

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年12月14日(14.12.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/238950 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 101/00 (2006.01) C08L 61/28 (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01) C08L 63/00 (2006.01)
C08K 3/24 (2006.01) C08L 67/00 (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C08L 45/02 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/021622
- (22) 国際出願日: 2023年6月9日(09.06.2023)
- (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 2022-094676 2022年6月10日(10.06.2022) JP
- (71) 出願人: 株式会社レゾナック (RESONAC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 山内 有紗 (YAMAUCHI, Arisa); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 山浦 格 (YAMAURA, Masashi); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 平井 友貴 (HIRAI, Tomoki); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 田中 実佳 (TANAKA, Mika); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 中山 亜裕美 (NAKAYAMA, Ayumi); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 助川 雄太 (SUKEGAWA, Yuta); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 株式会社レゾナック内 Tokyo (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, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: MOLDING RESIN COMPOSITION AND ELECTRONIC COMPONENT DEVICE

(54) 発明の名称: 成形用樹脂組成物及び電子部品装置

(57) Abstract: A molding resin composition according to the present invention includes a curable resin, an inorganic filler, and a stress relaxer. The inorganic filler includes: at least one of silica particles and alumina particles; and calcium titanate particles. The stress relaxer includes at least one of an indene/styrene/coumarone copolymer, a trialkyl phosphine oxide, and a triaryl phosphine oxide.

(57) 要約: 硬化性樹脂と、シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方並びにチタン酸カルシウム粒子を含む無機充填材と、応力緩和剤と、を含み、前記応力緩和剤は、インデンスチレン-クマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキサイド及びトリアリールホスフィンオキサイドの少なくともいずれか1つを含む成形用樹脂組成物。



WO 2023/238950 A1

明 細 書

発明の名称：成形用樹脂組成物及び電子部品装置

技術分野

[0001] 本開示は、成形用樹脂組成物及び電子部品装置に関する。

背景技術

[0002] 近年の電子機器の高機能化、軽薄短小化の要求に伴い電子部品の高密度集積化、さらには高密度実装化が進んできており、これらの電子機器に使用される半導体パッケージは、従来にも増して、益々、小型化が進んでいる。さらに、電子機器の通信に使用される電波の高周波化も進んでいる。

[0003] 半導体パッケージの小型化、及び高周波への対応の点から、半導体素子の封止に用いる高誘電率エポキシ樹脂組成物が提案されている（例えば、特許文献1～3参照）。

[0004] 例えば特許文献4及び5には、エポキシ樹脂用硬化剤として活性エステル樹脂を含有する熱硬化性樹脂組成物が開示されており、硬化物の誘電正接を低く抑えることができるとされている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2015-036410号公報
特許文献2：特開2017-057268号公報
特許文献3：特開2018-141052号公報
特許文献4：特開2012-246367号公報
特許文献5：特開2014-114352号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 半導体素子等の電子部品を封止する材料としては、例えば、エポキシ樹脂と、硬化剤と、無機充填材とを含む成形用樹脂組成物が挙げられる。上記成形用樹脂組成物として、誘電正接の高い材料を用いると、伝送損失により伝

送信号が熱に変換され、通信効率が低下しやすくなる。ここで、通信のために発信された電波が誘電体において熱変換されることで発生する伝送損失の量は、周波数と比誘電率の平方根と誘電正接との積として表される。伝送信号は、周波数に比例して熱に変わりやすくなる。特に近年、情報の多様化に伴うチャンネル数増加等に対応するため、通信に使用される電波が高周波化されているため、低い比誘電率及び低い誘電正接を有する硬化物を成形可能な成形用樹脂組成物が求められている。一方、比誘電率が大きい程、基板の小型化、半導体パッケージの小型化等が可能であるため、伝送損失の抑制及び基板等の小型化の観点から、過度な比誘電率の上昇及び低下を抑制して比誘電率を維持しつつ、低い誘電正接を確保することが望ましい。

[0007] 本開示は、比誘電率を維持しつつ、低い誘電正接を有する硬化物を成形可能な成形用樹脂組成物、及びこれを用いた電子部品装置を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0008] 前記課題を解決するための具体的手段には、以下の態様が含まれる。

<1> 硬化性樹脂と、

シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方並びにチタン酸カルシウム粒子を含む無機充填材と、

応力緩和剤と、

を含み、

前記応力緩和剤は、インデンスチレン-クマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキサイド及びトリアリールホスフィンオキサイドの少なくともいずれか1つを含む成形用樹脂組成物。

<2> 前記チタン酸カルシウム粒子の含有率は、無機充填材全体に対して30体積%~90体積%である<1>に記載の成形用樹脂組成物。

<3> 前記硬化性樹脂がエポキシ樹脂を含み、かつ、前記成形用樹脂組成物が硬化剤をさらに含む、<1>又は<2>に記載の成形用樹脂組成物。

<4> 前記硬化剤は、活性エステル化合物を含む<3>に記載の成形用樹脂

脂組成物。

<5> 前記硬化剤は、フェノール硬化剤を含む<3>又は<4>に記載の成形用樹脂組成物。

<6> 前記フェノール硬化剤は、メラミン変性フェノール樹脂を含む<5>に記載の成形用樹脂組成物。

<7> 無機充填材全体の含有率は、成形用樹脂組成物全体に対して55体積%を超えている<1>~<6>のいずれか1つに記載の成形用樹脂組成物。

<8> 高周波デバイスに用いられる、<1>~<7>のいずれか1つに記載の成形用樹脂組成物。

<9> 高周波デバイスにおける電子部品の封止に用いられる、<1>~<8>のいずれか1つに記載の成形用樹脂組成物。

<10> アンテナ・イン・パッケージに用いられる、<1>~<9>のいずれか1つに記載の成形用樹脂組成物。

<11> 支持部材と、

前記支持部材上に配置された電子部品と、

前記電子部品を封止している<1>~<10>のいずれか1つに記載の成形用樹脂組成物の硬化物と、

を備える電子部品装置。

<12> 前記電子部品がアンテナを含む<11>に記載の電子部品装置。

発明の効果

[0009] 本開示によれば、比誘電率を維持しつつ、低い誘電正接を有する硬化物を成形可能な成形用樹脂組成物、及びこれを用いた電子部品装置が提供される。

発明を実施するための形態

[0010] 本開示において「工程」との語には、他の工程から独立した工程に加え、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目的が達成されれば、当該工程も含まれる。

本開示において「~」を用いて示された数値範囲には、「~」の前後に記

載される数値がそれぞれ最小値及び最大値として含まれる。

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。

本開示において各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、各成分の含有率又は含有量は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率又は含有量を意味する。

本開示において各成分に該当する粒子は複数種含んでいてもよい。組成物中に各成分に該当する粒子が複数種存在する場合、各成分の粒子径は、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の粒子の混合物についての値を意味する。

本開示において、「シリカ粒子及びアルミナ粒子の合計含有率」は、「シリカ粒子の含有率」と読み替えてもよく、「アルミナ粒子の含有率」と読み替えてもよい。

本開示において、「シリカ粒子及びアルミナ粒子の合計」は、「シリカ粒子」と読み替えてもよく、「アルミナ粒子」と読み替えてもよい。

[0011] 以下、本開示を実施するための形態について詳細に説明する。但し、本開示は以下の実施形態に限定されるものではない。以下の実施形態において、その構成要素（要素ステップ等も含む）は、特に明示した場合を除き、必須ではない。数値及びその範囲についても同様であり、本開示を制限するものではない。

[0012] <成形用樹脂組成物>

本開示の成形用樹脂組成物は、硬化性樹脂と、シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方並びにチタン酸カルシウム粒子を含む無機充填材と、応力緩和剤と、を含み、前記応力緩和剤は、インデンスチレン-クマロン共

重合体、トリアルキルホスフィンオキサイド及びトリアリールホスフィンオキサイドの少なくともいずれか1つを含む。

[0013] 前記のように、成形用樹脂組成物では、成形後の硬化物において、低い伝送損失が求められている。伝送損失を抑制する観点から、低い誘電正接を実現することが望ましい。本開示の成形用樹脂組成物では、チタン酸カルシウム粒子及び前述の応力緩和剤を用いることで硬化物の誘電正接を低減可能となる。

[0014] さらに、本開示の成形用樹脂組成物では、チタン酸カルシウム粒子を使用することでチタン酸バリウム等を使用した場合と比較して低い誘電正接を有する硬化物が成形可能である。

[0015] 本開示の成形用樹脂組成物では、チタン酸カルシウム粒子とともにシリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方を使用することで、比誘電率を維持しつつ、低い誘電正接を確保することができる。

[0016] 以下、成形用樹脂組成物を構成する各成分について説明する。本開示の成形用樹脂組成物は、硬化性樹脂と、無機充填材と、応力緩和剤と、を含み、必要に応じてその他の成分を含んでもよい。

[0017] (硬化性樹脂)

本開示の成形用樹脂組成物は、硬化性樹脂を含む。硬化性樹脂は、熱硬化性樹脂及び光硬化性樹脂のいずれであってもよく、量産性の観点からは、熱硬化性樹脂であることが好ましい。

熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ウレタン樹脂、ビスマレイミド樹脂等のポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂などが挙げられる。熱硬化性樹脂は、成形性及び電気特性の観点から、エポキシ樹脂であることが好ましい。

成形用樹脂組成物は、硬化性樹脂を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

[0018] [エポキシ樹脂]

エポキシ樹脂は、分子中にエポキシ基を有するものであればその種類は特に制限されない。

成形用樹脂組成物は、エポキシ樹脂を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

[0019] エポキシ樹脂として具体的には、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール化合物及び α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等の脂肪族アルデヒド化合物と、を酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものであるノボラック型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型エポキシ樹脂、 α -クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等）；上記フェノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物と、を酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂；上記フェノール化合物及びナフトール化合物と、アルデヒド化合物と、を酸性触媒下で共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものである共重合型エポキシ樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールF等のジグリシジルエーテルであるジフェニルメタン型エポキシ樹脂；アルキル置換又は非置換のビフェノールのジグリシジルエーテルであるビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン系フェノール化合物のジグリシジルエーテルであるスチルベン型エポキシ樹脂；ビスフェノールS等のジグリシジルエーテルである硫黄原子含有エポキシ樹脂；ブタンジオール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等のアルコール類のグリシジルエーテルであるエポキシ樹脂；フタル酸、イソフタル酸、テトラヒドロフタル酸等の多価カルボン酸化合物のグリシジルエステルであるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；アニリン、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等の窒素原子に結合した活性水素をグリシジル基で

置換したものであるグリシジルアミン型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエンとフェノール化合物の共縮合樹脂をエポキシ化したものであるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂；分子内のオレフィン結合をエポキシ化したものであるビニルシクロヘキサジエポキシド、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、2-(3, 4-エポキシ)シクロヘキシル-5, 5-スピロ(3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-m-ジオキサン等の脂環型エポキシ樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるパラキシリレン変性エポキシ樹脂；メタキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるメタキシリレン変性エポキシ樹脂；テルペン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるテルペン変性エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるジシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；シクロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルである多環芳香環変性エポキシ樹脂；ナフタレン環含有フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるナフタレン型エポキシ樹脂；ハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂；ハイドロキノン型エポキシ樹脂；トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂；フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるアラルキル型エポキシ樹脂；などが挙げられる。さらにはアクリル樹脂のエポキシ化物等もエポキシ樹脂として挙げられる。これらのエポキシ樹脂は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0020] エポキシ樹脂は、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂及びo-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂の少なくともいずれか1つを含むことが好ましく、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキシ樹脂、又は、ビフェニル型エポキシ樹脂及びo-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂を含むことがより好ましい。

[0021] エポキシ樹脂のエポキシ当量（分子量／エポキシ基数）は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性、電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、エポキシ樹脂のエポキシ当量は、 $100\text{ g/eq} \sim 1000\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $150\text{ g/eq} \sim 500\text{ g/eq}$ であることがより好ましい。

エポキシ樹脂のエポキシ当量は、JIS K 7236：2009に準じた方法で測定される値とする。

[0022] エポキシ樹脂が固体である場合、エポキシ樹脂の軟化点又は融点は特に制限されない。

エポキシ樹脂の軟化点又は融点は、成形性と耐リフロー性の観点からは $40\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 180\text{ }^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、成形用樹脂組成物の調製の際の取扱い性の観点からは $50\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 130\text{ }^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましい。

エポキシ樹脂の融点又は軟化点は、示差走査熱量測定（DSC）又はJIS K 7234：1986に準じた方法（環球法）で測定される値とする。

[0023] 成形用樹脂組成物の全体に占めるエポキシ樹脂の質量割合は、強度、流動性、耐熱性、成形性等の観点から $0.5\text{ 質量}\% \sim 30\text{ 質量}\%$ であることが好ましく、 $2\text{ 質量}\% \sim 20\text{ 質量}\%$ であることがより好ましく、 $3.5\text{ 質量}\% \sim 13\text{ 質量}\%$ であることがさらに好ましい。

[0024]（硬化剤）

硬化性樹脂がエポキシ樹脂を含む場合、本開示の成形用樹脂組成物が硬化剤をさらに含むことが好ましい。

硬化剤の種類は特に制限されず、例えば、フェノール系硬化剤、アミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、ポリメルカプタン系硬化剤、ポリアミノアミド系硬化剤、イソシアネート系硬化剤、ブロックイソシアネート系硬化剤及び活性エステル化合物が挙げられる。硬化剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。硬化剤は、常温常圧下（例えば、 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、大気圧下）で固体であっても液体であってもよい。

[0025] 硬化剤は、硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、活性エステル化合物を含むことが好ましく、硬化剤は、硬化物のアルカリ性溶液に対する耐薬液性及び硬化物の曲げ強度の観点から、フェノール硬化剤を含むことが好ましい。

硬化剤は、活性エステル化合物を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

硬化剤は、フェノール硬化剤を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

硬化剤は、活性エステル化合物及びフェノール硬化剤を含んでいてもよい。

[0026] ー活性エステル化合物ー

ここで、活性エステル化合物とは、エポキシ基と反応するエステル基を1分子中に1個以上有し、エポキシ樹脂の硬化作用を有する化合物をいう。

[0027] 硬化剤として活性エステル化合物を用いると、硬化剤としてフェノール硬化剤を単独で用いた場合に比べ、硬化物の誘電正接を低く抑えることができる。その理由は以下のように推測される。

エポキシ樹脂とフェノール硬化剤との反応においては、2級水酸基が発生する。これに対して、エポキシ樹脂と活性エステル化合物との反応においては、2級水酸基のかわりにエステル基が生じる。エステル基は、2級水酸基に比べて極性が低い故、硬化剤として活性エステル化合物を含む成形用樹脂組成物は、硬化剤として2級水酸基を発生させる硬化剤のみを含む成形用樹脂組成物に比べて、硬化物の誘電正接を低く抑えることができる。

また、硬化物中の極性基は硬化物の吸水性を高めるところ、硬化剤として活性エステル化合物を用いることによって硬化物の極性基濃度を抑えることができ、硬化物の吸水性を抑制することができる。そして、硬化物の吸水性を抑制すること、つまりは極性分子であるH₂Oの含有量を抑制することにより、硬化物の誘電正接をさらに低く抑えることができる。

[0028] 活性エステル化合物は、エポキシ基と反応するエステル基を分子中に1個

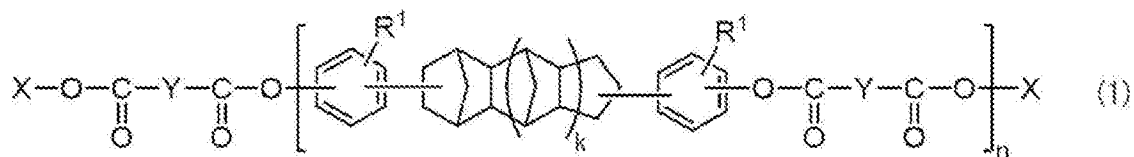
以上有する化合物であればその種類は特に制限されない。活性エステル化合物としては、フェノールエステル化合物、チオフェノールエステル化合物、N-ヒドロキシアミンエステル化合物、複素環ヒドロキシ化合物のエステル化合物等が挙げられる。

[0029] 活性エステル化合物としては、例えば、脂肪族カルボン酸及び芳香族カルボン酸の少なくとも1種と脂肪族ヒドロキシ化合物及び芳香族ヒドロキシ化合物の少なくとも1種とから得られるエステル化合物が挙げられる。脂肪族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、脂肪族鎖を有することによりエポキシ樹脂との相溶性に優れる傾向にある。芳香族化合物を重縮合の成分とするエステル化合物は、芳香環を有することにより耐熱性に優れる傾向にある。

[0030] 活性エステル化合物の具体例としては、芳香族カルボン酸とフェノール性水酸基との縮合反応にて得られる芳香族エステルが挙げられる。中でも、ベンゼン、ナフタレン、ビフェニル、ジフェニルプロパン、ジフェニルメタン、ジフェニルエーテル、ジフェニルスルホン酸等の芳香環の水素原子の2～4個をカルボキシ基で置換した芳香族カルボン酸成分と、前記した芳香環の水素原子の1個を水酸基で置換した1価フェノールと、前記した芳香環の水素原子の2～4個を水酸基で置換した多価フェノールと、の混合物を原材料として、芳香族カルボン酸とフェノール性水酸基との縮合反応にて得られる芳香族エステルが好ましい。すなわち、上記芳香族カルボン酸成分由来の構造単位と上記1価フェノール由来の構造単位と上記多価フェノール由来の構造単位とを有する芳香族エステルが好ましい。

[0031] 活性エステル化合物の具体例としては、特開2012-246367号公報に記載されている、脂肪族環状炭化水素基を介してフェノール化合物が結節された分子構造を有するフェノール樹脂と、芳香族ジカルボン酸又はそのハライドと、芳香族モノヒドロキシ化合物と、を反応させて得られる構造を有する活性エステル樹脂が挙げられる。当該活性エステル樹脂としては、下記の構造式(1)で表される化合物が好ましい。

[0032] [化1]

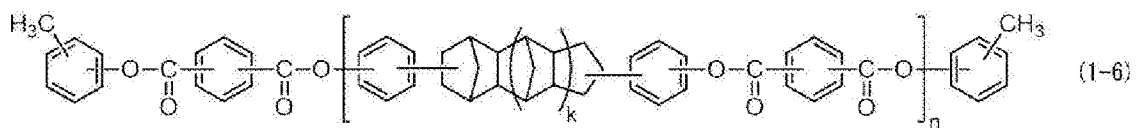
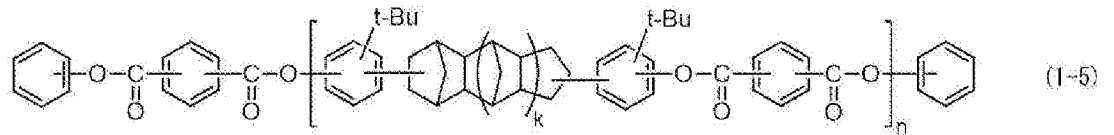
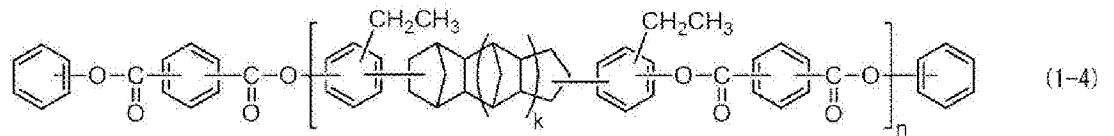
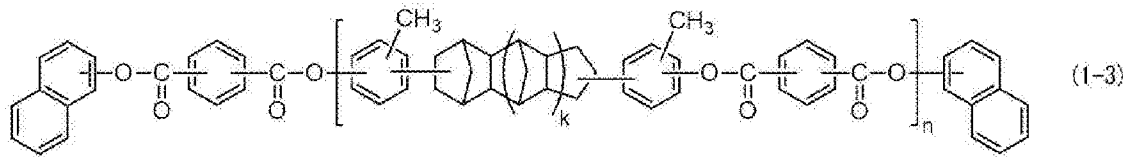
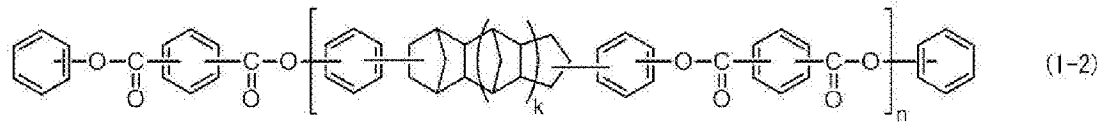
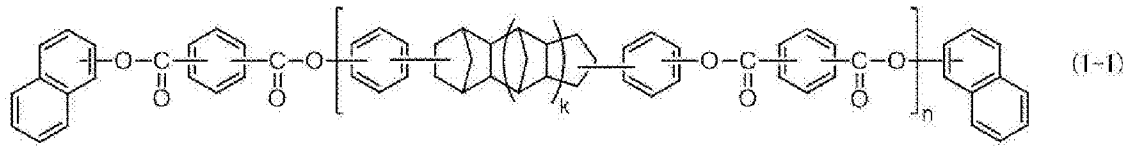


[0033] 構造式(1)中、R¹は、水素原子、炭素数1～4のアルキル基又はフェニル基であり、Xは非置換のベンゼン環、非置換のナフタレン環、炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環、又はビフェニル基であり、Yはベンゼン環、ナフタレン環、又は炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゼン環若しくはナフタレン環であり、kは0又は1であり、nは繰り返し数の平均を表し0～5である。

[0034] 構造式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物(1-1)～(1-10)が挙げられる。構造式中のt-Buは、tert-ブチル基である。

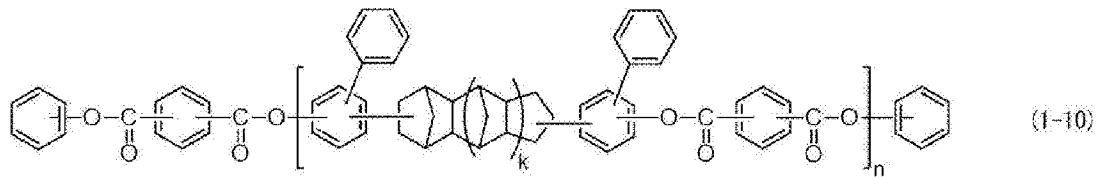
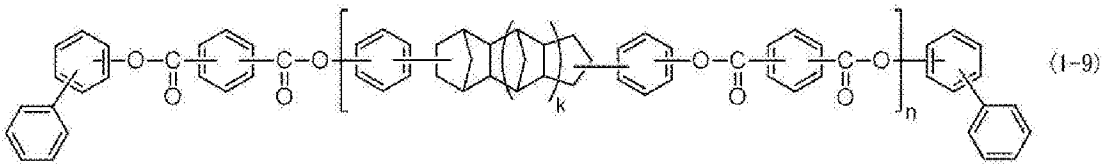
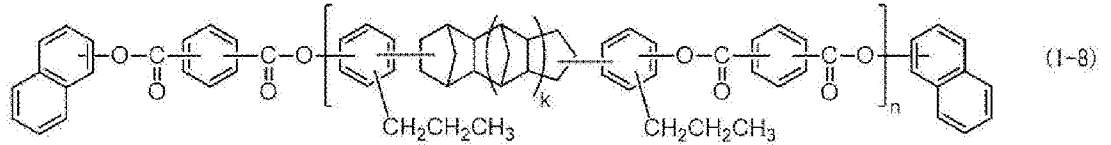
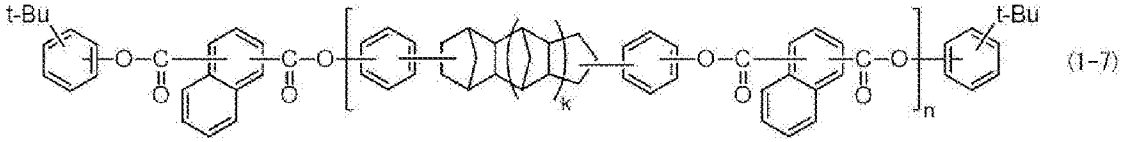
[0035]

[化2]



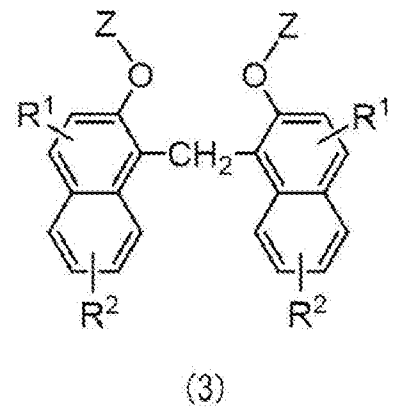
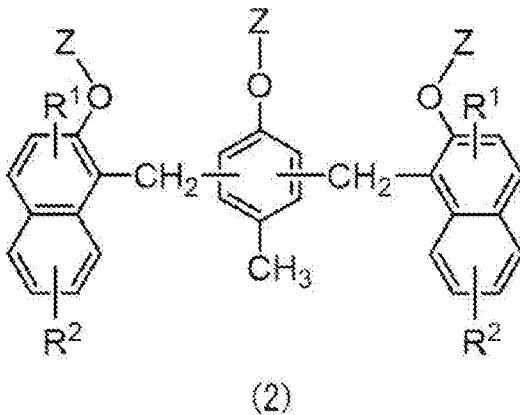
[0036]

[化3]



[0037] 活性エステル化合物の別の具体例としては、特開2014-114352号公報に記載されている、下記の構造式(2)で表される化合物及び下記の構造式(3)で表される化合物が挙げられる。

[0038] [化4]



[0039] 構造式(2)中、R¹及びR²はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数1~4のアルキル基、又は炭素数1~4のアルコキシ基であり、Zは非置換のベンゾイル基、非置換のナフトイル基、炭素数1~4のアルキル基で置換されたベンゾイル基又はナフトイル基、及び炭素数2~6のアシル基からなる群か

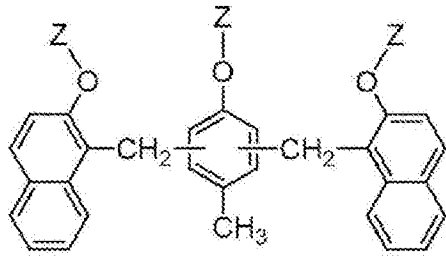
ら選ばれるエステル形成構造部位（z 1）、又は水素原子（z 2）であり、Zのうち少なくとも1個はエステル形成構造部位（z 1）である。

[0040] 構造式（3）中、R¹及びR²はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、又は炭素数1～4のアルコキシ基であり、Zは非置換のベンゾイル基、非置換のナフトイル基、炭素数1～4のアルキル基で置換されたベンゾイル基又はナフトイル基、及び炭素数2～6のアシル基からなる群から選ばれるエステル形成構造部位（z 1）、又は水素原子（z 2）であり、Zのうち少なくとも1個はエステル形成構造部位（z 1）である。

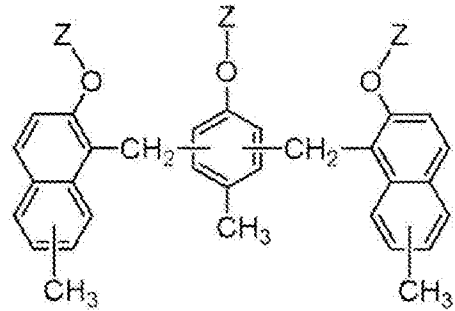
[0041] 構造式（2）で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物（2-1）～（2-6）が挙げられる。

[0042]

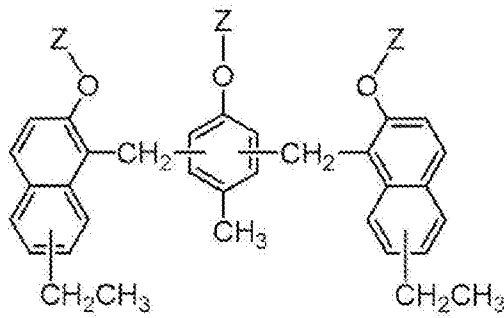
[化5]



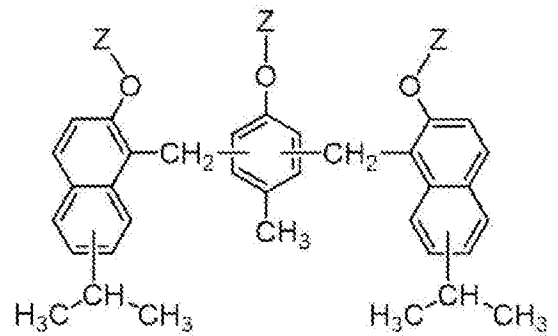
(2-1)



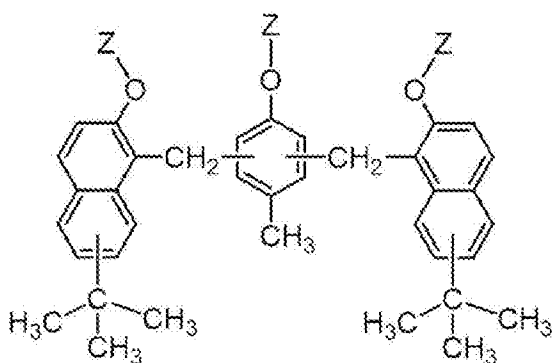
(2-2)



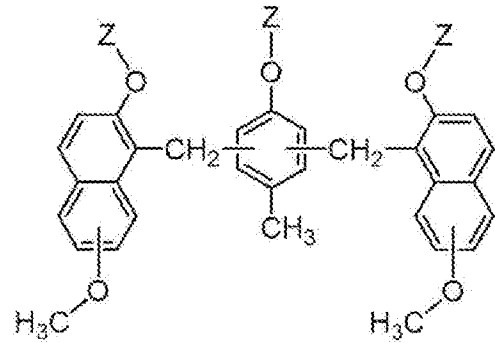
(2-3)



(2-4)



(2-5)

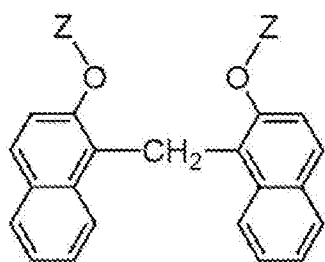


(2-6)

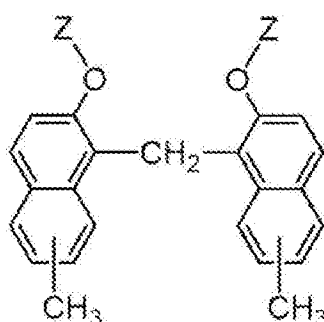
[0043] 構造式(3)で表される化合物の具体例としては、例えば、下記の例示化合物(3-1)~(3-6)が挙げられる。

[0044]

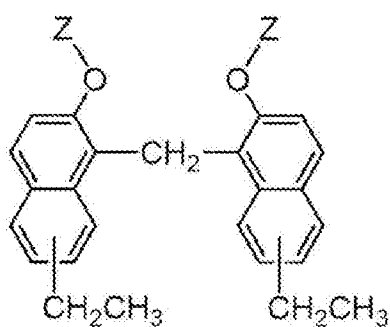
[化6]



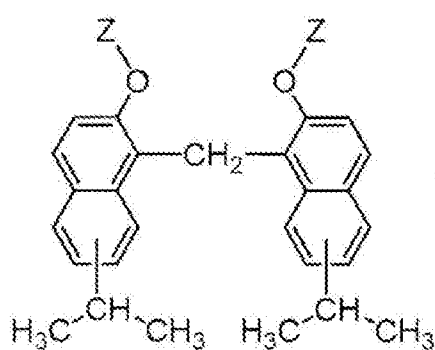
(3-1)



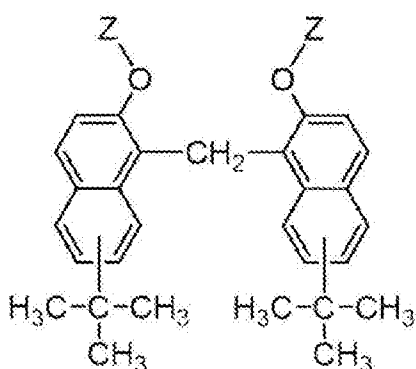
(3-2)



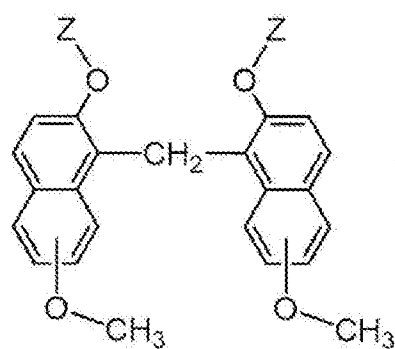
(3-3)



(3-4)



(3-5)



(3-6)

[0045] 活性エステル化合物としては、市販品を用いてもよい。活性エステル化合物の市販品としては、ジシクロペンタジエン型ジフェノール構造を含む活性エステル化合物として「EXB9451」、「EXB9460」、「EXB9460S」、「HPC-8000-65T」（DIC株式会社製）；芳香族構造を含む活性エステル化合物として「EXB9416-70BK」、「EXB-8」、「EXB-9425」（DIC株式会社製）；フェノールノボラックのアセチル化物を含む活性エステル化合物として「DC808」（

三菱ケミカル株式会社製) ; フェノールノボラックのベンゾイル化物を含む活性エステル化合物として「YLH1026」(三菱ケミカル株式会社製) ; 等が挙げられる。

[0046] 活性エステル化合物のエステル当量(分子量/エステル基数)は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性、電氣的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、 $150\text{ g/eq} \sim 400\text{ g/eq}$ が好ましく、 $170\text{ g/eq} \sim 300\text{ g/eq}$ がより好ましく、 $200\text{ g/eq} \sim 250\text{ g/eq}$ がさらに好ましい。

活性エステル化合物のエステル当量は、JIS K 0070:1992に準じた方法により測定される値とする。

[0047] −フェノール硬化剤−

フェノール硬化剤として具体的には、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、置換又は非置換のビフェノール等の多価フェノール化合物; フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール化合物及び α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等のアルデヒド化合物と、を酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック型フェノール樹脂; 上記フェノール性化合物と、ジメトキシパラキシレン、ビス(メトキシメチル)ビフェニル等と、から合成されるフェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂; パラキシリレン変性フェノール樹脂、メタキシリレン変性フェノール樹脂; メラミン変性フェノール樹脂; テルペン変性フェノール樹脂; 上記フェノール性化合物と、ジシクロペンタジエンと、から共重合により合成されるジシクロペンタジエン型フェノール樹脂及びジシクロペンタジエン型ナフトール樹脂; シクロペンタジエン変性フェノール樹脂; 多環芳香環変性フェノール樹脂; ビフェニル型フェノール樹脂; 上記フ

エノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物と、を酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂；これら2種以上を共重合して得たフェノール樹脂などが挙げられる。これらのフェノール硬化剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

中でも、成形用樹脂組成物の硬化物において、電子部品、当該電子部品を搭載する支持部材等の被着体に対する接着性（特に、高温での接着性）が向上する観点から、フェノール硬化剤は、アラルキル型フェノール樹脂及びメラミン変性フェノール樹脂を含むことが好ましく、メラミン変性フェノール樹脂を含むことがより好ましい。

[0048] フェノール硬化剤の反応基当量（例えば、水酸基当量）は、特に制限されない。成形性、耐リフロー性、電気的信頼性等の各種特性バランスの観点からは、フェノール硬化剤の反応基当量は $70\text{ g/eq} \sim 1000\text{ g/eq}$ であることが好ましく、 $80\text{ g/eq} \sim 500\text{ g/eq}$ であることがより好ましい。

フェノール硬化剤の水酸基当量は、JIS K 0070：1992に準じた方法により測定される値とする。

[0049] 硬化剤の軟化点又は融点は、特に制限されない。硬化剤の軟化点又は融点は、成形性と耐リフロー性の観点からは、 $40^{\circ}\text{C} \sim 180^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、成形用樹脂組成物の製造時における取扱い性の観点からは、 $50^{\circ}\text{C} \sim 130^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましい。

硬化剤の融点又は軟化点は、エポキシ樹脂の融点又は軟化点と同様にして測定される値とする。

[0050] エポキシ樹脂と硬化剤（好ましくは、活性エステル化合物及びフェノール硬化剤の合計）との当量比、すなわちエポキシ樹脂中の官能基数に対する硬化剤中の官能基数の比（硬化剤中の官能基数／エポキシ樹脂中の官能基数）は、特に制限されない。それぞれの未反応分を少なく抑える観点からは、 $0.5 \sim 2.0$ の範囲に設定されることが好ましく、 $0.6 \sim 1.3$ の範囲に

設定されることがより好ましい。成形性と耐リフロー性の観点からは、0.8～1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

- [0051] 硬化剤が活性エステル化合物及びフェノール硬化剤を含む場合、活性エステル化合物に含まれるエステル基と、フェノール硬化剤に含まれる反応基とのモル比率（エステル基／フェノール硬化剤中の反応基）は、 $9/1 \sim 1/9$ であることが好ましく、 $8/2 \sim 2/8$ であることがより好ましく、 $3/7 \sim 7/3$ であることがさらに好ましい。
- [0052] 活性エステル化合物及びフェノール硬化剤の合計量に占める活性エステル化合物の質量割合は、成形用樹脂組成物を硬化した後の曲げ強度に優れる観点及び硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、40質量%～90質量%であることが好ましく、50質量%～80質量%であることがより好ましく、55質量%～70質量%であることがさらに好ましい。
- [0053] 活性エステル化合物及びフェノール硬化剤の合計量に占めるフェノール硬化剤の質量割合は、成形用樹脂組成物を硬化した後の曲げ強度に優れる観点及び硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、10質量%～60質量%であることが好ましく、20質量%～50質量%であることがより好ましく、30質量%～45質量%であることがさらに好ましい。
- [0054] フェノール硬化剤がメラミン変性フェノール樹脂を含む場合、メラミン変性フェノール樹脂の含有率は、エポキシ樹脂全量に対し、1質量%～20質量%であることが好ましく、2質量%～15質量%であることがより好ましく、3質量%～10質量%であることがさらに好ましい。メラミン変性フェノール樹脂の含有率がエポキシ樹脂全量に対して1質量%以上であることにより、成形用樹脂組成物の硬化物において、電子部品、当該電子部品を搭載する支持部材等の被着体に対する接着性（特に高温での接着性）が向上する傾向にある。メラミン変性フェノール樹脂の含有率がエポキシ樹脂全量に対して20質量%以下であることにより、硬化物の曲げ強度に優れる傾向にある。
- [0055] 成形用樹脂組成物がエポキシ樹脂及び硬化剤を含む場合、エポキシ樹脂以

外の硬化性樹脂の含有率は、成形用樹脂組成物の全体に対して、5質量%未満であってもよく、4質量%以下であってもよく、3質量%以下であってもよい。

[0056] (無機充填材)

本開示の成形用樹脂組成物は、シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方並びにチタン酸カルシウム粒子を含む無機充填材を含む。

無機充填材は、シリカ粒子、アルミナ粒子及びチタン酸カルシウム粒子以外のその他の充填材を含んでいてもよい。

[0057] -シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方-

無機充填材は、シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方を含む。無機充填材は、シリカ粒子及びアルミナ粒子の一方のみを含んでいてもよく、両方を含んでいてもよい。

シリカ粒子及びアルミナ粒子は、それぞれ独立に、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。シリカ粒子及びアルミナ粒子は、それぞれ体積平均粒径の異なる2種以上の充填材の混合物であってもよい。

[0058] シリカ粒子としては、特に限定されず、溶融シリカ、結晶シリカ、ガラス等が挙げられる。シリカ粒子の形状としては、特に限定されず、球形、楕円形、不定形等が挙げられる。シリカ粒子は、破碎されたものであってもよい。

シリカ粒子は、表面処理されたものであってもよい。

[0059] アルミナ粒子の形状としては、特に限定されず、球形、楕円形、不定形等が挙げられる。アルミナ粒子は、破碎されたものであってもよい。

アルミナ粒子は、表面処理されたものであってもよい。

[0060] 比誘電率及び熱伝導性の観点から、無機充填材はアルミナ粒子を含むことが好ましい。

[0061] シリカ粒子及びアルミナ粒子の合計含有率は、低誘電正接の観点から、無機充填材全体に対し、20体積%~60体積%であることが好ましく、25

体積%～55体積%であることがより好ましく、30体積%～50体積%であることがさらに好ましい。

- [0062] 無機充填材全体に対するシリカ粒子の含有率（体積%）、アルミナ粒子の含有率（体積%）及び後述のチタン酸カルシウム粒子の含有率（体積%）は、下記の方法により求めることができる。

成形用樹脂組成物の硬化物の薄片試料を走査型電子顕微鏡（SEM）にて撮像する。SEM画像において任意の面積Sを特定し、面積Sに含まれる無機充填材の総面積Aを求める。次に、SEM-EDX（エネルギー分散型X線分光器）を用い、無機充填材の元素を特定することで、無機充填材の総面積Aの中に含まれるシリカ粒子、アルミナ粒子、チタン酸カルシウム粒子等の特定の粒子の総面積Bを求める。特定の粒子の総面積Bを無機充填材の総面積Aで除算した値を百分率（%）に換算し、この値を無機充填材全体に対する特定の粒子の含有率（体積%）とする。

面積Sは、無機充填材の大きさに対して十分大きい面積とする。例えば、無機充填材が100個以上含まれる大きさとする。面積Sは、複数個の切断面の合計でもよい。

- [0063] 成形用樹脂組成物がエポキシ樹脂及び硬化剤を含む場合、成形用樹脂組成物中にて、エポキシ樹脂及び硬化剤の合計に対するシリカ粒子及びアルミナ粒子の合計の質量割合（シリカ粒子及びアルミナ粒子の合計／エポキシ樹脂及び硬化剤の合計）は、誘電正接及び流動性のバランスの観点から、1～25であることが好ましく2～20であることがより好ましく、3～15であることがさらに好ましく、4～12であることが特に好ましい。

- [0064] シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、特に制限されない。シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、それぞれ独立に、0.2 μ m～100 μ mであることが好ましく、0.5 μ m～50 μ mであることがより好ましい。前述の体積平均粒径が0.2 μ m以上であると、成形用樹脂組成物の粘度の上昇がより抑制される傾向にある。前述の体積平均粒径が100 μ m以下であると、成形用樹脂組成物の充填

性がより向上する傾向にある。

シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、成形用樹脂組成物をるつぼに入れて800℃で4時間放置し灰化させる。得られた灰分をSEMで観察し、形状ごと分離し観察画像から粒度分布を求め、その粒度分布から体積平均粒径(D50)としてシリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径を求めることができる。また、シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、レーザー回折/散乱式粒子径分布測定装置(例えば株式会社堀場製作所、LA920)による測定により求めてもよい。

[0065] シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、それぞれ独立に、成形用樹脂組成物の粘度の観点から、3μm以上であってもよく、5μm以上であってもよく、成形用樹脂組成物の流動性の観点から、10μm以上であってもよく、20μm以上であってもよい。シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径は、50μm以下であってもよく、30μm以下であってもよい。

[0066] ーチタン酸カルシウム粒子ー

無機充填材は、チタン酸カルシウム粒子を含む。チタン酸カルシウム粒子の形状としては、特に限定されず、球形、楕円形、不定形等が挙げられる。また、チタン酸カルシウム粒子は、破碎されたものであってもよい。

チタン酸カルシウム粒子は、表面処理されたものであってもよい。

チタン酸カルシウム粒子は、体積平均粒径の異なる2種以上の充填材の混合物であってもよい。

[0067] 成形用樹脂組成物がエポキシ樹脂及び硬化剤を含む場合、成形用樹脂組成物中にて、エポキシ樹脂及び硬化剤の合計に対するチタン酸カルシウム粒子の質量割合(チタン酸カルシウム粒子/エポキシ樹脂及び硬化剤の合計)は、誘電正接及び流動性のバランスの観点から、1~25であることが好ましく、2~20であることがより好ましく、3~15であることがさらに好ましく、4~12であることが特に好ましい。

[0068] チタン酸カルシウム粒子の体積平均粒径は、 $0.1\ \mu\text{m}$ ～ $100\ \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.2\ \mu\text{m}$ ～ $80\ \mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $0.5\ \mu\text{m}$ ～ $40\ \mu\text{m}$ であることがさらに好ましく、 $0.5\ \mu\text{m}$ ～ $30\ \mu\text{m}$ であることが特に好ましく、 $0.5\ \mu\text{m}$ ～ $25\ \mu\text{m}$ であることが極めて好ましい。

チタン酸カルシウム粒子の体積平均粒径は、以下のようにして測定することができる。成形用樹脂組成物をるつぼに入れ、 800°C で4時間放置し、灰化させる。得られた灰分をSEMで観察し、形状ごと分離し観察画像から粒度分布を求め、その粒度分布から体積平均粒径(D50)としてチタン酸カルシウム粒子の体積平均粒径を求めることができる。また、チタン酸カルシウム粒子の体積平均粒径は、レーザー回折/散乱式粒子径分布測定装置(例えば株式会社堀場製作所、LA920)による測定により求めてもよい。

[0069] チタン酸カルシウム粒子の含有率は、比誘電率及び誘電正接のバランスの観点から、無機充填材全体に対し、20体積%～90体積%であることが好ましく、30体積%～90体積%であることがより好ましく、40体積%～85体積%であることがさらに好ましく、50体積%～80体積%であることが特に好ましい。

[0070] シリカ粒子、アルミナ粒子及びチタン酸カルシウム粒子の合計含有率は、無機充填材全体に対し、90体積%以上であってもよく、95体積%以上であってもよく、100体積%であってもよい。

[0071] -その他の充填材-

無機充填材は、シリカ粒子、アルミナ粒子又はチタン酸カルシウム粒子以外のその他の充填材を含んでいてもよい。

その他の充填材の形状としては、特に限定されず、球形、楕円形、不定形等が挙げられる。また、その他の充填材は、破碎されたものであってもよい。

その他の充填材は、表面処理されたものであってもよい。

その他の充填材は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ

用いてもよい。その他の充填材は、体積平均粒径の異なる2種以上の充填材の混合物であってもよい。

[0072] その他の充填材の種類は、特に制限されない。その他の充填材の材質としては、具体的には、炭酸カルシウム、ケイ酸ジルコニウム、ケイ酸カルシウム、窒化珪素、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア、タルク、クレー、マイカ等の無機材料が挙げられる。

その他の充填材として、難燃効果を有する無機充填材を用いてもよい。難燃効果を有する無機充填材としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、マグネシウムと亜鉛の複合水酸化物等の複合金属水酸化物、硼酸亜鉛などが挙げられる。

[0073] その他の充填材の含有率は、無機充填材全体に対し、10体積%以下であってもよく、5質量%以下であってもよく、0体積%以下であってもよい。

[0074] その他の充填材は、チタン酸カルシウム粒子以外のチタン化合物粒子を含んでもよい。チタン酸カルシウム粒子以外のチタン化合物粒子としては、チタン酸ストロンチウム粒子、チタン酸バリウム粒子、チタン酸カリウム粒子、チタン酸マグネシウム粒子、チタン酸鉛粒子、チタン酸アルミニウム粒子、チタン酸リチウム、酸化チタン粒子等が挙げられる。

ただし、硬化物の誘電正接を低く抑える観点から、チタン酸バリウム粒子の含有率は、無機充填材全体に対し、1体積%未満であることが好ましく、0.5体積%未満であることがより好ましく、0.1体積%未満であることがさらに好ましい。つまり、無機充填材は、チタン酸バリウム粒子を含まないか、又はチタン酸バリウム粒子を上記含有率で含むことが好ましい。

また、チタン酸カルシウム粒子以外のチタン化合物粒子の合計含有率は、無機充填材全体に対し、1体積%未満であってもよく、0.5体積%未満であってもよく、0.1体積%未満であってもよい。つまり、無機充填材は、チタン酸カルシウム粒子以外のチタン化合物粒子を含まなくてもよく、チタン酸カルシウム粒子以外のチタン化合物粒子を上記含有率で含んでもよい。

[0075] その他の充填材の体積平均粒径の好ましい範囲は、シリカ粒子の体積平均粒径及びアルミナ粒子の体積平均粒径の好ましい範囲と同様である。

[0076] ー無機充填材全体の含有率及び特性ー

成形用樹脂組成物に含まれる無機充填材全体の含有率は、成形用樹脂組成物の硬化物の流動性および強度を制御する観点から、成形用樹脂組成物全体に対し、55体積%を超えていることが好ましく、55体積%を超えて90体積%以下であることがより好ましく、60体積%~85体積%であることがさらに好ましく、65体積%~85体積%であることが特に好ましく、70体積%~80体積%であることが極めて好ましい。

[0077] 成形用樹脂組成物における無機充填材の含有率（体積%）は、下記の方法により求めることができる。

成形用樹脂組成物の硬化物の薄片試料を走査型電子顕微鏡（SEM）にて撮像する。SEM画像において任意の面積Sを特定し、面積Sに含まれる無機充填材の総面積Aを求める。無機充填材の総面積Aを面積Sで除算した値を百分率（%）に換算し、この値を成形用樹脂組成物に占める無機充填材の含有率（体積%）とする。

面積Sは、無機充填材の大きさに対して十分大きい面積とする。例えば、無機充填材が100個以上含まれる大きさとする。面積Sは、複数個の切断面の合計でもよい。

無機充填材は、成形用樹脂組成物の硬化時の重力方向において存在割合に偏りが生じることがある。その場合、SEMにて撮像する際、硬化物の重力方向全体を撮像し、硬化物の重力方向全体が含まれる面積Sを特定する。

[0078] （応力緩和剤）

本開示の成形用樹脂組成物は、応力緩和剤を含む。応力緩和剤は、インデンスチレン-クマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキサイド及びトリアリールホスフィンオキサイドの少なくともいずれか1つを含む。これにより、誘電正接の低い硬化物が得られる。応力緩和剤は、インデンスチレン-クマロン共重合体及びトリフェニルホスフィンオキサイドの少なくとも

も一方を含んでいてもよく、インデンスチレン-クマロン共重合体及びトリフェニルホスフィンオキシサイドの両方を含んでいてもよい。

[0079] インデンスチレン-クマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキシサイド及びトリアリールホスフィンオキシサイドの合計含有量は、例えば、硬化性樹脂100質量部（あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部）に対し、1質量部～30質量部であることが好ましく、2質量部～20質量部であることがより好ましい。

応力緩和剤が、インデンスチレン-クマロン共重合体及びトリアリールホスフィンオキシサイドの両方を含む場合、両者の質量比であるインデンスチレン-クマロン共重合体：トリアリールホスフィンオキシサイドは、1：1～5：1であってもよく、1：1～3：1であってもよく、1.5：1～2.5：1であってもよい。

[0080] 本開示の成形用樹脂組成物は、インデンスチレン-クマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキシサイド及びトリアリールホスフィンオキシサイド以外の応力緩和剤（以下、「その他の応力緩和剤」とも称する。）を含んでいてもよい。その他の応力緩和剤としては、シリコーン系、スチレン系、オレフィン系、ウレタン系、ポリエステル系、ポリエーテル系、ポリアミド系、ポリブタジエン系等の熱可塑性エラストマー、リン酸エステル等の有機リン化合物、NR（天然ゴム）、NBR（アクリロニトリル-ブタジエンゴム）、アクリルゴム、ウレタンゴム、シリコーンパウダー等のゴム粒子、メタクリル酸メチル-スチレン-ブタジエン共重合体（MBS）、メタクリル酸メチル-シリコーン共重合体、メタクリル酸メチル-アクリル酸ブチル共重合体等のコア-シェル構造を有するゴム粒子などが挙げられる。その他の応力緩和剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

シリコーン系応力緩和剤としては、エポキシ基を有するもの、アミノ基を有するもの、これらをポリエーテル変性したもの等が挙げられ、エポキシ基を有するシリコーン化合物、ポリエーテル系シリコーン化合物等のシリコーン

ン化合物がより好ましい。

[0081] その他の応力緩和剤の含有量は、例えば、硬化性樹脂100質量部（あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部）に対し、2質量部以下であってもよく、1質量部以下であってもよい。成形用樹脂組成物は、その他の応力緩和剤を含んでいなくてもよい。その他の応力緩和剤の含有量の下限値は特に限定されず、0質量部であってもよく、0.1質量部であってもよい。

[0082] シリコン系応力緩和剤の含有率は、誘電正接の観点から、成形用樹脂組成物全体に対し、20質量%以下であることが好ましく、10質量%以下であることがより好ましく、7質量%以下であることがさらに好ましく、5質量%以下であることが特に好ましく、0.5質量%以下であることが極めて好ましい。シリコン系応力緩和剤の含有率の下限値は特に限定されず、0質量%であってもよく、0.1質量%であってもよい。

[0083] (硬化促進剤)

本開示の成形用樹脂組成物は、必要に応じて硬化促進剤を含んでもよい。硬化促進剤の種類は特に制限されず、エポキシ樹脂の種類、成形用樹脂組成物の所望の特性等に応じて選択できる。

[0084] 硬化促進剤としては、1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]ノネン-5 (DBN)、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7 (DBU)等のジアザビシクロアルケン、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール等の環状アミジン化合物；前記環状アミジン化合物の誘導体；前記環状アミジン化合物又はその誘導体のフェノールノボラック塩；これらの化合物に無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5-トルキノン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジメチルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノン、フェニル-1,4-ベンゾキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニル

メタンなどの、 π 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物；DBUのテトラフェニルボレート塩、DBNのテトラフェニルボレート塩、2-エチル-4-メチルイミダゾールのテトラフェニルボレート塩、N-メチルモルホリンのテトラフェニルボレート塩等の環状アミジニウム化合物；ピリジン、トリエチルアミン、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール等の三級アミン化合物；前記三級アミン化合物の誘導体；酢酸テトラ-*n*-ブチルアンモニウム、リン酸テトラ-*n*-ブチルアンモニウム、酢酸テトラエチルアンモニウム、安息香酸テトラ-*n*-ヘキシルアンモニウム、水酸化テトラプロピルアンモニウム等のアンモニウム塩化合物；エチルホスフィン、フェニルホスフィン等の第1ホスフィン、ジメチルホスフィン、ジフェニルホスフィン等の第2ホスフィン、トリフェニルホスフィン、ジフェニル（*p*-トリル）ホスフィン、トリス（アルキルフェニル）ホスフィン、トリス（アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（アルキル・アルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルキルフェニル）ホスフィン、トリス（ジアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（トリアルコキシフェニル）ホスフィン、トリス（テトラアルコキシフェニル）ホスフィン、トリアルキルホスフィン、ジアルキルアリールホスフィン、アルキルジアリールホスフィン、トリナフチルホスフィン、トリス（ベンジル）ホスフィン等の三級ホスフィンなどの、有機ホスフィン；前記有機ホスフィンと有機ボロン類との錯体等のホスフィン化合物；前記有機ホスフィン又は前記ホスフィン化合物に、無水マレイン酸、1,4-ベンゾキノン、2,5-トルキノン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジメチルベンゾキノン、2,6-ジメチルベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-5-メチル-1,4-ベンゾキノン、2,3-ジメトキシ-1,4-ベンゾキノン、フェニル-1,4-ベンゾキノン、アントラキノン等のキノン化合物、ジアゾフェニルメタンなどの、 π 結合をもつ化合物を付加してなる分

子内分極を有する化合物；前記有機ホスフィン又は前記ホスフィン化合物と4-ブロモフェノール、3-ブロモフェノール、2-ブロモフェノール、4-クロロフェノール、3-クロロフェノール、2-クロロフェノール、4-ヨウ化フェノール、3-ヨウ化フェノール、2-ヨウ化フェノール、4-ブロモ-2-メチルフェノール、4-ブロモ-3-メチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジメチルフェノール、4-ブロモ-3,5-ジメチルフェノール、4-ブロモ-2,6-ジ-tert-ブチルフェノール、4-クロロ-1-ナフトール、1-ブロモ-2-ナフトール、6-ブロモ-2-ナフトール、4-ブロモ-4'-ヒドロキシビフェニル等のハロゲン化フェノール化合物とを反応させた後に、脱ハロゲン化水素の工程を経て得られる、分子内分極を有する化合物；テトラフェニルホスホニウム等のテトラ置換ホスホニウム、テトラフェニルホスホニウムテトラ-p-トリルボレート等のテトラ置換ホスホニウムのテトラフェニルボレート塩、テトラ置換ホスホニウムとフェノール化合物との塩などの、テトラ置換ホスホニウム化合物；テトラアルキルホスホニウムと芳香族カルボン酸無水物の部分加水分解物との塩；ホスホベタイン化合物；ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物；などが挙げられる。

硬化促進剤は1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0085] 硬化促進剤は、これらの中でも、有機ホスフィンを含む硬化促進剤であることが好ましい。有機ホスフィンを含む硬化促進剤としては、前記有機ホスフィン、前記有機ホスフィンと有機ボロン類との錯体等のホスフィン化合物、前記有機ホスフィン又は前記ホスフィン化合物に π 結合をもつ化合物を付加して成る分子内分極を有する化合物などが挙げられる。

これらの中でも、特に好適な硬化促進剤としては、トリアルキルホスフィン、トリアルキルホスフィンとキノン化合物との付加物、トリフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィンとキノン化合物との付加物、トリブチルホスフィンとキノン化合物との付加物、トリ-p-トリルホスフィンとキノン

化合物との付加物等が挙げられる。

[0086] 成形用樹脂組成物が硬化促進剤を含む場合、その量は、硬化性樹脂100質量部（あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部）に対して0.1質量部～30質量部であることが好ましく、1質量部～15質量部であることがより好ましい。硬化促進剤の量が硬化性樹脂100質量部（あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部）に対して0.1質量部以上であると、短時間で良好に硬化する傾向にある。硬化促進剤の量が硬化性樹脂100質量部（あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部）に対して30質量部以下であると、硬化速度が速すぎず良好な成形品が得られる傾向にある。

[0087] [各種添加剤]

本開示の成形用樹脂組成物は、上述の成分に加えて、以下に例示するカップリング剤、イオン交換体、離型剤、難燃剤、着色剤等の各種添加剤を含んでもよい。本開示の成形用樹脂組成物は、以下に例示する添加剤以外にも必要に応じて当技術分野で周知の各種添加剤を含んでもよい。

[0088] (カップリング剤)

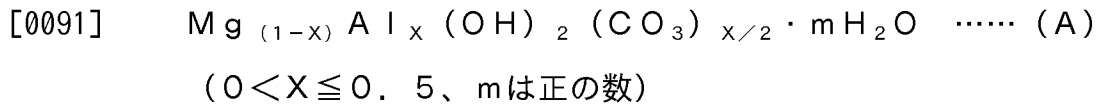
本開示の成形用樹脂組成物は、カップリング剤を含んでもよい。硬化性樹脂、硬化剤等と無機充填材との接着性を高める観点からは、成形用樹脂組成物はカップリング剤を含むことが好ましい。カップリング剤としては、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン、ジシラザン等のシラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート系化合物、アルミニウム／ジルコニウム系化合物などの公知のカップリング剤が挙げられる。

[0089] 成形用樹脂組成物がカップリング剤を含む場合、カップリング剤の量は、無機充填材100質量部に対して0.05質量部～5質量部であることが好ましく、0.1質量部～2.5質量部であることがより好ましい。カップリング剤の量が無機充填材100質量部に対して0.05質量部以上であると、フレームとの接着性がより向上する傾向にある。カップリング剤の量が無

機充填材 100 質量部に対して 5 質量部以下であると、パッケージの成形性がより向上する傾向にある。

[0090] (イオン交換体)

本開示の成形用樹脂組成物は、イオン交換体を含んでもよい。成形用樹脂組成物は、封止される電子部品を備える電子部品装置の耐湿性及び高温放置特性を向上させる観点から、イオン交換体を含むことが好ましい。イオン交換体は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ハイドロタルサイト化合物、並びにマグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、及びビスマスからなる群より選ばれる少なくとも 1 種の元素の含水酸化物等が挙げられる。イオン交換体は、1 種を単独で用いても 2 種以上を組み合わせて用いてもよい。中でも、下記一般式 (A) で表されるハイドロタルサイトが好ましい。



[0092] 成形用樹脂組成物がイオン交換体を含む場合、その含有量は、ハロゲンイオン等のイオンを捕捉するのに十分な量であれば特に制限はない。例えば、イオン交換体の含有量は、硬化性樹脂 100 質量部 (あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計 100 質量部) に対して 0.1 質量部～30 質量部であることが好ましく、1 質量部～10 質量部であることがより好ましい。

[0093] (離型剤)

本開示の成形用樹脂組成物は、成形時における金型との良好な離型性を得る観点から、離型剤を含んでもよい。離型剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸等の高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、酸化ポリエチレン、非酸化ポリエチレン等のポリオレフィン系ワックスなどが挙げられる。離型剤は、1 種を単独で用いても 2 種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0094] 成形用樹脂組成物が離型剤を含む場合、その量は硬化性樹脂 100 質量部

(あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部)に対して0.01質量部～10質量部が好ましく、0.1質量部～5質量部がより好ましい。離型剤の量が硬化性樹脂100質量部(あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部)に対して0.01質量部以上であると、離型性が十分に得られる傾向にある。10質量部以下であると、より良好な接着性が得られる傾向にある。

[0095] (難燃剤)

本開示の成形用樹脂組成物は、難燃剤を含んでもよい。難燃剤は特に制限されず、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ハロゲン原子、アンチモン原子、窒素原子又はリン原子を含む有機又は無機の化合物、金属水酸化物等が挙げられる。難燃剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0096] 成形用樹脂組成物が難燃剤を含む場合、その量は、所望の難燃効果を得るのに十分な量であれば特に制限されない。例えば、難燃剤の量は、硬化性樹脂100質量部(あるいはエポキシ樹脂及び硬化剤の合計100質量部)に対して1質量部～30質量部であることが好ましく、2質量部～20質量部であることがより好ましい。

[0097] (着色剤)

本開示の成形用樹脂組成物は、着色剤を含んでもよい。着色剤としては、カーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の公知の着色剤を挙げることができる。着色剤の含有量は、目的等に応じて適宜選択できる。着色剤は、1種を単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0098] (成形用樹脂組成物の調製方法)

成形用樹脂組成物の調製方法は、特に制限されない。一般的な手法としては、所定の配合量の成分をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、押出機等によって熔融混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。より具体的には、例えば、上述した成分の所定量を攪拌及び混合

し、予め70℃～140℃に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練し、冷却し、粉碎する方法を挙げることができる。

[0099] 本開示の成形用樹脂組成物は、常温常圧下（例えば、25℃、大気圧下）において固体であることが好ましい。成形用樹脂組成物が固体である場合の形状は特に制限されず、粉状、粒状、タブレット状等が挙げられる。成形用樹脂組成物がタブレット状である場合の寸法及び質量は、パッケージの成形条件に合うような寸法及び質量となるようにすることが取り扱い性の観点から好ましい。

[0100] （成形用樹脂組成物の特性）

本開示の成形用樹脂組成物を、圧縮成形により、金型温度175℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間600秒の条件で成形することで得られる硬化物の10GHzでの比誘電率としては、例えば8～30が挙げられる。前記硬化物の10GHzでの比誘電率は、アンテナ等の電子部品の小型化の観点から9～30であることが好ましく、10～30であることがより好ましく、15～25であることがさらに好ましい。

上記比誘電率の測定は、誘電率測定装置（例えば、アジレント・テクノロジー社、品名「ネットワークアナライザN5227A」）を用いて、温度25±3℃下で行う。

[0101] 本開示の成形用樹脂組成物を、圧縮成形により、金型温度175℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間600秒の条件で成形することで得られる硬化物の10GHzでの誘電正接としては、例えば0.015以下が挙げられる。前記硬化物の10GHzでの誘電正接は、伝送損失低減の観点から0.010以下であることが好ましく、0.007以下であることがより好ましく、0.0055以下であることがさらに好ましい。前記硬化物の10GHzでの誘電正接の下限値は、特に限定されず、例えば0.001が挙げられる。

上記誘電正接の測定は、誘電率測定装置（例えば、アジレント・テクノロジー社、品名「ネットワークアナライザN5227A」）を用いて、温度2

5 ± 3 °C 下で行う。

[0102] (成形用樹脂組成物の用途)

本開示の成形用樹脂組成物は、例えば、後述する電子部品装置、その中でも特に高周波デバイスの製造に適用することができる。本開示の成形用樹脂組成物は、高周波デバイスにおける電子部品の封止に用いてもよい。

特に、近年、第5世代移動通信システム(5G)の普及に伴い、電子部品装置に使用される半導体パッケージ(PKG)の高機能化及び小型化が進んでいる。そして、PKGの小型化及び高機能化に伴い、アンテナ機能を有するPKGであるアンテナ・イン・パッケージ(AiP、Antenna in Package)の開発も進められている。AiPでは、情報の多様化に伴うチャンネル数増加等に対応するため、通信に使用される電波が高周波化されるようになっており、封止材料において、低い誘電正接が求められている。

本開示の成形用樹脂組成物は、前記の通り、誘電正接が低い硬化物が得られる。そのため、高周波デバイスにおいて、支持部材上に配置されたアンテナを成形用樹脂組成物で封止したアンテナ・イン・パッケージ(AiP)用途に特に好適である。

アンテナ・イン・パッケージ等のアンテナを含む電子部品装置では、電力供給用のアンプをアンテナと反対側に設けた場合に電力供給による発熱が発生する。放熱性向上の観点から、電子部品装置の製造に用いられる成形用樹脂組成物は、無機充填材としてアルミナ粒子を含むことが好ましい。

[0103] <電子部品装置>

本開示の電子部品装置は、支持部材と、前記支持部材上に配置された電子部品と、前記電子部品を封止している前述の成形用樹脂組成物の硬化物と、を備える。

電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ、有機基板等の支持部材に、電子部品(半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデン

サ、抵抗体、コイル等の受動素子、アンテナなど）を搭載して得られた電子部品領域を成形用樹脂組成物で封止したもの（例えば高周波デバイス）が挙げられる。

[0104] 上記支持部材の種類は特に制限されず、電子部品装置の製造に一般的に用いられる支持部材を使用できる。

上記電子部品は、アンテナを含んでもよく、アンテナ及びアンテナ以外の素子を含んでもよい。上記アンテナは、アンテナの役割を果たすものであれば限定されるものではなく、アンテナ素子であってもよく、配線であってもよい。

[0105] また、本開示の電子部品装置では、必要に応じて、支持部材上における上記電子部品が配置された面と反対側の面に、他の電子部品が配置されていてもよい。他の電子部品は、前述の成形用樹脂組成物により封止されていてもよく、他の樹脂組成物により封止されていてもよく、封止されていなくてもよい。

[0106] （電子部品装置の製造方法）

本開示の電子部品装置の製造方法は、電子部品を支持部材上に配置する工程と、前記電子部品を前述の成形用樹脂組成物で封止する工程と、を含む。

上記各工程を実施する方法は特に制限されず、一般的な手法により行うことができる。また、電子部品装置の製造に使用する支持部材及び電子部品の種類は特に制限されず、電子部品装置の製造に一般的に用いられる支持部材及び電子部品を使用できる。

[0107] 前述の成形用樹脂組成物を用いて電子部品を封止する方法としては、低圧トランスファ成形法、インジェクション成形法、圧縮成形法等が挙げられる。これらの中では、低圧トランスファ成形法が一般的である。

実施例

[0108] 以下、上記実施形態を実施例により具体的に説明するが、上記実施形態の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0109] <成形用樹脂組成物の調製>

下記に示す成分を表1に示す配合割合（質量部）で混合し、実施例と比較例の成形用樹脂組成物を調製した。この成形用樹脂組成物は、常温常圧下において固体であった。

なお、表1中、空欄はその成分を含まないことを意味する。

また、成形用樹脂組成物全体に対する無機充填材の含有率（表中の「含有率（体積％）」）も併せて表1に示す。

また、表中のCTO比率は、無機充填材全体に対するチタン酸カルシウム粒子の含有率（質量％又は体積％）を意味し、表中のアルミナ比率は、無機充填材全体に対するアルミナ粒子の含有率（質量％又は体積％）を意味する。

- [0110] ・エポキシ樹脂1：ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、エポキシ当量275g/eq
・エポキシ樹脂2：ビフェニル型エポキシ樹脂、エポキシ当量196g/eq
・エポキシ樹脂3：オークレゾールノボラック型エポキシ樹脂、エポキシ当量202g/eq
- [0111] ・硬化剤1：活性エステル化合物、DIC株式会社、品名「EXB-8」
・硬化剤2：フェノール硬化剤、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、水酸基当量199g/eq
・硬化剤3：メラミン変性フェノール樹脂、反応基当量120g/eq
- [0112] ・硬化促進剤：トリアルキルホスフィンと1,4-ベンゾキノンの付加物
・カップリング剤：N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン（信越化学工業社、品名「KBM-573」）
・離型剤：モンタン酸エステルワックス（クラリアントジャパン株式会社、品名「Licowax E」）
・着色剤：カーボンブラック
・応力緩和剤1：インデンスチレン-クマロン共重合体
・応力緩和剤2：トリアリールホスフィンオキサイド
- [0113] ・無機充填材1：チタン酸カルシウム粒子、体積平均粒径：0.24μm、

形状：不定形・無機充填材 2：アルミナ粒子、体積平均粒径：5.7 μm 、
形状：球形

・無機充填材 3：チタン酸カルシウム粒子、体積平均粒径：23.0 μm 、
形状：不定形・無機充填材 4：アルミナ粒子、体積平均粒径：0.25 μm 、
形状：球形

[0114] なお、上記各無機充填材の体積平均粒径は、以下の測定により得られた値である。

具体的には、まず、分散媒（水）に、無機充填材を0.01質量%～0.1質量%の範囲で添加し、バス式の超音波洗浄機で5分間分散した。

得られた分散液5mlをセルに注入し、25℃で、レーザー回折／散乱式粒子径分布測定装置（株式会社堀場製作所、LA920）にて粒度分布を測定した。

得られた粒度分布における積算値50%（体積基準）での粒径を体積平均粒径とした。

[0115] （スパイラルフロー（SF）の評価）

EMM1-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型を用いて、熱硬化性樹脂組成物をトランスファ成形機により、金型温度180℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間120秒間の条件で成形して流動距離（cm）を求めた。結果を表1に示す。

[0116] （比誘電率及び誘電正接の測定）

成形用樹脂組成物をトランスファ成形機に仕込み、金型温度180℃、成形圧力6.9MPa、硬化時間90秒の条件で成形し、後硬化を175℃で6時間行い、90mm×0.6mm×1.0mmの直方体形状の試験片を作製した。

この試験片の比誘電率（Dk）及び誘電正接（Df）を、周波数10GHzにて、空洞共振器（株式会社関東電子応用開発）及びネットワークアナライザ（キーサイトテクノロジー社、品名「PNA N5227A」）を用いて、空洞共振法によって温度25±3℃の環境下で測定した。結果を表1に

示す。

[0117] [表1]

		実施例 1	比較例 1	比較例 2	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 3	比較例 4
エポキシ樹脂	エポキシ樹脂1	70.1	70.1						
	エポキシ樹脂2	29.9	29.9	29.9	29.9	29.9	29.9	29.9	29.9
	エポキシ樹脂3			70.1	70.1	70.1	70.1	70.1	70.1
硬化剤	硬化剤 1	43.9	51.6	106	106	106	106	106	106
	硬化剤 2	20.9	24.6						
	硬化剤 3	4.2	4.9						
硬化促進剤	硬化促進剤	3.3	3.3	5	5	5	5	5	5
カプリング剤	カプリング剤	5	5	5	5	5	5	5	5
離型剤	離型剤	1	1	1	1	1	1	1	1
着色剤	着色剤	5.3	5.3	5.3	5.3	5.3	5.3	5.3	5.3
応力緩和剤	応力緩和剤 1	10		10	10	10	10	10	10
	応力緩和剤 2	5		5	5	5	5	5	5
無機充填材全体の含有率 (体積%)		68	68	68	68	68	68	70	73
無機充填材	無機充填材 1	147	145		175	175	175		
	無機充填材 2	545	537	1459	405	811	1216	1602	1857
	無機充填材 3	736	726		1139	701	263		
	無機充填材 4			159				174	202
合計		1626.6	1603.7	1896.7	1956.3	1924.3	1891.3	2058.7	2346.7
SF	cm	93	80	253	78	130	188	203	140
C T O 比率	質量%	61.8	61.9	0.0	76.4	51.9	26.5	0.0	0.0
アルミナ比率	質量%	38.2	38.1	100.0	23.6	48.1	73.5	100.0	100.0
C T O 比率	体積%	60	60	0	75	50	25	0	0
アルミナ比率	体積%	40	40	100	25	50	75	100	100
Dk@10GHz	-	22.6	23.1	5.9	26.2	15.9	9.7	7.1	7.6
Df@10GHz	-	0.0052	0.0060	0.0032	0.0045	0.0041	0.0036	0.0031	0.0029

[0118] 表 1 に示される通り、実施例の成形用樹脂組成物では、比誘電率を維持しつつ、低い誘電正接を有する硬化物を成形可能であった。一方、比較例 1 にて得られた硬化物は、各実施例にて得られた硬化物よりも高い誘電正接を有していた。比較例 2～4 にて得られた硬化物は、各実施例にて得られた硬化物よりも低い比誘電率を有していた。

[0119] 日本国特許出願 2022-094676 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。

本明細書に記載された全ての文献、特許出願、および技術規格は、個々の文献、特許出願、およ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、本明細書中に援用されて取り込まれる。

請求の範囲

- [請求項1] 硬化性樹脂と、
シリカ粒子及びアルミナ粒子の少なくとも一方並びにチタン酸カルシウム粒子を含む無機充填材と、
応力緩和剤と、
を含み、
前記応力緩和剤は、インデンスチレンークマロン共重合体、トリアルキルホスフィンオキサイド及びトリアリールホスフィンオキサイドの少なくともいずれか1つを含む成形用樹脂組成物。
- [請求項2] 前記チタン酸カルシウム粒子の含有率は、無機充填材全体に対して30体積%～90体積%である請求項1に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項3] 前記硬化性樹脂がエポキシ樹脂を含み、かつ、前記成形用樹脂組成物が硬化剤をさらに含む、請求項1に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項4] 前記硬化剤は、活性エステル化合物を含む請求項3に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項5] 前記硬化剤は、フェノール硬化剤を含む請求項3に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項6] 前記フェノール硬化剤は、メラミン変性フェノール樹脂を含む請求項5に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項7] 無機充填材全体の含有率は、成形用樹脂組成物全体に対して55体積%を超えている請求項1に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項8] 高周波デバイスに用いられる、請求項1～請求項7のいずれか1項に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項9] 高周波デバイスにおける電子部品の封止に用いられる、請求項8に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項10] アンテナ・イン・パッケージに用いられる、請求項1～請求項7のいずれか1項に記載の成形用樹脂組成物。
- [請求項11] 支持部材と、

前記支持部材上に配置された電子部品と、
前記電子部品を封止している請求項 1 ～請求項 7 のいずれか 1 項に
記載の成形用樹脂組成物の硬化物と、
を備える電子部品装置。

[請求項12] 前記電子部品がアンテナを含む請求項 1 1 に記載の電子部品装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/021622

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>C08L 101/00</i>(2006.01)i; <i>C08K 3/22</i>(2006.01)i; <i>C08K 3/24</i>(2006.01)i; <i>C08K 3/36</i>(2006.01)i; <i>C08L 45/02</i>(2006.01)i; <i>C08L 61/28</i>(2006.01)i; <i>C08L 63/00</i>(2006.01)i; <i>C08L 67/00</i>(2006.01)i; <i>H01L 23/29</i>(2006.01)i; <i>H01L 23/31</i>(2006.01)i</p> <p>FI: C08L101/00; C08L63/00 A; C08L45/02; C08K3/36; C08K3/22; C08K3/24; C08L61/28; C08L67/00; H01L23/30 R</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)		
C08L101/00; C08K3/22; C08K3/24; C08K3/36; C08L45/02; C08L61/28; C08L63/00; C08L67/00; H01L23/29; H01L23/31		
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 1971-2023</p> <p>Registered utility model specifications of Japan 1996-2023</p> <p>Published registered utility model applications of Japan 1994-2023</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.
Y	JP 6870778 B1 (SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.) 12 May 2021 (2021-05-12) paragraphs [0046], [0085], [0093], [0102]-[0104], table 1, example 1	1-12
Y	JP 2020-122115 A (KYOCERA CORP.) 13 August 2020 (2020-08-13) paragraphs [0060]-[0065]	1-12
Y	WO 2019/131095 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 04 July 2019 (2019-07-04) paragraph [0091]	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
14 August 2023		22 August 2023
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/JP2023/021622

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	6870778	B1	12 May 2021	US 2023/0092703 A1 paragraphs [0067], [0129], [0142], [0159], [0161], [0162], [0165], [0173], table 1, example 1	
				JP 2022-92991 A	
				WO 2022/123799 A1	
				CN 114981353 A	
JP	2020-122115	A	13 August 2020	(Family: none)	
WO	2019/131095	A1	04 July 2019	CN 111527147 A	
				KR 10-2020-0103756 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L 101/00(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 3/24(2006.01)i; C08K 3/36(2006.01)i; C08L 45/02(2006.01)i; C08L 61/28(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 67/00(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i FI: C08L101/00; C08L63/00 A; C08L45/02; C08K3/36; C08K3/22; C08K3/24; C08L61/28; C08L67/00; H01L23/30 R</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>C08L101/00; C08K3/22; C08K3/24; C08K3/36; C08L45/02; C08L61/28; C08L63/00; C08L67/00; H01L23/29; H01L23/31</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 - 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> <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 - 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													
<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>Y</td> <td>JP 6870778 B1 (昭和電工マテリアルズ株式会社) 12.05.2021 (2021 - 05 - 12) [0046], [0085], [0093], [0102] ~ [0104], [表1] の実施例1</td> <td>1 - 12</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2020-122115 A (京セラ株式会社) 13.08.2020 (2020 - 08 - 13) [0060] ~ [0065]</td> <td>1 - 12</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2019/131095 A1 (日立化成株式会社) 04.07.2019 (2019 - 07 - 04) [0091]</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	Y	JP 6870778 B1 (昭和電工マテリアルズ株式会社) 12.05.2021 (2021 - 05 - 12) [0046], [0085], [0093], [0102] ~ [0104], [表1] の実施例1	1 - 12	Y	JP 2020-122115 A (京セラ株式会社) 13.08.2020 (2020 - 08 - 13) [0060] ~ [0065]	1 - 12	Y	WO 2019/131095 A1 (日立化成株式会社) 04.07.2019 (2019 - 07 - 04) [0091]	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												
Y	JP 6870778 B1 (昭和電工マテリアルズ株式会社) 12.05.2021 (2021 - 05 - 12) [0046], [0085], [0093], [0102] ~ [0104], [表1] の実施例1	1 - 12												
Y	JP 2020-122115 A (京セラ株式会社) 13.08.2020 (2020 - 08 - 13) [0060] ~ [0065]	1 - 12												
Y	WO 2019/131095 A1 (日立化成株式会社) 04.07.2019 (2019 - 07 - 04) [0091]	1 - 12												
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</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>14. 08. 2023</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>22. 08. 2023</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>西山 義之 4J 3129</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/JP2023/021622

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	6870778	B1	12.05.2021	US	2023/0092703	A1	
					[0067], [0129], [0142], [0159], [0161], [0162], [0165], [0173], TABLE 1 Example 1		
				JP	2022-92991	A	
				WO	2022/123799	A1	
				CN	114981353	A	
JP	2020-122115	A	13.08.2020	(ファミリーなし)			
WO	2019/131095	A1	04.07.2019	CN	111527147	A	
				KR	10-2020-0103756	A	