～2の整数が好ましく、0であることがより好ましい。 n^{b10} が2以上の整数である場合、複数の R^{b13} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。 n^{b11} が2以上の整数である場合、複数の R^{b14} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

上記一般式 (B 2 - 2) 中の X^{b5} が示す一般式 (B 2 - 2 - 2) で表される 2 価の基は以下の通りである。

[0060] [化15]



(式中、 R^{b15} は、炭素数 1 ~ 5 の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{b7} 及び X^{b8} は、各々独立に、炭素数 1 ~ 5 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 5 のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基又は単結合を示す。 n^{b12} は、0 ~ 4 の整数を示す。 $*$ は結合位置を示す。)

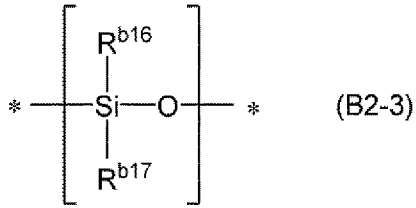
[0061] 上記一般式 (B 2 - 2 - 2) 中の R^{b15} が示す炭素数 1 ~ 5 の脂肪族炭化水素基についての説明は、上記一般式 (B 2 - 2) 中の R^{b11} 及び R^{b12} が示す炭素数 1 ~ 5 の脂肪族炭化水素基についての説明と同じである。

X^{b7} 及び X^{b8} が示す炭素数 1 ~ 5 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 5 のアルキリデン基としては、上記一般式 (B 2 - 2) 中の X^{b5} が示す炭素数 1 ~ 5 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 5 のアルキリデン基と同じものが例示される。これらの中でも、 X^{b7} 及び X^{b8} としては、炭素数 2 ~ 5 のアルキリデン基であることが好ましく、イロプロピリデン基であることがより好ましい。

n^{b12} は 0 ~ 4 の整数を示し、入手容易性の観点から、0 ~ 2 の整数が好ましく、0 であることがより好ましい。 n^{b12} が 2 以上の整数である場合、複数の R^{b15} 同士は同一であってもよいし、異なってもよい。

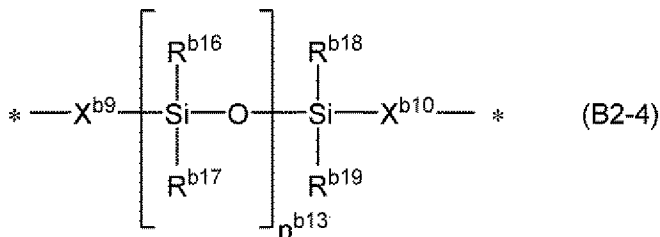
[0062] また、(b 2) 成分は、低熱膨張性の観点から、上記一般式 (B 2 - 1) 中の X^{b4} が下記一般式 (B 2 - 3) で表される構造単位を含有する「アミン変性シロキサン化合物」を含有していることが好ましい。(b 2) 成分は、上記一般式 (B 2 - 1) 中の X^{b4} が下記一般式 (B 2 - 4) で表される構造単位を含有する「末端アミン変性シロキサン化合物」を含有していることがより好ましい。

[0063] [化16]



(式中、 R^{b16} 及び R^{b17} は、各々独立に、炭素数1～5のアルキル基、フェニル基又は置換フェニル基を表す。*は結合位置を示す。)

[0064] [化17]



(式中、 R^{b16} 及び R^{b17} は、上記一般式(B2-3)中のものと同じであり、 R^{b18} 及び R^{b19} は、各々独立に、炭素数1～5のアルキル基、フェニル基又は置換フェニル基を示す。 X^{b9} 及び X^{b10} は、各々独立に、2価の有機基を示し、 n^{b13} は、2～100の整数を示す。*は結合位置を示す。)

[0065] 上記一般式(B2-3)及び(B2-4)中の R^{b16} ～ R^{b19} が示す炭素数1～5の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、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。該アルキル基としては、炭素数1～3のアルキル基が好ましく、メチル基がより好ましい。

R^{b16} ～ R^{b19} が示す置換フェニル基におけるフェニル基が有する置換基としては、例えば、炭素数1～5のアルキル基、炭素数2～5のアルケニル基、炭素数2～5のアルキニル基等が挙げられる。該炭素数1～5の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、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。該炭素数2～5のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基等が挙げられる。該炭素数2～5のアルキニル基としては、例えば、エ

チニル基、プロパルギル基等が挙げられる。

X^{b9} 及び X^{b10} が示す2価の有機基としては、例えば、アルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、アリーレン基、 $-O-$ 又はこれらが組み合わされた2価の連結基等が挙げられる。該アルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基等の炭素数1~10のアルキレン基が挙げられる。該アルケニレン基としては、例えば、炭素数2~10のアルケニレン基が挙げられる。該アルキニレン基としては、例えば、炭素数2~10のアルキニレン基が挙げられる。該アリーレン基としては、例えば、フェニレン基、ナフチレン基等の炭素数6~20のアリーレン基が挙げられる。

これらの中でも、 X^{b9} 及び X^{b10} としては、アルキレン基、アリーレン基が好ましく、アルキレン基がより好ましい。

n^{b13} は、2~100の整数を示し、2~50の整数が好ましく、3~40の整数がより好ましく、5~30の整数がさらに好ましい。 n^{b13} が2以上の整数である場合、複数の R^{b16} 同士又は複数の R^{b17} 同士は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

[0066] (b2) 成分由来の構造単位としては、例えば、下記一般式(B2-5)で表される基及び下記一般式(B2-6)で表される基からなる群から選択される1種以上が挙げられる。

[化18]



(式中、 X^{b4} は上記一般式(B2-1)中の X^{b4} と同じであり、*は結合位置を示す。)

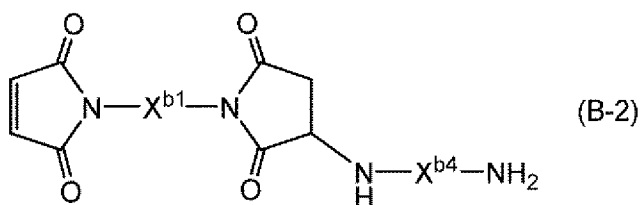
[0067] 変性マレイミド化合物(Z)中における(b2)成分由来の構造単位の含有量は、特に限定されないが、5~50質量%が好ましく、8~30質量%がより好ましく、10~25質量%がさらに好ましい。(b2)成分由来の構造単位の含有量が上記範囲内であれば、低熱膨張性及び誘電特性に優れ、且つ、良好なんだ耐熱性、難燃性及びガラス転移温度が得られる傾向にある。

[0068] 変性マレイミド化合物（Z）中における（b1）成分由来の構造単位と、（b2）成分由来の構造単位の合計含有量は、特に限定されないが、80質量%以上が好ましく、90質量%以上がより好ましく、95質量%以上がさらに好ましく、100質量%（すなわち、（b1）成分由来の構造単位及び（b2）成分由来の構造単位のみからなるもの）であることが特に好ましい。

[0069] 変性マレイミド化合物（Z）中における（b1）成分由来の構造単位と、（b2）成分由来の構造単位との含有比率は、特に限定されないが、（b2）成分の-NH₂基由来の基（-NH₂も含む）の合計当量（Ta2）に対する、（b1）成分に由来するマレイミド基由来の基（マレイミド基も含む）の合計当量（Ta1）の当量比（Ta1/Ta2）が、好ましくは0.05～10、より好ましくは2～8となる含有比率である。当量比（Ta1/Ta2）が上記範囲内であれば、低熱膨張性及び誘電特性に優れ、且つ、良好な耐熱性、難燃性及びガラス転移温度が得られる傾向にある。

[0070] マレイミド化合物は、誘電特性、絶縁信頼性、有機溶剤への溶解性、金属箔との接着性、成形性等の観点から、下記一般式（B-2）で表される化合物を含有することが好ましい。

[0071] [化19]



（式中、X^{b1}及びX^{b4}は、上記一般式（b1-1）及び（b2-1）における説明の通りである。）

[0072] （変性マレイミド化合物（Z）の製造方法）

（Z）成分は、例えば、（b1）成分と（b2）成分とを有機溶剤中で反応させることで製造することができる。

具体的には、（b1）成分、（b2）成分、必要によりその他の成分を反応器に所定量仕込み、（b1）成分と（b2）成分とをマイケル付加反応〔

以下、「プレ反応」と称することがある。]を行うことにより、変性マレイミド化合物（Z）が得られる。

反応条件は特に限定されないが、ゲル化を抑制しつつ、良好な反応性及び作業性が得られるという観点からは、反応温度は好ましくは50～160℃、より好ましくは90～140℃、反応時間は好ましくは1～10時間、より好ましくは1～5時間である。

[0073] プレ反応では、必要に応じて反応触媒を使用してもよい。反応触媒としては、例えば、p-トルエンスルホン酸等の酸性触媒；トリエチルアミン、ピリジン、トリブチルアミン等のアミン；メチルイミダゾール、フェニルイミダゾール等のイミダゾール系化合物；トリフェニルホスフィン等のリン系触媒などが挙げられる。これらは1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。また、反応触媒の配合量に特に制限はないが、(b1)成分及び(b2)成分の合計量100質量部に対して、例えば、0.01～5質量部である。

[0074] また、プレ反応では、必要に応じて有機溶剤を追加又は濃縮して反応原料の固形分濃度及び反応液粘度を調整してもよい。反応原料の固形分濃度は、特に限定されないが、10～90質量%が好ましく、20～80質量%がより好ましい。反応原料の固形分濃度が前記下限値以上であれば、十分な反応速度が得られ、製造コストの面で有利となる傾向にあり、前記上限値以下であれば、良好な溶解性が得られ、攪拌効率が良くなり、ゲル化し難くなる傾向にある。

[0075] 変性マレイミド化合物（Z）の重量平均分子量（Mw）は、特に限定されないが、400～10,000が好ましく、1,000～5,000がより好ましく、1,500～4,000がさらに好ましく、2,000～3,000が特に好ましい。

[0076] ((B)成分の含有量)

(B)成分の含有量は、前記(A)～(C)成分の総量100質量部に対して、50～95質量部が好ましく、55～90質量部がより好ましく、6

0～85質量部がさらに好ましく、65～85質量部が特に好ましい。(B)成分の含有量が前記下限値以上であれば、金属箔との十分な接着強度及び高いはんだ耐熱性が得られる傾向にあり、また、前記上限値以下であれば、低弾性及び柔軟性が良好なものとなる傾向にある。

[0077] <(C)成分>

(C)成分は、(C1)リン酸エステル化合物、(C2)ホスファゼン化合物及び(C3)ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種である。(C)成分は、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、(C1)リン酸エステル化合物及び(C2)ホスファゼン化合物からなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましい。

前記(A)成分と前記(B)成分に加えてさらに当該(C)成分を樹脂組成物に含有させることで、低熱膨張性に優れ、さらに、金属箔との接着強度とはんだ耐熱性に優れたものとなる。当該効果が得られる正確なメカニズムは不明であるが、上記特定の(C)成分が前記(A)及び(B)成分を含む樹脂組成物又は樹脂ワニスに対して相容性又は溶解性に優れていることが、当該効果に影響を及ぼしていると推察している。

以下、(C1)～(C3)成分について順に詳述する。

[0078] ((C1)リン酸エステル化合物)

リン酸エステル化合物は、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。リン酸エステル化合物は、市販品を使用することができる。

リン酸エステル化合物としては、芳香族リン酸エステル〔以下、芳香族リン酸エステル(C1-1)と称する。〕が好ましい。当該芳香族リン酸エステルは、芳香族炭化水素基を有するリン酸エステルである。

[0079] 前記芳香族リン酸エステル(C1-1)が有する前記芳香族炭化水素基は、1価の基であっても、2価以上の基であってもよい。芳香族炭化水素基が2価の基である場合、当該2価の芳香族炭化水素基は、2つのリン酸エステル結合を連結する2価の基、すなわち、 $>P(=O)-O-$ 芳香族炭化水素

基-O-P(=O) <を形成する基であることが好ましい。

[0080] 芳香族炭化水素基が含む芳香環は、非縮合環であってもよいし、縮合環であってもよい。前記芳香環としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環等が挙げられる。これらの中でも、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、ベンゼン環が好ましい。

芳香環は、置換基によって置換されていてもよく、置換されていなくてもよい。当該置換基としては、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、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等の炭素数1~5の脂肪族炭化水素基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子などが挙げられる。

前記芳香族炭化水素基としては、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、置換又は非置換のフェニル基、置換又は非置換のフェニレン基が好ましく、非置換のフェニル基、非置換のフェニレン基がより好ましい。

芳香族リン酸エステル(C1-1)が芳香族炭化水素基を複数有する場合、それらは互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0081] 前記芳香族炭化水素基は、炭素数5以下の連結基を有していてもよい。炭素数5以下の連結基としては、炭素数が1~5の2価の炭化水素基、炭素数が5以下の2価のヘテロ原子含有基、炭化水素基とヘテロ原子含有基とが連結した炭素数が1~5の2価の基などが挙げられる。なお、ここでの「炭素数5以下」とは、炭素数が0である場合(例えば、-O-、-S(=O)₂-等)も含む。

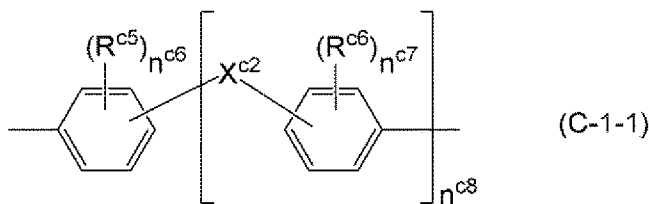
炭素数1~5の2価の炭化水素基としては、メチレン基、1,2-ジメチレン基、1,3-トリメチレン基、1,4-テトラメチレン基、1,5-ペンタメチレン基等の炭素数1~5のアルキレン基；エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、ブチリデン基、イソブチリデン基、ペンチリデン基、イソペンチリデン基等の炭素数2~5のアルキリデン基などが挙げ

られる。

炭素数が5以下の2価のヘテロ原子含有基としては、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基等が挙げられる。

[0082] 前記芳香族炭化水素基が2価の基である場合、当該芳香族炭化水素基は、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、下記一般式(C-1-1)で表される2価の基であることが好ましい。

[0083] [化20]



(式中、 R^{c5} 及び R^{c6} は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{c2} は、炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基又は単結合を示す。 n^{c6} 及び n^{c7} は、各々独立に、0～4の整数を示す。 n^{c8} は、1～3の整数を示す。)

[0084] 前記一般式(C-1-1)中の X^{c2} が示す炭素数1～5のアルキレン基としては、メチレン基、1,2-ジメチレン基、1,3-トリメチレン基、1,4-テトラメチレン基、1,5-ペンタメチレン基等が挙げられる。

X^{c2} が示す炭素数2～5のアルキリデン基としては、エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、ブチリデン基、イソブチリデン基、ペンチリデン基、イソペンチリデン基等が挙げられる。

X^{c2} が示す基の中でも、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、メチレン基、イソプロピリデン基、単結合が好ましく、単結合、イソプロピリデン基がより好ましい。

[0085] 前記一般式(C-1-1)中の R^{c5} 及び R^{c6} が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水素基としては、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、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。

[0086] 前記一般式 (C-1-1) 中の n^{o6} 及び n^{o7} は、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、0~3の整数が好ましく、0又は1がより好ましく、0がさらに好ましい。 n^{o6} が2以上の整数である場合、複数の R^{o5} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよい。 n^{o7} が2以上の整数である場合、複数の R^{o6} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよい。

[0087] 前記一般式 (C-1-1) 中の n^{o8} は、1又は2が好ましく、1がより好ましい。 n^{o8} が2以上の整数である場合、複数の X^{o2} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよく、複数の n^{o7} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよい。

[0088] 芳香族リン酸エステル (C 1-1) が1分子中に有するリン原子の数は、特に限定されないが、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、1~10個が好ましく、2~5個がより好ましく、2個又は3個がさらに好ましく、2個が特に好ましい。芳香族リン酸エステル (C 1-1) がリン原子を2個以上有する場合、ある特定のリン原子が形成するリン酸エステル結合と、別のリン原子が形成するリン酸エステル結合とが、前記2価の芳香族炭化水素基によって連結されている縮合リン酸エステルであることが好ましい。

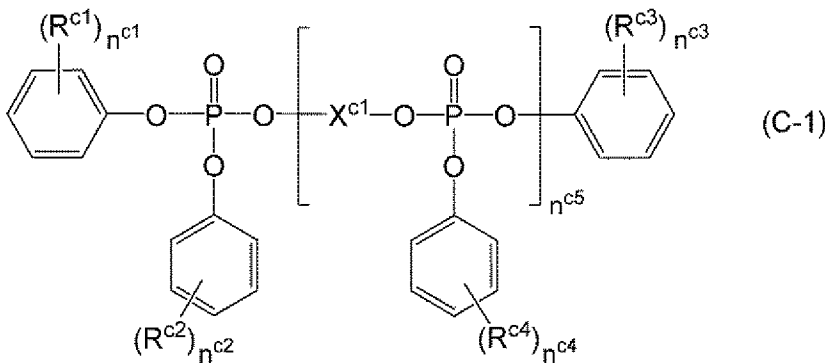
[0089] 芳香族リン酸エステル (C 1-1) が有するリン酸エステル基としては、アルキルエステル、アリールエステル、アラルキルエステル等のいずれであってもよいが、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、アリールエステルであることが好ましい。

アリールエステルを構成するアリール基は、前記1価の芳香族炭化水素基と同様であり、例えば、置換又は非置換のフェニル基、置換又は非置換のナフチル基等が挙げられる。当該アリール基の置換基としては、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、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等の炭素数1～5の炭化水素基；ハロゲン原子などが挙げられる。これらの中でも、アリアル基としては、非置換のフェニル基又は2,5-ジメチルフェニル基が好ましい。

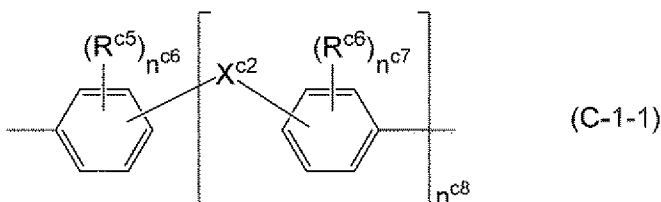
[0090] 芳香族リン酸エステル（C-1）は、低熱膨張性を良好に維持したまま、金属箔との接着強度及びはんだ耐熱性を向上させるという観点から、下記一般式（C-1）で表される芳香族リン酸エステルであることが好ましい。

[0091] [化21]



（式中、 $R^{c1} \sim R^{c4}$ は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{c1} は、下記一般式（C-1-1）で表される2価の基又は2価の縮合多環式芳香族炭化水素基を示す。 $n^{c1} \sim n^{c4}$ は、各々独立に、0～5の整数を示し、 n^{c5} は、0～5の整数を示す。）

[0092] [化22]



（式中、 R^{c5} 及び R^{c6} は、各々独立に、炭素数1～5の脂肪族炭化水素基又はハロゲン原子を示す。 X^{c2} は、炭素数1～5のアルキレン基、炭素数2～5のアルキリデン基、エーテル基、スルフィド基、スルホニル基、カルボニルオキシ基、ケト基又は単結合を示す。 n^{c6} 及び n^{c7} は、各々独立に、0～4の整数を示す。 n^{c8} は、1～3の整数を示す。）

[0093] 前記一般式（C-1）中の $R^{c1} \sim R^{c4}$ が示す炭素数1～5の脂肪族炭化水

素基としては、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、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等が挙げられる。当該脂肪族炭化水素基としては、炭素数1~3の脂肪族炭化水素基が好ましく、炭素数1~3のアルキル基がより好ましく、メチル基がさらに好ましい。

$n^{o1} \sim n^{o4}$ は、0~5の整数を示し、0~2の整数が好ましく、0又は2であることがより好ましく、2であることがさらに好ましい。 $n^{o1} \sim n^{o4}$ が2以上の整数である場合、複数の R^{o1} 同士、 R^{o2} 同士、 R^{o3} 同士又は R^{o4} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよい。

n^{o5} は0~5の整数を示し、1~3の整数が好ましく、1又は2であることがより好ましく、1であることがさらに好ましい。 n^{o5} が2以上の整数である場合、複数の X^{o1} 同士及び複数の n^{o4} 同士は、それぞれ同一であっても異なってもよい。

[0094] 前記一般式(C-1-1)中の各基の定義は前述の通りである。

[0095] 前記一般式(C-1)中の X^{o1} が示す2価の縮合多環式芳香族炭化水素基としては、ナフタレン、アントラセン、ピレン等の縮合多環式芳香族炭化水素から2個の水素原子を除いてなる2価の基が挙げられる。当該縮合多環式芳香族炭化水素基は、置換基によって置換されていてもよく、置換されていなくてもよい。縮合多環式芳香族炭化水素基の置換基としては、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、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基等の炭素数1~5の脂肪族炭化水素基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子などが挙げられる。

[0096] リン酸エステル化合物の具体例としては、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、クレジルジ-2,6-キシレニルホスフェート、1,3-フェニレンービス(ジ-2,6-ジメチルフェニルホスフェート)、1,3-フェニレンービス(ジフェニルホスフェート)、ビスフェノールAビス(

ジフェニルホスフェート)、1,4-フェニレンービス(ジ-2,6-ジメチルフェニルホスフェート)、4,4'-ビフェニレンービス(ジ-2,6-ジメチルフェニルホスフェート)、ビスフェノールA-ポリフェニルホスフェート、4,4'-ビフェノール-ポリクレジルホスフェート、ビスフェノールA-ポリクレジルホスフェート、4,4'-ビフェノール-ポリ(2,6-キシレニルホスフェート)、ビスフェノールA-ポリ(2,6-キシレニルホスフェート)等が挙げられる。

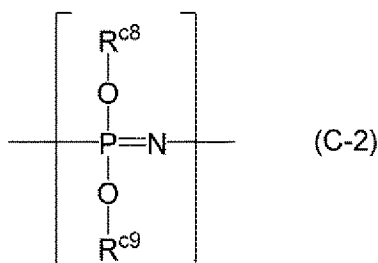
なお、上記リン酸エステル化合物の具体例における「ポリ」とは、リン酸エステル化合物を構成する2価のフェノール化合物由来の構造とリン酸由来構造とからなる繰り返し単位(例えば、前記一般式(C-1)中でいうと、鍵括弧内の構造単位のことである。)数が2以上である化合物を意味し、当該化合物を含有することで前記繰り返し単位の平均値が1を超えるものを意味する場合もある。

[0097] ((C2)ホスファゼン化合物)

ホスファゼン化合物は、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。ホスファゼン化合物は市販品を使用することができる。

ホスファゼン化合物は、下記一般式(C-2)で表される構造単位を有するものが好ましい。

[0098] [化23]



(式中、 R^{c8} 及び R^{c9} は、各々独立に、炭素数1~20の有機基を示す。)

[0099] 上記一般式(C-2)中の R^{c8} 及び R^{c9} が示す炭素数1~20の有機基としては、炭素数1~20の脂肪族炭化水素基、炭素数6~20の芳香族炭化水素基等が挙げられる。

[0100] R^{c8} 及び R^{c9} が示す炭素数1~20の有機基として挙げられる炭素数1~

20の脂肪族炭化水素基としては、炭素数1～20のアルキル基、炭素数2～20のアルケニル基、炭素数2～20のアルキニル基等が挙げられる。上記脂肪族炭化水素基は、直鎖状、分岐鎖状又は環状のいずれであってもよい。

炭素数1～20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、t-ブチル基、n-ペンチル基、2-エチルヘキシル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。炭素数2～20のアルケニル基としては、ビニル基、プロペニル、ブテニル基等が挙げられる。炭素数2～20のアルキニル基としては、2-プロピニル基、3-ブチニル基等が挙げられる。

炭素数1～20の脂肪族炭化水素基は置換基を有していてもよく、置換基を有していなくてもよい。該置換基としては、水酸基、カルボキシ基、ハロゲン原子、芳香族炭化水素基、アシル基、アルコキシ基、これらの置換基が連結した基等が挙げられる。脂肪族炭化水素基が置換基を有する場合、上記炭素数には置換基の炭素数も含まれる。

[0101] R^{○8}及びR^{○9}が示す炭素数1～20の有機基として挙げられる炭素数6～20の芳香族炭化水素基の炭素数は、6～15が好ましく、6～10がより好ましい。

炭素数6～20の芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基等が挙げられる。

炭素数6～20の芳香族炭化水素基は置換基を有していてもよく、置換基を有していなくてもよい。当該置換基としては、水酸基、カルボキシ基、ハロゲン原子、脂肪族炭化水素基、アシル基、アルコキシ基、シアノ基、これらの置換基が連結した基等が挙げられる。当該置換基としては、シアノ基が好ましい。なお、芳香族炭化水素基が置換基を有する場合、上記炭素数には置換基の炭素数も含まれる。

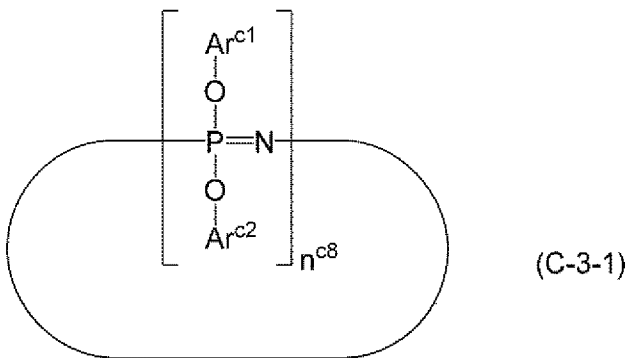
これらの中でも、R^{○8}及びR^{○9}が示す炭素数1～20の有機基は、難燃性の観点から、炭素数6～20の芳香族炭化水素基が好ましく、非置換のフェ

ニル基、置換基を有するフェニル基がより好ましく、非置換のフェニル基、シアノフェニル基がさらに好ましい。

[0102] ホスファゼン化合物は、鎖状ホスファゼン化合物であってもよいし、環状ホスファゼン化合物であってもよいが、環状ホスファゼン化合物であることが好ましい。

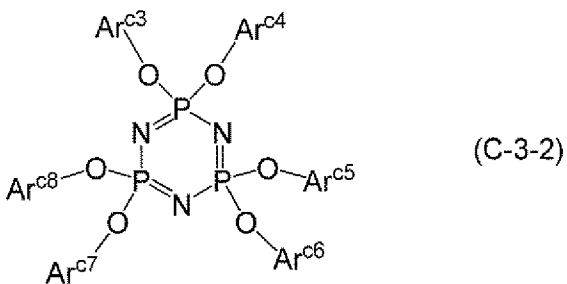
環状ホスファゼン化合物としては、下記一般式（C-3-1）で表されるホスファゼン化合物が好ましく、下記一般式（C-3-2）で表されるホスファゼン化合物がより好ましい。

[0103] [化24]



(式中、 Ar^{c1} 及び Ar^{c2} は、各々独立に、炭素数6～20の芳香族炭化水素基を示す。 n^{c8} は、3～20の整数を示す。)

[化25]



(式中、 $Ar^{c3} \sim Ar^{c8}$ は、各々独立に、炭素数6～20の芳香族炭化水素基を示す。)

[0104] 上記一般式（C-3-1）中における Ar^{c1} 及び Ar^{c2} が示す炭素数6～20の芳香族炭化水素基、並びに上記一般式（C-3-2）中における $Ar^{c3} \sim Ar^{c8}$ が示す炭素数6～20の芳香族炭化水素基についての説明は、上記

一般式 (C-2) 中における R^{C8} 及び R^{C9} が示す炭素数 6 ~ 20 の芳香族炭化水素基についての説明と同じである。

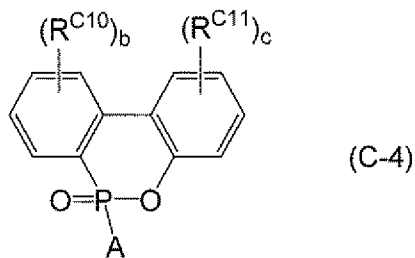
上記一般式 (C-3-1) 中における n^{C8} は 3 ~ 20 の整数を示し、3 ~ 10 の整数が好ましく、3 ~ 5 の整数がより好ましく、3 がさらに好ましい。

[0105] ((C3) ホスファフェナントレン化合物)

ホスファフェナントレン化合物は、1 種類を単独で用いてもよいし、2 種類以上を併用してもよい。ホスファフェナントレンは、市販品を使用することができる。

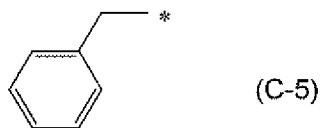
ホスファフェナントレンとしては、例えば下記式 (C-4) で表される化合物などが挙げられる。

[化26]



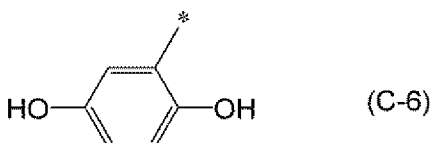
(式中、 R^{C10} 及び R^{C11} は、それぞれ独立して、水素原子、炭素原子数 1 以上 6 以下の炭化水素基である。b 及び c は、それぞれ独立して、0 以上 4 以下の整数である。A は、水素原子又は下記式 (C-5) ~ (C-7) のいずれかで示される基である。)

[化27]



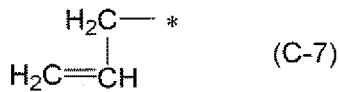
(*は結合位置を示す。)

[化28]



(*は結合位置を示す。)

[化29]



(*は結合位置を示す。)

[0106] ホスファフェナントレンとしては、9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン10-オキシド、9, 10-ジヒドロ-10-(2, 5-ジヒドロキシフェニル)-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン10-オキシド等が挙げられる。

[0107] ((C)成分の含有量)

本実施形態の樹脂組成物中における(C)成分の含有量は、特に限定されないが、前記(A)～(C)成分の総量100質量部に対して、3～40質量部が好ましく、5～30質量部がより好ましく、5～25質量部がさらに好ましく、5～20質量部が特に好ましい。(C)成分の含有量が前記下限値以上であれば、低熱膨張性を維持しながら、金属箔との接着強度とはんだ耐熱性が向上する傾向にあり、また、前記上限値以下であれば、優れた低熱膨張性が得られる傾向にある。

[0108] <(D)フィラー>

本実施形態の樹脂組成物は、さらに、(D)フィラー(以下、「(D)成分」と称することがある。)を含有していてもよい。

(D)フィラーとしては、特に限定されないが、低熱膨張性及び難燃性を確保する観点から、無機フィラーが好ましい。無機フィラーとしては、シリカ、アルミナ、酸化チタン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、ほう酸アルミニウムウイスカ、窒化ホウ素、炭化ケイ素等が挙げられる。(D)フィラーは1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、比誘電率が低いこと、線膨張率が低いこと等から、シリカが好ましい。シリカとしては、湿式法

又は乾式法で合成された合成シリカ、破碎シリカ、溶融シリカ等が挙げられる。

[0109] (D) フィラーは、カップリング処理を施したフィラーであってもよい。前記カップリング処理に用いるカップリング剤としては、シランカップリング剤が好ましい。シランカップリング剤としては、アミノシラン系カップリング剤、エポキシシラン系カップリング剤、フェニルシラン系カップリング剤、アルキルシラン系カップリング剤、アルケニルシラン系カップリング剤、アルキニルシラン系カップリング剤、シリコーンオリゴマー系カップリング剤等が挙げられる。これらは1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0110] (D) 成分の平均粒子径は、0.1~2.5 μm が好ましく、0.2~1.5 μm がより好ましく、0.3~0.8 μm がさらに好ましい。(D)成分の平均粒径が前記下限値以上であれば、樹脂ワニス中においてフィラーが分散し易いため、凝集が発生し難い傾向にあり、前記上限値以下であれば、樹脂ワニス中において(D)成分の沈降が発生し難い傾向にある。

ここで、本実施形態における平均粒子径とは、粒子の全体積を100%として粒子径による累積度数分布曲線を求めたとき、体積50%に相当する点の粒子径のことであり、レーザ回折散乱法を用いた粒度分布測定装置等で測定することができる。

[0111] ((D)成分の含有量)

本実施形態の樹脂組成物が(D)フィラーを含有する場合、その含有量は、特に限定されないが、前記(A)成分及び前記(B)成分の総量100質量部に対して、30~300質量部が好ましく、50~250質量部がより好ましく、70~200質量部がさらに好ましく、100~200質量部が特に好ましく、130~170質量部が最も好ましい。(D)フィラーの含有量が前記下限値以上であれば、低熱膨張性が高くなり、且つ、十分なんだ耐熱性が得られる傾向がある。(D)フィラーの含有量が前記上限値以下であれば、(A)アクリルポリマーの有する低弾性及び柔軟性が十分に得ら

れる傾向がある。

[0112] < (E) 硬化剤 >

本実施形態の樹脂組成物は、(E) 硬化剤（以下、「(E) 成分」と称することがある。）を含有していてもよい。(E) 成分によって、金属箔との接着強度が高まる傾向にある。

(E) 硬化剤としては、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ビスフェノールAノボラック樹脂、ビフェニルノボラック型フェノール樹脂、アミノトリアジンノボラック型フェノール樹脂等のフェノール樹脂；ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン等のアミン系硬化剤；無水ピロメリット酸、無水トリメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸等の酸無水物；活性エステル硬化剤などが挙げられる。(E) 成分は1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0113] ((E) 成分の含有量)

本実施形態の樹脂組成物が(E) 硬化剤を含有する場合、その含有量は、特に限定されないが、上記(B) 成分の官能基に対する(E) 硬化剤由来の活性基の総量が0.5～1.5当量であることが好ましく、0.6～1.3当量であることがより好ましく、0.7～1.2当量であることがさらに好ましい。(E) 硬化剤の含有量が上記範囲内であれば、金属箔との接着性、ガラス転移温度及び絶縁性に優れる傾向にある。

[0114] < (F) 硬化促進剤 >

本実施形態の樹脂組成物は、(F) 硬化促進剤（以下、「(F) 成分」と称することがある。）を含有していてもよい。(F) 成分は1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

例えば、前記(B) 熱硬化性樹脂がエポキシ樹脂を含有する場合には、(F) 硬化促進剤としては、特に制限されるものではないが、アミン化合物及びイミダゾール系化合物からなる群から選択される1種以上を含むことが好ましく、イミダゾール系化合物を含むことがより好ましい。

上記アミン化合物としては、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルエタン、グアニル尿素等が挙げられる。

上記イミダゾール系化合物としては、2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート、ベンゾイミダゾール、イソシアネートマスキイミダゾール（例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート樹脂と2-エチル-4-メチルイミダゾールの付加反応物等）等が挙げられる。

[0115] （（F）成分の含有量）

本実施形態の樹脂組成物が（F）硬化促進剤を含有する場合、その含有量は、特に限定されないが、前記（A）成分及び前記（B）成分の総量100質量部に対して、0.01～10質量部が好ましく、0.03～2質量部がより好ましく、0.1～1質量部がさらに好ましい。

[0116] <その他の成分>

本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、メラミン樹脂等の架橋剤、難燃剤、難燃助剤、ゴム系エラストマー、導電性粒子、カップリング剤、流動調整剤、酸化防止剤、熱安定剤、帯電防止剤、顔料、レベリング剤、消泡剤、イオントラップ剤などを含有していてもよい。これらのその他の成分は、公知のものを使用できる。

[0117] 本実施形態の樹脂組成物は、有機溶剤に溶解又は分散させた状態、いわゆる「樹脂ワニス」の状態にしてもよい。以下、有機溶剤を含有する樹脂組成物を樹脂ワニスと称することがある。

前記有機溶剤としては、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶剤；メトキシエチルアセテート、エトキシエチルアセテート、ブトキシエチルアセテート、酢酸エチル等のエステル系溶剤；N-メチルピロリドン、ホルムアミド、N-メチルホルムアミド、N,N-ジメチル

アセトアミド等のアミド系溶剤；メタノール、エタノール、エチレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコール、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、トリエチレングリコール、プロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、ジプロピレングリコールモノプロピルエーテル等のアルコール系溶剤などが挙げられる。有機溶剤は、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

ワニス中の固形分濃度は、10～70質量%が好ましく、20～60質量%がより好ましく、35～60質量%がさらに好ましい。

[0118] [プリプレグ]

本実施形態のプリプレグは、基材と、本実施形態の樹脂組成物の半硬化物と、を含むものである。ここで、「基材と、本実施形態の樹脂組成物の半硬化物と、を含む」という表現は、樹脂組成物が基材に含浸された状態で半硬化（B-ステージ化）されたものを含むことを意味する。ここで、本明細書においてB-ステージ化とは、JIS K6900（1994年）にて定義されるB-ステージの状態にすることである。

当該プリプレグは、例えば、ワニス状の本実施形態の樹脂組成物を基材に含浸又は塗工した後、加熱乾燥することによって樹脂組成物を半硬化（B-ステージ化）させることにより製造することができる。

[0119] 樹脂組成物を基材に含浸又は塗工させる方法としては、次のホットメルト法又はソルベント法を採用できる。

ホットメルト法は、樹脂組成物に有機溶剤を含有させず、（1）該樹脂組成物との剥離性の良い塗工紙に一旦塗工し、それを基材にラミネートする方法、又は（2）ダイコーターにより基材に直接塗工する方法である。

一方、ソルベント法は、樹脂組成物に有機溶剤を含有させ、得られた樹脂組成物に基材を浸漬することによって樹脂組成物を基材に含浸させ、その後

、乾燥させる方法である。

[0120] 基材としては、通常、織布、不織布等の繊維基材が用いられ、織布であることが好ましい。また、基材はシート状繊維基材であることが好ましい。

繊維基材の材質としては、ガラス、アルミナ、アスベスト、ボロン、シリカアルミナガラス、シリカガラス、チラノ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、ジルコニア等の無機繊維；アラミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリエーテルスルホン、カーボン、セルロース等の有機繊維；これらの混抄物などが挙げられる。これらの中でも無機繊維が好ましく、ガラス繊維がより好ましい。つまり、基材としては、ガラス繊維の織布、つまりガラスクロスであることが好ましい。

基材の厚さは、5～200 μm が好ましく、10～100 μm であってもよく、20～50 μm であってもよい。基材の厚さを上記上限値以下とすることにより、製造プロセス上での温度変化、吸湿等に伴う寸法変化を小さくすることができる。

[0121] プリプレグの製造条件は、特に限定されないが、ソルベント法であれば、得られるプリプレグ中において、樹脂ワニスに使用した有機溶剤が80質量%以上揮発していることが好ましい。

基材へ樹脂組成物を含浸又は塗工させた後の乾燥温度は、好ましくは80～180 $^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは100～140 $^{\circ}\text{C}$ であり、乾燥時間は樹脂組成物のゲル化時間との兼ね合いで適宜設定される。

[0122] 本実施形態のプリプレグ中における樹脂組成物由来の固形分含有量は、特に限定されないが、30～90質量%が好ましく、35～80質量%がより好ましく、40～70質量%がさらに好ましく、45～60質量%が特に好ましい。プリプレグ中における樹脂組成物由来の固形分含有量が上記範囲内であれば、積層板とした際に良好な成形性が得られる傾向にある。

[0123] 本実施形態のプリプレグの厚みは、特に限定されるものではなく、10～200 μm であってもよく、10～150 μm であってもよく、10～100 μm であってもよい。

[0124] [積層板、金属張り積層板]

本実施形態の積層板は、本実施形態のプリプレグの硬化物を含む積層板である。また、本実施形態の金属張り積層板は、金属箔と、本実施形態のプリプレグの硬化物と、を含む金属張り積層板である。

金属張り積層板は、例えば、本実施形態のプリプレグ1枚の両側又はプリプレグを2枚以上（好ましくは2～20枚）積層した積層体の両側の接着面と金属箔とを合わせるように重ね、真空プレスにて、好ましくは130～260℃、より好ましくは180～250℃、さらに好ましくは210～250℃で、圧力0.5～10MPa、好ましくは1～5MPaで加熱加圧成形することによって製造することができる。

[0125] 金属張り積層板に用いられる金属箔としては、銅箔、アルミニウム箔、錫箔、錫鉛合金（はんだ）箔、ニッケル箔等が挙げられる。その他にも、ニッケル、ニッケルーリン、ニッケルスズ合金、ニッケル-鉄合金、鉛、鉛-スズ合金等を中間層とし、この両面に0.5～15μmの銅層と10～300μmの銅層を設けた3層構造の複合箔、アルミニウムと銅箔とを複合した2層構造複合箔などを用いることができる。

金属箔としては、銅箔、アルミニウム箔が好ましく、銅箔がより好ましい。

金属箔の厚さは、一般的に積層板に用いられる厚さとすることができ、例えば、1～200μmである。

[0126] なお、本実施形態の積層板、金属張り積層板において、前記プリプレグ（詳細には、プリプレグ中の樹脂組成物）はC-ステージ化されて硬化物となっている。換言すると、本実施形態の積層板は、C-ステージ化されたプリプレグを含んでおり、本実施形態の金属張り積層板は、C-ステージ化されたプリプレグと金属箔とを含んでいるものということもできる。ここで、本明細書においてC-ステージ化とは、JIS K6900（1994年）にて定義されるC-ステージの状態にすることである。

[0127] [プリント配線板]

本実施形態のプリント配線板は、本実施形態の積層板又は金属張り積層板を含むものである。本実施形態のプリント配線板は、積層板又は金属張り積層板を必ずしもそのまま含む必要はなく、例えば、積層板又は金属張り積層板に、穴開け加工、金属めっき加工、金属箔のエッチング等による回路形成加工などが施された状態で含む場合も含まれる。

本実施形態のプリント配線板は、本実施形態の積層板又は金属張り積層板を用いて、公知の方法によって、穴開け加工、金属めっき加工、金属箔のエッチング等による回路形成加工を行い、さらに必要に応じて多層化加工を行うことによって製造することができる。

[0128] [半導体パッケージ]

本実施形態の半導体パッケージは、本実施形態のプリント配線板と、半導体素子と、を含むものである。換言すると、本実施形態の半導体パッケージは、本実施形態のプリント配線板に半導体素子を搭載してなるものである。

本実施形態の半導体パッケージは、例えば、本実施形態のプリント配線板の所定の位置に半導体チップ、メモリ等の半導体素子を公知の方法によって搭載し、封止樹脂等によって半導体素子を封止することによって製造できる。

実施例

[0129] 以下、実施例を挙げて本実施形態を具体的に説明する。ただし、本実施形態は以下の実施例に限定されるものではない。

[0130] なお、各例において、重量平均分子量 (M_w) は以下の方法によって測定した。

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) により、標準ポリスチレンを用いた検量線から換算した。検量線は、標準ポリスチレン: TSK standard POLYSTYRENE (Type; A-2500、A-5000、F-1、F-2、F-4、F-10、F-20、F-40) [東ソー株式会社製、商品名] を用いて3次式で近似した。GPCの測定条件を、以下に示す。

装置：

ポンプ：L-6200型 [株式会社日立ハイテクノロジーズ製]

検出器：L-3300型RI [株式会社日立ハイテクノロジーズ製]

カラムオープン：L-655A-52 [株式会社日立ハイテクノロジーズ製]

カラム：ガードカラム；「TSK Guardcolumn HHR-L」+カラム；「TSK gel G4000HHR」+「TSK gel G2000HHR」（すべて東ソー株式会社製、商品名）

カラムサイズ：6.0×40mm（ガードカラム）、7.8×300mm（カラム）

溶離液：テトラヒドロフラン

試料濃度：30mg/5mL

注入量：20μL

流量：1.00mL/分

測定温度：40℃

[0131] [製造例1：シロキサン変性マレイミド化合物の製造]

温度計、攪拌装置、還流冷却管付き水分定量器を備えた、加熱及び冷却可能な容積2Lの反応容器に、両末端ジアミン変性シロキサン（信越化学工業株式会社製、商品名：X-22-161A、アミノ基の官能基当量：800g/mol）100gと、2,2-ビス[4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン450gと、プロピレングリコールモノメチルエーテル550gを入れた後、120℃で3時間反応させてシロキサン変性マレイミド化合物含有液を製造した。得られた変性マレイミド樹脂の重量平均分子量（Mw）は、2,500であった。

[0132] 実施例1～5、比較例1～2

（樹脂組成物、樹脂ワニスの調製）

表1に示す各成分を、表1に示す配合量（表1中に記載の配合量は、固形分の質量部である。）で配合し、メチルエチルケトン中で混合することによ

って、不揮発分（固形分濃度）50質量%の樹脂組成物（樹脂ワニス）を得た。

（プリプレグの作製）

各例で作製した樹脂ワニスを、ガラスクロスT2118（日東紡績株式会社製、商品名）に含浸した後、120℃にて5分間加熱して乾燥させることによって、プリプレグを得た。

（両面銅張積層板の作製）

4枚重ねたプリプレグの両側に厚さ12 μ mの電解銅箔「3EC-M3-VLP-12」（三井金属鉱業株式会社製、商品名）を接着面がプリプレグと合わさるように重ね、240℃にて80分間、3MPaの真空プレス条件で加熱加圧することによって、両面銅張積層板を作製した。

[0133] [評価方法]

（1）熱膨張率

各例で得た両面銅張積層板を銅エッチング液に浸漬することにより銅箔を取り除いた5mm角の評価基板を作製し、熱機械測定装置（TMA）[ティー・エイ・インストルメント・ジャパン株式会社製、Q400（型番）]を用いて圧縮法で熱機械分析を行った。

評価基板を前記装置にX方向に装着後、荷重5g、昇温速度10℃/分の測定条件にて2回測定した。2回目の測定における30℃から100℃までの平均熱膨張率（面方向の線熱膨張率の平均）を算出し、これを熱膨張率（線熱膨張率）の値とした。なお、2回目の測定結果を用いたのは、測定精度を向上させるためである。

[0134] （2）銅箔との接着強度

銅箔との接着強度は、各例で得た両面銅張積層板の銅箔を部分的にエッチングして3mm幅の銅箔ラインを形成したものを試験片として、銅箔ラインを、接着面に対して90°方向に50mm/分の速度で引き剥がした際の荷重を測定して評価した。引き剥がした際の荷重が0.3kN/m以上であれば、銅箔との接着性が十分であると判断した。

[0135] (3) はんだ耐熱性

はんだ耐熱性については、各例で得た両面銅張積層板を50mm四方の正方形に切り出して得た試験片を、288℃のはんだ浴中に浮かべて、30分間静置した。試験片の表面を目視観察し、下記評価基準に従って評価した。

A：試験片の表面に膨れは観察されなかった。

C：試験片の表面に膨れが観察された。

[0136] [表1]

表1

			実施例					比較例		
			1	2	3	4	5	1	2	
配合組成 (質量部)	(A)成分	アクリルポリマー	アクリルポリマー1	30	25	25	25	25	25	
	(B)成分	熱硬化性樹脂	エポキシ樹脂	5	5	5	5	5	5	5
			マレイミド化合物	55	55	55	55	55	55	95
	(C)成分	リン酸エステル化合物	リン酸エステル化合物1	10	15					
			リン酸エステル化合物2			15				
		ホスファゼン化合物	ホスファゼン化合物1				15			
			ホスファゼン化合物2					15		
(C')成分	リン酸金属塩	リン酸アルミニウム塩1						15		
(D)成分	フィラー	フィラー1	150	150	150	150	150	150	150	
(F)成分	硬化促進剤	硬化促進剤1	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	
評価結果	(1) 熱膨張率 (ppm/°C)			4.6	4.9	4.9	4.6	4.8	5.7	5.0
	(2) 銅箔との接着性 (kN/m)			0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.2	0.2
	(3) はんだ耐熱性			A	A	A	A	A	A	C

[0137] なお、各表中の成分の詳細は以下の通りである。

[(A) 成分]

・アクリルポリマー1：「テイサンレジン（登録商標）SG-P3」、エポキシ基を有するアクリルポリマー、重量平均分子量=850,000、エポキシ当量：4,800g/eq（ナガセケムテックス株式会社製、商品名）

[0138] [(B) 成分]

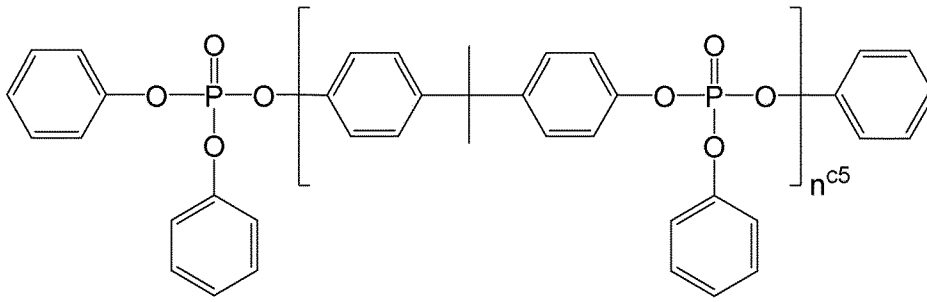
・エポキシ樹脂：「EPICLON（登録商標）HP-9500」、ナフタレン骨格含有型エポキシ樹脂（DIC株式会社製、商品名）

・マレイミド化合物：製造例1で作製したシロキサン変性マレイミド化合物

[0139] [(C) 成分]

・リン酸エステル化合物1：下記構造を有するリン酸エステル化合物。

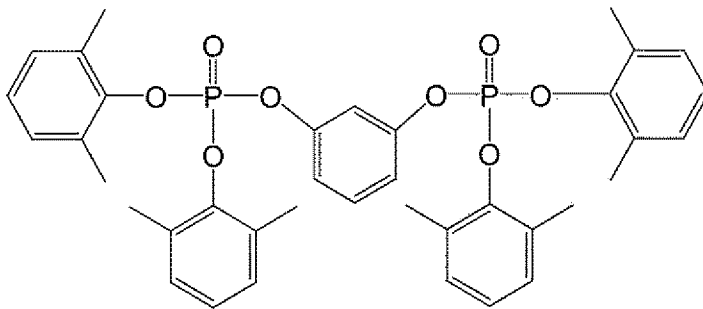
[化30]



(n^{c5} は、0～5の整数を示す。)

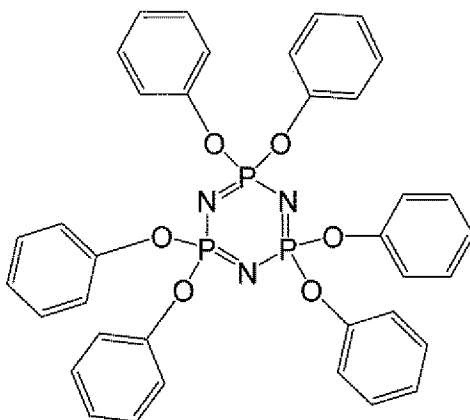
[0140] ・リン酸エステル化合物2：下記構造を有するリン酸エステル化合物。

[化31]



[0141] ・ホスファゼン化合物1：下記構造を有するホスファゼン化合物。

[化32]



[0142] ・ホスファゼン化合物2：下記構造を有するホスファゼン化合物。

銅張積層板では、熱膨張性が増大し、さらに、金属箔との接着強度が不十分となった。また、(A) アクリルポリマーを用いずに、その分、シロキサン変性マレイミド化合物の配合量を増加させた比較例2では、低熱膨張性は良好なものとなったが、金属箔との接着強度とはんだ耐熱性が不十分となった。

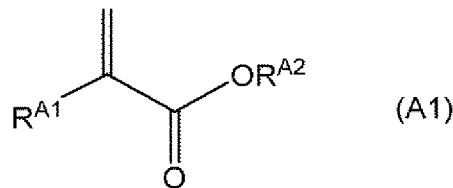
請求の範囲

[請求項1] (A) アクリルポリマー及び (B) 熱硬化性樹脂を含有する樹脂組成物であって、

さらに、(C) (C1) リン酸エステル化合物、(C2) ホスファゼン化合物及び (C3) ホスファフェナントレン化合物からなる群から選択される少なくとも1種を含む、樹脂組成物。

[請求項2] 前記 (A) 成分が、下記一般式 (A1) で表される (メタ) アクリル酸エステル由来の構造単位を含むアクリルポリマーである、請求項1に記載の樹脂組成物。

[化1]



(式中、 $\text{R}^{\text{A}1}$ は水素原子又はメチル基を示し、 $\text{R}^{\text{A}2}$ はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はアラルキル基を示す。)

[請求項3] 前記 (A) 成分の含有量が、前記 (A) 成分～(C) 成分の総量100質量部に対して5～50質量部である、請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

[請求項4] 前記 (B) 成分が、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ビスマレイミドトリアジン樹脂、シアネート樹脂、イソシアネート樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、オキセタン樹脂、アミノ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アリル樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、シリコーン樹脂、トリアジン樹脂及びメラミン樹脂からなる群から選択される少なくとも1種を含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物。

[請求項5] 前記 (B) 成分が、N-置換マレイミド基を2個以上有するマレイミド化合物及びその誘導体からなる群から選択される少なくとも1種を含む、請求項1～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物。

- [請求項6] 前記（B）成分が、シロキサン変性マレイミド化合物を含む、請求項1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物。
- [請求項7] さらに（D）フィラーを含有する、請求項1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物。
- [請求項8] 基材と、請求項1～7のいずれか1項に記載の樹脂組成物の半硬化物と、を含むプリプレグ。
- [請求項9] 請求項8に記載のプリプレグを含む積層板。
- [請求項10] 金属箔と、請求項8に記載のプリプレグの硬化物と、を含む金属張り積層板。
- [請求項11] 請求項9に記載の積層板又は請求項10に記載の金属張り積層板を含むプリント配線板。
- [請求項12] 請求項11に記載のプリント配線板と、半導体素子と、を含む半導体パッケージ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/040575

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>C08L 33/04</i>(2006.01)i; <i>C08J 5/24</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/3415</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/521</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/527</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/5399</i>(2006.01)i; <i>C08L 101/00</i>(2006.01)i; <i>H05K 1/03</i>(2006.01)i</p> <p>FI: C08L33/04; C08L101/00; C08K5/521; C08K5/5399; C08K5/527; C08K5/3415; H05K1/03 610L; H05K1/03 610N; H05K1/03 610M; H05K1/03 630H; C08J5/24 CEZ</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
C08L33/04; C08J5/24; C08K5/3415; C08K5/521; C08K5/527; C08K5/5399; C08L101/00; H05K1/03		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
<p>Published examined utility model applications of Japan 1922-1996</p> <p>Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022</p> <p>Registered utility model specifications of Japan 1996-2022</p> <p>Published registered utility model applications of Japan 1994-2022</p>		
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 2019-123769 A (HITACHI CHEMICAL CO LTD) 25 July 2019 (2019-07-25) claims, examples, paragraphs [0049], [0050], [0075], [0082]-[0084]	1-12
X	JP 2006-274150 A (HITACHI CHEMICAL CO LTD) 12 October 2006 (2006-10-12) comparative example 2	1, 2, 4, 8-10
A		3, 5-7, 11, 12
X	JP 2001-013679 A (TOAGOSEI CO LTD) 19 January 2001 (2001-01-19) claims, examples, paragraph [0045]	1-4, 7
A		5, 6, 8-12
A	WO 2018/181516 A1 (HITACHI CHEMICAL CO LTD) 04 October 2018 (2018-10-04) claims, examples, paragraph [0071]	1-12
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
06 December 2022		20 December 2022
Name and mailing address of the ISA/JP		Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		
		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2022/040575

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2019-123769 A	25 July 2019	(Family: none)	
JP 2006-274150 A	12 October 2006	(Family: none)	
JP 2001-013679 A	19 January 2001	US 6458509 B1 claims, examples, column 13, lines 57-65	
WO 2018/181516 A1	04 October 2018	US 2020/0107437 A1 claims, examples, paragraph [0117] KR 10-2019-0129118 A CN 110662794 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L 33/04(2006.01)i; C08J 5/24(2006.01)i; C08K 5/3415(2006.01)i; C08K 5/521(2006.01)i; C08K 5/527(2006.01)i; C08K 5/5399(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; H05K 1/03(2006.01)i FI: C08L33/04; C08L101/00; C08K5/521; C08K5/5399; C08K5/527; C08K5/3415; H05K1/03 610L; H05K1/03 610N; H05K1/03 610M; H05K1/03 630H; C08J5/24 CEZ</p>																							
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L33/04; C08J5/24; C08K5/3415; C08K5/521; C08K5/527; C08K5/5399; C08L101/00; H05K1/03</p> <p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年													
日本国実用新案公報	1922-1996年																						
日本国公開実用新案公報	1971-2022年																						
日本国実用新案登録公報	1996-2022年																						
日本国登録実用新案公報	1994-2022年																						
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2019-123769 A（日立化成株式会社）25.07.2019（2019-07-25） 特許請求の範囲、実施例、[0049]、[0050]、[0075]、[0082] - [0084]</td> <td>1-12</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2006-274150 A（日立化成工業株式会社）12.10.2006（2006-10-12） 比較例2</td> <td>1,2,4,8-10</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>3,5-7,11,12</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2001-013679 A（東亜合成株式会社）19.01.2001（2001-01-19） 特許請求の範囲、実施例、[0045]</td> <td>1-4,7</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>5,6,8-12</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2018/181516 A1（日立化成株式会社）04.10.2018（2018-10-04） 請求の範囲、実施例、[0071]</td> <td>1-12</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	X	JP 2019-123769 A（日立化成株式会社）25.07.2019（2019-07-25） 特許請求の範囲、実施例、[0049]、[0050]、[0075]、[0082] - [0084]	1-12	X	JP 2006-274150 A（日立化成工業株式会社）12.10.2006（2006-10-12） 比較例2	1,2,4,8-10	A		3,5-7,11,12	X	JP 2001-013679 A（東亜合成株式会社）19.01.2001（2001-01-19） 特許請求の範囲、実施例、[0045]	1-4,7	A		5,6,8-12	A	WO 2018/181516 A1（日立化成株式会社）04.10.2018（2018-10-04） 請求の範囲、実施例、[0071]	1-12
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 2019-123769 A（日立化成株式会社）25.07.2019（2019-07-25） 特許請求の範囲、実施例、[0049]、[0050]、[0075]、[0082] - [0084]	1-12																					
X	JP 2006-274150 A（日立化成工業株式会社）12.10.2006（2006-10-12） 比較例2	1,2,4,8-10																					
A		3,5-7,11,12																					
X	JP 2001-013679 A（東亜合成株式会社）19.01.2001（2001-01-19） 特許請求の範囲、実施例、[0045]	1-4,7																					
A		5,6,8-12																					
A	WO 2018/181516 A1（日立化成株式会社）04.10.2018（2018-10-04） 請求の範囲、実施例、[0071]	1-12																					
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																							
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</p> <p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>																							
<p>国際調査を完了した日</p> <p>06.12.2022</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>20.12.2022</p>																						
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>北田 祐介 4J 4868</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																						

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/040575

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2019-123769 A	25.07.2019	(ファミリーなし)	
JP 2006-274150 A	12.10.2006	(ファミリーなし)	
JP 2001-013679 A	19.01.2001	US 6458509 B1 請求の範囲、実施例、 ム 1 3 の 5 7 - 6 5 行	
WO 2018/181516 A1	04.10.2018	US 2020/0107437 A1 請求の範囲、実施例、 [0 1 1 7] KR 10-2019-0129118 A CN 110662794 A	