

(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
2019年3月7日(07.03.2019)



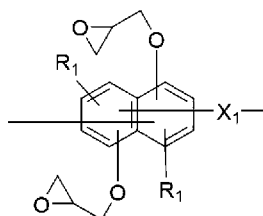
(10) 国際公開番号

WO 2019/044977 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/32 (2006.01) *C08J 5/24* (2006.01)
B32B 15/092 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
B32B 27/38 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)
C08G 59/40 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/032130
- (22) 国際出願日: 2018年8月30日(30.08.2018)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2017-167497 2017年8月31日(31.08.2017) JP
特願 2017-211967 2017年11月1日(01.11.2017) JP
- (71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 杉山 源 希 (SUGIYAMA, Genki); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京テクノパーク内 Tokyo (JP). 古賀 将太(KOGA, Shota); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京テクノパーク内 Tokyo (JP). 高野 健太郎(TAKANO, Kentaro); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京テクノパーク内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 稲葉 良幸, 外(INABA, Yoshiyuki et al.); 〒1066123 東京都港区六本木6-10-1 六本木ヒルズ森タワー23階 TMI 総合法律事務所 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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

(54) Title: RESIN COMPOSITION, PREPREG, METAL FOIL-CLAD LAMINATE, RESIN SHEET AND PRINTED WIRING BOARD

(54) 発明の名称: 樹脂組成物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂シート及びプリント配線板



(1)

(57) Abstract: A resin composition which contains: (A) an epoxy resin that has a repeating unit represented by formula (1), while having a Z-average molecular weight of from 1,400 to 3,000 (inclusive); and (B) a cyanate ester compound. (In formula (1), X₁ represents an alkylene group having 1-3 carbon atoms or an alkenylene group; and each R₁ independently represents a hydrogen atom, an alkyl group having 1-3 carbon atoms, or an alkenyl group.)

(57) 要約: 下記式(1)で表される繰り返し単位を有し、かつ、Z平均分子量が1400以上3000以下であるエポキシ樹脂(A)と、シアン酸エステル化合物(B)と、を含有する、樹脂組成物。(式(1)中、X₁は炭素数1~3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、R₁は各々独立に水素原子又は炭素数1~3のアルキル基若しくはアルケニル基を表す。)



WO 2019/044977 A1

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

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、金属箔張積層板、樹脂シート及びプリント配線板

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂シート及びプリント配線板に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器や通信機、パーソナルコンピューター等に広く用いられている半導体の高集積化、微細化はますます加速している。これに伴い、プリント配線板に用いられる半導体パッケージ用積層板に求められる諸特性はますます厳しいものとなっている。求められる特性として、例えば、低吸水性、吸湿耐熱性、難燃性、低誘電率、低誘電正接、低熱膨張率、耐熱性、耐薬品性、高めつきピール強度等の特性が挙げられる。しかし、これまでのところ、これらの要求特性は必ずしも満足されてきたわけではない。

[0003] 従来から、耐熱性や電気特性に優れるプリント配線板用材料として、シアン酸エステル化合物が知られており、近年、シアン酸エステル化合物にエポキシ樹脂、ビスマレイミド化合物などを併用した樹脂組成物が、半導体プラスチックパッケージ用などの高機能のプリント配線板用材料などに幅広く使用されている。

例えば、特許文献1及び2においては、密着性、低吸水性、吸湿耐熱性、絶縁信頼性などの特性に優れる、シアン酸エステル化合物とエポキシ樹脂からなる樹脂組成物が提案されている。

また、特許文献3においては、耐熱性及び難燃性に優れる、シアン酸エステル化合物とエポキシ樹脂とを含む熱硬化性樹脂組成物が提案されている。

先行技術文献

特許文献

- [0004] 特許文献1：国際公開第2013/065694号
特許文献2：国際公開第2014/203866号
特許文献3：国際公開第2015/064064号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0005] 特許文献1～2に記載の樹脂組成物は、密着性、低吸水性、吸湿耐熱性、絶縁信頼性について、良好な物性を有しているといえるものの、耐熱性の観点から、未だ改善の余地がある。さらに、耐熱性に優れるとされている特許文献3に記載の樹脂組成物についても、未だ改善の余地がある。
- [0006] 本発明は、上記問題点に鑑みてなされたものであり、優れた耐熱性を発現する、樹脂組成物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂シート、並びにプリント配線板を提供することを目的とする。

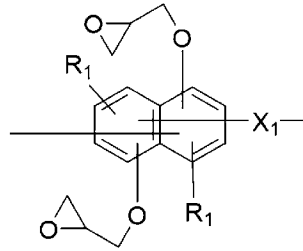
課題を解決するための手段

- [0007] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した。その結果、シアン酸エステル化合物と、特定構造及び特定分子量を有するエポキシ樹脂を併用することにより、上記課題が解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。
- [0008] すなわち、本発明は以下の態様を包含する。

[1]

下記式(1)で表される繰り返し単位を有し、かつ、Z平均分子量が1400以上3000以下であるエポキシ樹脂(A)と、シアン酸エステル化合物(B)と、を含有する、樹脂組成物。

[化1]



(1)

(式(1)中、 X_1 は炭素数1～3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、 R_1 は各々独立に水素原子又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルケニル基を表す。)

[2]

前記エポキシ樹脂(A)の含有量が、樹脂固形分100質量部に対し、1～90質量部である、[1]に記載の樹脂組成物。

[3]

前記式(1)で表されるエポキシ樹脂(A)以外のエポキシ樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、及び重合可能な不飽和基を有する化合物からなる群より選択される一種以上をさらに含有する、[1]又は[2]に記載の樹脂組成物。

[4]

充填材(C)をさらに含有する、[1]～[3]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[5]

前記充填材(C)の含有量が、樹脂固形分100質量部に対し、50～1600質量部である、[4]に記載の樹脂組成物。

[6]

基材と、

前記基材に含浸又は塗布された、[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物と、

を有する、プリプレグ。

[7]

少なくとも1枚以上積層された[6]に記載のプリプレグと、
前記プリプレグの片面又は両面に配された金属箔と、
を有する、金属箔張積層板。

[8]

[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物を有する、樹脂シート。

[9]

絶縁層と、
前記絶縁層の表面に形成された導体層と、
を有し、
前記絶縁層が、[1]～[5]のいずれかに記載の樹脂組成物を含む、プリント配線板。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、優れた耐熱性を発現する、樹脂組成物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂シート、並びにプリント配線板を提供することができる。

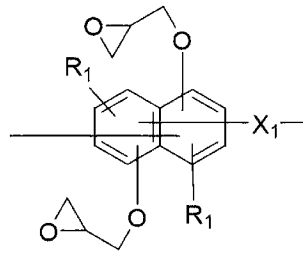
発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明を実施するための形態（以下、「本実施形態」という。）について詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲で様々な変形が可能である。

[0011] 本実施形態の樹脂組成物は、下記式(1)で表される繰り返し単位を有し、かつ、Z平均分子量が1400以上3000以下であるエポキシ樹脂(A)と、シアン酸エステル化合物(B)とを含有する。このように構成されているため、本実施形態の樹脂組成物は、優れた耐熱性を発現することができる。

[0012]

[化2]



(1)

(式(1)中、 X_1 は炭素数1～3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、 R_1 は各々独立に水素原子又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルケニル基を表す。)

[0013] 以下、本実施形態の樹脂組成物を構成する各成分について説明する。

[0014] [エポキシ樹脂(A)]

本実施形態におけるエポキシ樹脂(A)は上記式(1)で表される繰り返し単位を有する。

式(1)における X_1 は、炭素数1～3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、好ましくはメチレン基である。

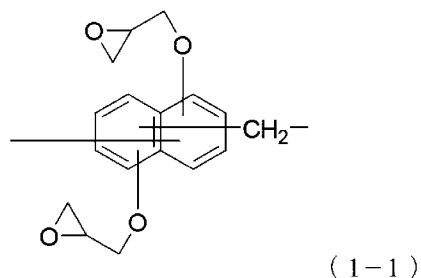
式(1)における R_1 は各々独立に、水素原子又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルケニル基を表し、好ましくは水素原子である。

式(1)で表される繰り返し単位数は、1以上の整数であり、耐熱性及び成形性の観点から、好ましくは1以上5以下であり、より好ましくは2以上4以下である。なお、本実施形態における所定の繰り返し単位を有し、かつ、所定のZ平均分子量を有する限り、エポキシ樹脂(A)は、1つの繰り返し単位数を持つ1種のエポキシ樹脂のみであってもよいし、繰り返し単位数が異なる2種以上のエポキシ樹脂の混合物であってもよい。

(A)が、繰り返し単位数が異なる2種以上のエポキシ樹脂の混合物である場合、繰り返し単位数が1となるエポキシ樹脂を含むものであってもよいが、繰り返し単位数が2以上となるエポキシ樹脂も含まれていることにより、エポキシ樹脂(A)のZ平均分子量としては1400以上3000以下となる。

[0015] 本実施形態において、耐熱性の観点から、上記式(1)で表される繰り返し単位は下記式(1-1)で表される繰り返し単位であることが好ましい。

[化3]



[0016] また、本実施形態において、耐熱性の観点から、上記式(1)で表される繰り返し構造の末端は、その一方が水素原子であり、他方が下記式(1-2)で表される基であることが好ましい。

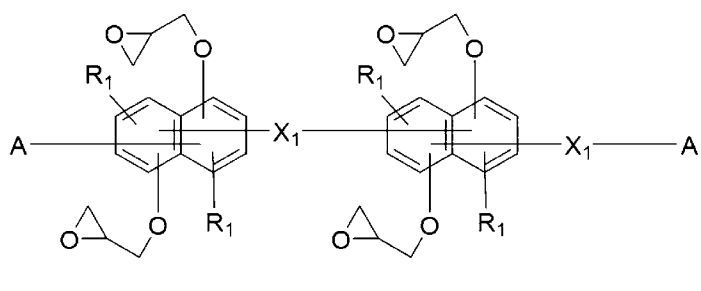
[化4]



(式(1-2)中、 R_1 は各々独立に水素原子又は炭素数1~3のアルキル基若しくはアルケニル基を表す。)

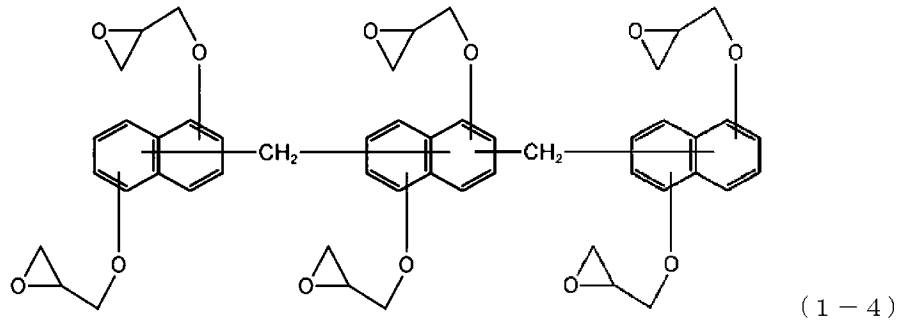
[0017] 本実施形態におけるエポキシ樹脂(A)は、以下に限定されないが、例えば、下記式(1-3)で表されるエポキシ樹脂を含むことができ、より具体的には、例えば、下記式(1-4)で表されるエポキシ樹脂を含むことができる。

[化5]



(式(1-3)中、 X_1 は炭素数1~3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、 R_1 は各々独立に水素原子又は炭素数1~3のアルキル基若しくはアルケニル基を表し、 A は、その一方が水素原子であり、他方が上記式(1-2)で表される基である。)

[化6]



[0018] 本実施形態におけるエポキシ樹脂(A)のZ平均分子量は、1400以上3000以下であり、耐熱性及び成形性の観点から、好ましくは1500以上2500以下であり、より好ましくは1600以上2000以下である。

[0019] 本実施形態におけるエポキシ樹脂(A)の含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、耐熱性をより良好とする観点から、樹脂固形分100質量部に対し、1~90質量部であることが好ましく、より好ましくは30~70質量部であり、さらに好ましくは40~60質量部である。

[0020] なお、本実施形態において、「樹脂固形分」とは、特に断りのない限り、本実施形態の樹脂組成物における、溶剤及び充填材を除いた成分をいい、「樹脂固形分100質量部」とは、本実施形態の樹脂組成物における溶剤及び充填材を除いた成分の合計が100質量部であることをいうものとする。

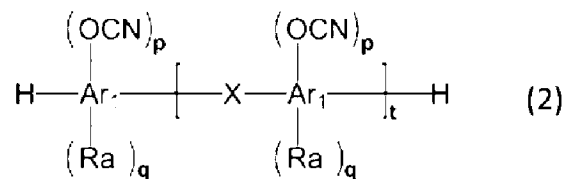
[0021] 本実施形態におけるエポキシ樹脂(A)の製造方法としては、特に限定されず、公知の方法を用いることができる。また、エポキシ樹脂(A)は、市販品として入手することもでき、その例としては、以下に限定されないが、DIC(株)製の「EPICLON EXA-4710H-70M」等が挙げられる。

[0022] [シアン酸エステル化合物(B)]

シアン酸エステル化合物（B）としては、シアナト基（シアン酸エステル基）で少なくとも1個置換された芳香族部分を分子内に有する化合物であれば、特に限定されない。シアン酸エステル化合物（B）を用いた樹脂組成物は、硬化物とした際に、ガラス転移温度、低熱膨張性、めっき密着性等に優れた特性を有する。

[0023] シアン酸エステル化合物（B）の例としては、以下に限定されないが、下記式（2）で表されるものが挙げられる。

[0024] [化7]



[0025] 上記式（2）中、 Ar_1 は、ベンゼン環、ナフタレン環又は2つのベンゼン環が単結合したものを表す。複数ある場合は互いに同一であっても異なってもよい。 Ra は各々独立に水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数6～12のアリール基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～6のアルキル基と炭素数6～12のアリール基とが結合された基を示す。 Ra における芳香環は置換基を有していてもよく、 Ar_1 及び Ra における置換基は任意の位置を選択できる。 p は Ar_1 に結合するシアナト基の数を示し、各々独立に1～3の整数である。 q は Ar_1 に結合する Ra の数を示し、 Ar_1 がベンゼン環のときは $4-p$ 、ナフタレン環のときは $6-p$ 、2つのベンゼン環が単結合したもののときは $8-p$ である。 t は平均繰り返し数を示し、0～50の整数であり、他のシアン酸エステル化合物は、 t が異なる化合物の混合物であってもよい。 X は、複数ある場合は各々独立に、単結合、炭素数1～50の2価の有機基（水素原子がヘテロ原子に置換されていてもよい）、窒素数1～10の2価の有機基（例えば $-\text{N}-\text{R}-\text{N}-$ （ここで R は有機基を示す。）、カルボニル基（ $-\text{CO}-$ ）、カルボキシ基（ $-\text{C}(=\text{O})\text{O}-$ ）、カルボニルジオキサイド基（ $-\text{OC}(=\text{O})\text{O}-$ ）、スルホニル基（ $-\text{SO}_2-$ ）、2価の硫黄原子又は2価の酸素原子のいずれかを示す。

[0026] 上記式(2)のR_aにおけるアルキル基は、直鎖もしくは分枝の鎖状構造、及び、環状構造(例えばシクロアルキル基等)のいずれを有していてもよい。

また、式(2)におけるアルキル基及びR_aにおけるアリアル基中の水素原子は、フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子、メトキシ基、フェノキシ基等のアルコキシル基、又はシアノ基等で置換されていてもよい。

アルキル基の具体例としては、以下に限定されないが、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、1-エチルプロピル基、2,2-ジメチルプロピル基、シクロペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、及びトリフルオロメチル基が挙げられる。

アリアル基の具体例としては、以下に限定されないが、フェニル基、キシリル基、メシチル基、ナフチル基、フェノキシフェニル基、エチルフェニル基、*o*-, *m*-又は*p*-フルオロフェニル基、ジクロロフェニル基、ジシアノフェニル基、トリフルオロフェニル基、メトキシフェニル基、及び*o*-, *m*-又は*p*-トリル基等が挙げられる。

アルコキシル基としては、以下に限定されないが、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、イソブトキシ基、及び*tert*-ブトキシ基が挙げられる。

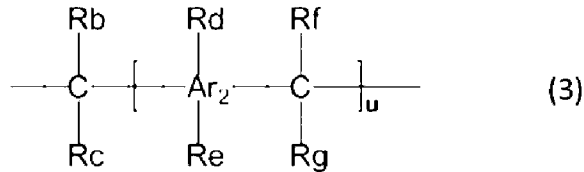
上記式(2)のXにおける炭素数1~50の2価の有機基の具体例としては、以下に限定されないが、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、トリメチルシクロヘキシレン基、ビフェニルイルメチレン基、ジメチルメチレン-フェニレン-ジメチルメチレン基、フルオレンジイル基、及びフタリドジイル基等が挙げられる。該2価の有機基中の水素原子は、フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子、メトキシ基、フェノキシ基等のアルコキシル基、シアノ基等で置換されていてもよい。

上記式(2)のXにおける窒素数1~10の2価の有機基の例としては、

以下に限定されないが、イミノ基、ポリイミド基等が挙げられる。

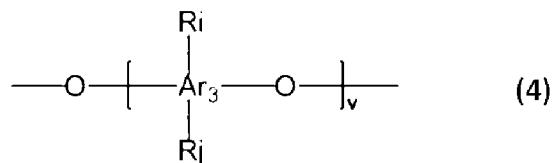
[0027] また、上記式(2)中のXの有機基として、例えば、下記式(3)又は下記式(4)で表される構造であるものが挙げられる。

[0028] [化8]



(上記式(3)中、Ar₂はベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基又はビフェニルテトライル基を示し、uが2以上の場合、互いに同一であっても異なってもよい。Rb、Rc、Rf、及びRgは各々独立に、水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~12のアリール基、トリフルオロメチル基、又はフェノール性ヒドロキシ基を少なくとも1個有するアリール基を示す。Rd及び、Reは各々独立に、水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~12のアリール基、炭素数1~4のアルコキシル基、又はヒドロキシ基のいずれか一種から選択される。uは0~5の整数を示す。)

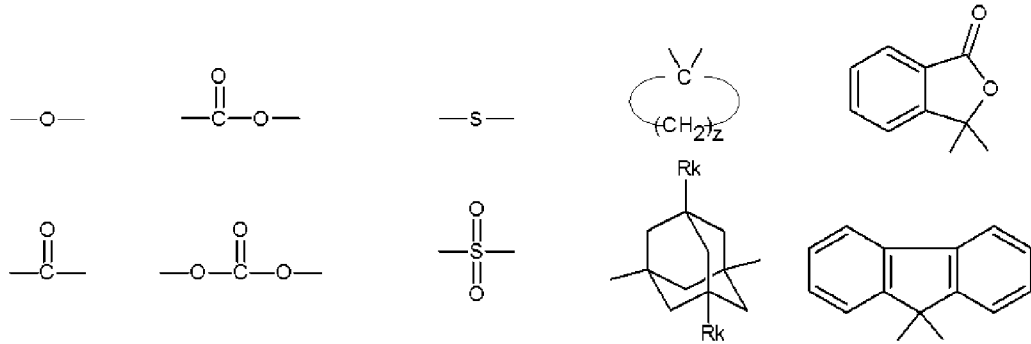
[0029] [化9]



(式(4)中、Ar₃はベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基又はビフェニルテトライル基を示し、vが2以上の場合、互いに同一であっても異なってもよい。Ri、及びRjは各々独立に、水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数6~12のアリール基、ベンジル基、炭素数1~4のアルコキシル基、ヒドロキシ基、トリフルオロメチル基、又はシアナト基が少なくとも1個置換されたアリール基を示す。vは0~5の整数を示すが、シアノ酸エステル化合物は、vが異なる化合物の混合物であってもよい。)

[0030] さらに、式(2)中のXとしては、下記式で表される2価の基が挙げられる。

[0031] [化10]



(上記式中、zは4～7の整数を示す。Rkは各々独立に、水素原子又は炭素数1～6のアルキル基を示す。)

[0032] 式(3)のAr₂及び式(4)のAr₃の具体例としては、式(3)に示す2個の炭素原子、又は式(4)に示す2個の酸素原子が、1, 4位又は1, 3位に結合するベンゼンテトライル基、上記2個の炭素原子又は2個の酸素原子が4, 4'位、2, 4'位、2, 2'位、2, 3'位、3, 3'位、又は3, 4'位に結合するビフェニルテトライル基、及び、上記2個の炭素原子又は2個の酸素原子が、2, 6位、1, 5位、1, 6位、1, 8位、1, 3位、1, 4位、又は2, 7位に結合するナフタレンテトライル基が挙げられる。

式(3)のRb、Rc、Rd、Re、Rf及びRg、並びに式(4)のRi、Rjにおけるアルキル基及びアリアル基は、上記式(2)中のRaにおけるアルキル基及びアリアル基と同義である。

[0033] 上記式(2)で表されるシアナト置換芳香族化合物の具体例としては、以下に限定されないが、シアナトベンゼン、1-シアナト-2-, 1-シアナト-3-, 又は1-シアナト-4-メチルベンゼン、1-シアナト-2-, 1-シアナト-3-, 又は1-シアナト-4-メトキシベンゼン、1-シアナト-2, 3-, 1-シアナト-2, 4-, 1-シアナト-2, 5-, 1-シアナト-2, 6-, 1-シアナト-3, 4-又は1-シアナト-3, 5-

ジメチルベンゼン、シアナトエチルベンゼン、シアナトブチルベンゼン、シアナトオクチルベンゼン、シアナトノニルベンゼン、2-(4-シアナフェニル)-2-フェニルプロパン(4- α -クミルフェノールのシアネート)、1-シアナト-4-シクロヘキシルベンゼン、1-シアナト-4-ビニルベンゼン、1-シアナト-2-又は1-シアナト-3-クロロベンゼン、1-シアナト-2, 6-ジクロロベンゼン、1-シアナト-2-メチル-3-クロロベンゼン、シアナトニトロベンゼン、1-シアナト-4-ニトロ-2-エチルベンゼン、1-シアナト-2-メトキシ-4-アリルベンゼン(オイゲノールのシアネート)、メチル(4-シアナトフェニル)スルフィド、1-シアナト-3-トリフルオロメチルベンゼン、4-シアナトビフェニル、1-シアナト-2-又は1-シアナト-4-アセチルベンゼン、4-シアナトベンズアルデヒド、4-シアナト安息香酸メチルエステル、4-シアナト安息香酸フェニルエステル、1-シアナト-4-アセトアミノベンゼン、4-シアナトベンゾフェノン、1-シアナト-2, 6-ジ-tert-ブチルベンゼン、1, 2-ジシアナトベンゼン、1, 3-ジシアナトベンゼン、1, 4-ジシアナトベンゼン、1, 4-ジシアナト-2-tert-ブチルベンゼン、1, 4-ジシアナト-2, 4-ジメチルベンゼン、1, 4-ジシアナト-2, 3, 4-ジメチルベンゼン、1, 3-ジシアナト-2, 4, 6-トリメチルベンゼン、1, 3-ジシアナト-5-メチルベンゼン、1-シアナト又は2-シアナトナフタレン、1-シアナト4-メトキシナフタレン、2-シアナト-6-メチルナフタレン、2-シアナト-7-メトキシナフタレン、2, 2'-ジシアナト-1, 1'-ビナフチル、1, 3-, 1, 4-, 1, 5-, 1, 6-, 1, 7-, 2, 3-, 2, 6-又は2, 7-ジシアナトシナフタレン、2, 2'-又は4, 4'-ジシアナトビフェニル、4, 4'-ジシアナトオクタフルオロビフェニル、2, 4'-又は4, 4'-ジシアナトジフェニルメタン、ビス(4-シアナト-3, 5-ジメチルフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)エタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル)

ル) プロパン、2, 2-ビス(4-シアナト-3-メチルフェニル) プロパン、2, 2-ビス(2-シアナト-5-ビフェニルイル) プロパン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス(4-シアナト-3, 5-ジメチルフェニル) プロパン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) ブタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) イソブタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) ペンタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) -3-メチルブタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) -2-メチルブタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) -2, 2-ジメチルプロパン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) ブタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) ペンタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) ヘキサン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) -3-メチルブタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) -4-メチルペンタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) -3, 3-ジメチルブタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) ヘキサン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) ヘプタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) オクタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2-メチルペンタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2-メチルヘキサン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2, 2-ジメチルペンタン、4, 4-ビス(4-シアナトフェニル) -3-メチルヘプタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2-メチルヘプタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2, 2-ジメチルヘキサン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2, 4-ジメチルヘキサン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル) -2, 2, 4-トリメチルペンタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル) -1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、ビス(4-シアナトフェニル) フェニルメタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) -1-フェニルエタン、ビス(4-シアナトフェニル) ビフェニルメタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) シクロペンタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル) シクロヘキサン、2, 2-ビス(4-シアナト-3-イソプロピルフェニル)

プロパン、1, 1-ビス(3-シクロヘキシル-4-シアナトフェニル)シクロヘキサン、ビス(4-シアナトフェニル)ジフェニルメタン、ビス(4-シアナトフェニル)-2, 2-ジクロロエチレン、1, 3-ビス[2-(4-シアナトフェニル)-2-プロピル]ベンゼン、1, 4-ビス[2-(4-シアナトフェニル)-2-プロピル]ベンゼン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、4-[ビス(4-シアナトフェニル)メチル]ビフェニル、4, 4-ジシアナトベンゾフェノン、1, 3-ビス(4-シアナトフェニル)-2-プロペン-1-オン、ビス(4-シアナトフェニル)エーテル、ビス(4-シアナトフェニル)スルフィド、ビス(4-シアナトフェニル)スルホン、4-シアナト安息香酸-4-シアナトフェニルエステル(4-シアナトフェニル-4-シアナトベンゾエート)、ビス-(4-シアナトフェニル)カーボネート、1, 3-ビス(4-シアナトフェニル)アダマンタン、1, 3-ビス(4-シアナトフェニル)-5, 7-ジメチルアダマンタン、3, 3-ビス(4-シアナトフェニル)イソベンゾフラン-1(3H)-オン(フェノールフタレインのシアネート)、3, 3-ビス(4-シアナト-3-メチルフェニル)イソベンゾフラン-1(3H)-オン(o-クレゾールフタレインのシアネート)、9, 9'-ビス(4-シアナトフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-シアナト-3-メチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(2-シアナト-5-ビフェニルイル)フルオレン、トリス(4-シアナトフェニル)メタン、1, 1, 1-トリス(4-シアナトフェニル)エタン、1, 1, 3-トリス(4-シアナトフェニル)プロパン、 α , α , α' -トリス(4-シアナトフェニル)-1-エチル-4-イソプロピルベンゼン、1, 1, 2, 2-テトラキス(4-シアナトフェニル)エタン、テトラキス(4-シアナトフェニル)メタン、2, 4, 6-トリス(N-メチル-4-シアナトアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、2, 4-ビス(N-メチル-4-シアナトアニリノ)-6-(N-メチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、ビス(N-4-シアナト-2-メチルフェニル)-4, 4'-オキシジフタル

イミド、ビス（N-3-シアナト-4-メチルフェニル）-4, 4'-オキシジフタルイミド、ビス（N-4-シアナトフェニル）-4, 4'-オキシジフタルイミド、ビス（N-4-シアナト-2-メチルフェニル）-4, 4'-（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタルイミド、トリス（3, 5-ジメチル-4-シアナトベンジル）イソシアヌレート、2-フェニル-3, 3-ビス（4-シアナトフェニル）フタルイミジン、2-（4-メチルフェニル）-3, 3-ビス（4-シアナトフェニル）フタルイミジン、2-フェニル-3, 3-ビス（4-シアナト-3-メチルフェニル）フタルイミジン、1-メチル-3, 3-ビス（4-シアナトフェニル）インドリン-2-オン、及び、2-フェニル-3, 3-ビス（4-シアナトフェニル）インドリン-2-オンが挙げられる。

[0034] また、上記式（2）で表される化合物の別の具体例としては、以下に限定されないが、フェノールノボラック樹脂及びクレゾールノボラック樹脂（公知の方法により、フェノール、アルキル置換フェノール又はハロゲン置換フェノールと、ホルマリンやパラホルムアルデヒドなどのホルムアルデヒド化合物とを、酸性溶液中で反応させたもの）、トリスフェノールノボラック樹脂（ヒドロキシベンズアルデヒドとフェノールとを酸性触媒の存在下に反応させたもの）、フルオレンノボラック樹脂（フルオレノン化合物と9, 9-ビス（ヒドロキシアリール）フルオレン類を酸性触媒の存在下に反応させたもの）、フェノールアラルキル樹脂、クレゾールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂及びビフェニルアラルキル樹脂（公知の方法により、 $Ar_4 - (CH_2Y)_2$ （ Ar_4 はフェニル基を示し、 Y はハロゲン原子を示す。以下、この段落において同様。）で表されるようなビスハロゲノメチル化合物とフェノール化合物とを酸性触媒若しくは無触媒で反応させたもの、 $Ar_4 - (CH_2OR)_2$ で表されるようなビス（アルコキシメチル）化合物とフェノール化合物とを酸性触媒の存在下に反応させたもの、又は、 $Ar_4 - (CH_2OH)_2$ で表されるようなビス（ヒドロキシメチル）化合物とフェノール化合物とを酸性触媒の存在下に反応させたもの、あるいは、芳香族アルデヒド化合物

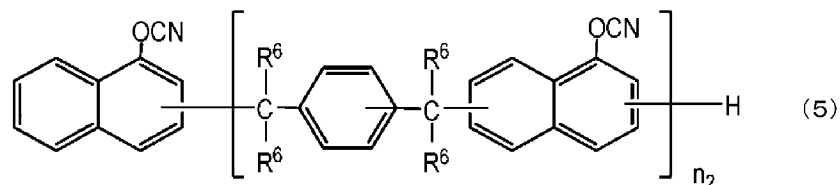
とアラルキル化合物とフェノール化合物とを重縮合させたもの)、フェノール変性キシレンホルムアルデヒド樹脂(公知の方法により、キシレンホルムアルデヒド樹脂とフェノール化合物とを酸性触媒の存在下に反応させたもの)、変性ナフタレンホルムアルデヒド樹脂(公知の方法により、ナフタレンホルムアルデヒド樹脂とヒドロキシ置換芳香族化合物を酸性触媒の存在下に反応させたもの)、フェノール変性ジシクロペンタジエン樹脂、ポリナフチレンエーテル構造を有するフェノール樹脂(公知の方法により、フェノール性ヒドロキシ基を1分子中に2つ以上有する多価ヒドロキシナフタレン化合物を、塩基性触媒の存在下に脱水縮合させたもの)等のフェノール樹脂を、公知の方法によりシアネート化したもの等、並びにこれらのプレポリマー等が挙げられる。

[0035] 上記したシアン酸エステル化合物(B)は、1種を単独で又は2種以上を混合して用いることができる。

[0036] この中でも、フェノールノボラック型シアン酸エステル化合物、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、ビフェニルアラルキル型シアン酸エステル化合物、ナフチレンエーテル型シアン酸エステル化合物、キシレン樹脂型シアン酸エステル化合物、アダマンタン骨格型シアン酸エステル化合物が好ましく、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物が特に好ましい。

[0037] ナフトールアラルキル型シアン酸エステルの具体例としては、式(5)で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステルが挙げられる。このようなナフトールアラルキル型シアン酸エステルを用いることにより、熱膨張係数がより低い硬化物が得られる傾向にある。

[0038] [化11]



(式(5)中、R⁶は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、このなか

でも水素原子が好ましい。また、式中、 n_2 は1以上の整数を表す。 n_2 の上限値は、通常は10であり、好ましくは6である。)

[0039] シアン酸エステル化合物(B)の含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、熱膨張係数がより低い硬化物を得る観点から、樹脂固形分100質量部に対し、1~90質量部が好ましく、より好ましくは30~70質量部であり、さらに好ましくは40~60質量部である。

[0040] [充填材(C)]

本実施形態の樹脂組成物は、熱膨張特性、寸法安定性、難燃性、熱伝導率、誘電特性などの観点から、充填材(C)をさらに含有することが好ましい。充填材(C)としては、公知のものを適宜使用することができ、その種類は特に限定されない。特に、積層板用途において一般に使用されている充填材を、充填材(C)として好適に用いることができる。充填材(C)の具体例としては、天然シリカ、溶融シリカ、合成シリカ、アモルファスシリカ、アエロジル、中空シリカ等のシリカ類、ホワイトカーボン、チタンホワイト、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム等の酸化物、窒化ホウ素、凝集窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、水酸化アルミニウム加熱処理品(水酸化アルミニウムを加熱処理し、結晶水の一部を減じたもの)、ベーマイト、水酸化マグネシウム等の金属水和物、酸化モリブデンやモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物、ホウ酸亜鉛、錫酸亜鉛、アルミナ、クレー、カオリン、タルク、焼成クレー、焼成カオリン、焼成タルク、マイカ、E-ガラス、A-ガラス、NE-ガラス、C-ガラス、L-ガラス、D-ガラス、S-ガラス、M-ガラスG20、ガラス短繊維(Eガラス、Tガラス、Dガラス、Sガラス、Qガラス等のガラス微粉末類を含む。)、中空ガラス、球状ガラスなど無機系の充填材の他、スチレン型、ブタジエン型、アクリル型などのゴムパウダー、コアシェル型のゴムパウダー、並びにシリコーンレジンパウダー、シリコーンゴムパウダー、シリコーン複合パウダーなど有機系の充填材などが挙げられる。

これらの充填材は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

これらの中でも、シリカ、水酸化アルミニウム、ベーマイト、酸化マグネシウム及び水酸化マグネシウムからなる群から選択される1種又は2種以上が好適である。これらの充填材を使用することで、樹脂組成物の熱膨張特性、寸法安定性、難燃性などの特性がより向上する傾向にある。

[0041] 本実施形態の樹脂組成物における充填材(C)の含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、樹脂組成物の成形性の観点から、樹脂固形分を100質量部とした場合、50~1600質量部とすることが好ましく、より好ましくは50~750質量部であり、さらに好ましくは50~300質量部であり、特に好ましくは50~200質量部である。

[0042] ここで充填材(C)を樹脂組成物に含有させるにあたり、シランカップリング剤や湿潤分散剤を併用することが好ましい。シランカップリング剤としては、一般に無機物の表面処理に用いられるものを好適に用いることができ、その種類は特に限定されない。シランカップリング剤として、具体的には、以下に限定されないが、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシランなどのアミノシラン系、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシランなどのエポキシシラン系、 γ -メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリ(β -メトキシエトキシ)シランなどのビニルシラン系、N- β -(N-ビニルベンジルアミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン塩酸塩などのカチオニックシラン系、並びにフェニルシラン系が挙げられる。シランカップリング剤は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。また、湿潤分散剤としては、一般に塗料用に用いられているものを好適に用いることができ、その種類は特に限定されない。湿潤分散剤としては、好ましくは、共重合体ベースの湿潤分散剤が用いられ、市販品であって

もよい。市販品の具体例としては、以下に限定されないが、ビックケミー・ジャパン（株）製のD i s p e r b y k - 1 1 0、1 1 1、1 6 1、1 8 0、B Y K - W 9 9 6、B Y K - W 9 0 1 0、B Y K - W 9 0 3、B Y K - W 9 4 0などが挙げられる。湿潤分散剤は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0043] [その他の成分]

さらに、本実施形態の樹脂組成物においては、所期の特性が損なわれない範囲において、上記式（1）で表されるエポキシ樹脂（A）以外のエポキシ樹脂（以下、「他のエポキシ樹脂」という。）、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、重合可能な不飽和基を有する化合物等をさらに含有していてもよい。これらを併用することで、樹脂組成物を硬化して得られる硬化物の難燃性、低誘電性などの所望する特性が向上する傾向にある。

[0044] (他のエポキシ樹脂)

他のエポキシ樹脂としては、式（1）で表されるものでなく、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れば、公知のものを適宜使用することができ、その種類は特に限定されない。具体的には、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールE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、フェノ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、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、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型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、多官能フェノール型エポキシ樹脂、ナフトレン型エポキシ樹脂、アントラセン型エポキシ樹脂、ナフトレン骨格変性ノボラック型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ポリオール型エポキシ樹脂、リン含有エポキシ樹脂、グリシジルアミン、グリシジルエステル、ブタジ

エンなどの二重結合をエポキシ化した化合物、水酸基含有シリコーン樹脂類とエピクロルヒドリンとの反応により得られる化合物などが挙げられる。これらのエポキシ樹脂のなかでは、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、多官能フェノール型エポキシ樹脂、ナフトレン型エポキシ樹脂が難燃性、耐熱性の面で好ましい。これらのエポキシ樹脂は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0045] (マレイミド化合物)

マレイミド化合物としては、1分子中に1個以上のマレイミド基を有する化合物であれば、一般に公知のものを使用できる。例えば、4,4-ジフェニルメタンビスマレイミド、フェニルメタンマレイミド、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、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、1,6-ビスマレイミド-(2,2,4-トリメチル)ヘキサン、4,4-ジフェニルエーテルビスマレイミド、4,4-ジフェニルスルホンビスマレイミド、1,3-ビス(3-マレイミドフェノキシ)ベンゼン、1,3-ビス(4-マレイミドフェノキシ)ベンゼン、ポリフェニルメタンマレイミド、ノボラック型マレイミド、ビフェニルアラルキル型マレイミド、及びこれらマレイミド化合物のプレポリマー、もしくはマレイミド化合物とアミン化合物のプレポリマー等が挙げられるが、特に限定されるものではない。これらのマレイミド化合物は、1種又は2種以上混合して用いることができる。この中でも、ノボラック型マレイミド化合物、ビフェニルアラルキル型マレイミド化合物が特に好ましい。

[0046] (フェノール樹脂)

フェノール樹脂としては、1分子中に2個以上のヒドロキシ基を有するフェノール樹脂であれば、一般に公知のものを使用できる。その具体例としては、ビスフェノールA型フェノール樹脂、ビスフェノールE型フェノール樹脂、ビスフェノールF型フェノール樹脂、ビスフェノールS型フェノール樹脂

脂、フェノールノボラック樹脂、ビスフェノールAノボラック型フェノール樹脂、グリシジルエステル型フェノール樹脂、アラルキルノボラック型フェノール樹脂、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、クレゾールノボラック型フェノール樹脂、多官能フェノール樹脂、ナフトール樹脂、ナフトールノボラック樹脂、多官能ナフトール樹脂、アントラセン型フェノール樹脂、ナフタレン骨格変性ノボラック型フェノール樹脂、フェノールアラルキル型フェノール樹脂、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、ビフェニル型フェノール樹脂、脂環式フェノール樹脂、ポリオール型フェノール樹脂、リン含有フェノール樹脂、水酸基含有シリコン樹脂類等が挙げられるが、特に限定されるものではない。これらのフェノール樹脂の中では、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂、リン含有フェノール樹脂、水酸基含有シリコン樹脂が難燃性の点で好ましい。これらのフェノール樹脂は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせ用いることができる。

[0047] (オキセタン樹脂)

オキセタン樹脂としては、一般に公知のものを使用できる。例えば、オキセタン、2-メチルオキセタン、2,2-ジメチルオキセタン、3-メチルオキセタン、3,3-ジメチルオキセタン等のアルキルオキセタン、3-メチル-3-メトキシメチルオキセタン、3,3-ジ(トリフルオロメチル)パーフルオキセタン、2-クロロメチルオキセタン、3,3-ビス(クロロメチル)オキセタン、ビフェニル型オキセタン、OXT-101(東亜合成製商品名)、OXT-121(東亜合成製商品名)等が挙げられるが、特に限定されるものではない。これらのオキセタン樹脂は、1種又は2種以上混合して用いることができる。

[0048] (ベンゾオキサジン化合物)

ベンゾオキサジン化合物としては、1分子中に2個以上のジヒドロベンゾオキサジン環を有する化合物であれば、一般に公知のものを用いることができる。例えば、ビスフェノールA型ベンゾオキサジンBA-BXZ(小西化

学製商品名)ビスフェノールF型ベンゾオキサジンBF-BXZ(小西化学製商品名)、ビスフェノールS型ベンゾオキサジンBS-BXZ(小西化学製商品名)、P-d型ベンゾオキサジン(四国化成工業製商品名)、F-a型ベンゾオキサジン(四国化成工業製商品名)等が挙げられるが、特に限定されるものではない。これらのベンゾオキサジン化合物は、1種又は2種以上混合して用いることができる。

[0049] (重合可能な不飽和基を有する化合物)

重合可能な不飽和基を有する化合物としては、一般に公知のものを使用できる。例えば、エチレン、プロピレン、スチレン、ジビニルベンゼン、ジビニルビフェニル等のビニル化合物、メチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパンジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート等の1価又は多価アルコールの(メタ)アクリレート類、ビスフェノールA型エポキシ(メタ)アクリレート、ビスフェノールF型エポキシ(メタ)アクリレート等のエポキシ(メタ)アクリレート類、及びベンゾシクロブテン樹脂、が挙げられるが、特に限定されるものではない。これらの不飽和基を有する化合物は、1種又は2種以上混合して用いることができる。なお、上記「(メタ)アクリレート」は、アクリレート及びそれに対応するメタクリレートを包含する概念である。

[0050] (硬化促進剤)

また、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、硬化速度を適宜調節するための硬化促進剤を含有していてもよい。この硬化促進剤としては、シアン酸エステル化合物やエポキシ樹脂等の硬化促進剤として一般に使用されているものを好適に用いることができ、その種類は特に限定されない。硬化促進剤の具体例としては、オクチル酸亜鉛、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバ

ルト、ナフテン酸銅、アセチルアセトン鉄、オクチル酸ニッケル、オクチル酸マンガン等の有機金属塩類、フェノール、キシレノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、オクチルフェノール、ノニルフェノール等のフェノール化合物、1-ブタノール、2-エチルヘキサノール等のアルコール類、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、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-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール等のイミダゾール類及びこれらのイミダゾール類のカルボン酸若しくはその酸無水類の付加体等の誘導体、ジシアンジアミド、ベンジルジメチルアミン、4-メチル-N,N-ジメチルベンジルアミン等のアミン類、ホスフィン系化合物、ホスフィンオキサイド系化合物、ホスホニウム塩系化合物、ダイホスフィン系化合物等のリン化合物、エポキシイミダゾールアダクト系化合物、ベンゾイルパーオキサイド、p-クロロベンゾイルパーオキサイド、ジ-t-ブチルパーオキサイド、ジイソプロピルパーオキシカーボネート、ジ-2-エチルヘキシルパーオキシカーボネート等の過酸化物、又はアゾビスイソブチロニトリル等のアゾ化合物が挙げられる。硬化促進剤は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

硬化促進剤の使用量は、樹脂の硬化度や樹脂組成物の粘度等を考慮して適宜調整でき、特に限定されない。硬化促進剤の使用量は、樹脂組成物中の樹脂固形分を100質量部に対し、0.005~10質量部であってもよい。

[0051] (他の添加剤)

さらに、本実施形態の樹脂組成物は、所期の特性が損なわれない範囲において、他の熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂及びそのオリゴマー、エラストマー類などの種々の高分子化合物、難燃性化合物、並びに各種添加剤等を併用することができる。これらは一般に使用されているものであれば、特に限定されるものではない。難燃性化合物の具体例としては、以下に限定されないが

、4, 4'-ジブロモビフェニル等の臭素化合物、リン酸エステル、リン酸メラミン、リン含有エポキシ樹脂、メラミン及びベンゾグアナミンなどの窒素化合物、オキサジン環含有化合物、並びに、シリコーン系化合物等が挙げられる。また、各種添加剤としては、以下に限定されないが、例えば、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光重合開始剤、蛍光増白剤、光増感剤、染料、顔料、増粘剤、流動調整剤、滑剤、消泡剤、分散剤、レベリング剤、光沢剤、重合禁止剤等が挙げられる。これらは、所望に応じて1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0052] (有機溶剤)

なお、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、有機溶剤を含有することができる。この場合、本実施形態の樹脂組成物は、上述した各種樹脂成分の少なくとも一部、好ましくは全部が有機溶剤に溶解又は相溶した態様（溶液又はワニス）として用いることができる。有機溶剤としては、上述した各種樹脂成分の少なくとも一部、好ましくは全部を溶解又は相溶可能なものであれば、公知のものを適宜用いることができ、その種類は特に限定されるものではない。有機溶剤の具体例としては、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、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メチルエーテルアセテート等のセロソルブ系溶媒、乳酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソアミル、メトキシプロピオン酸メチル、ヒドロキシイソ酪酸メチル等のエステル系溶媒、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド等のアミド類などの極性溶剤類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素等の無極性溶剤が挙げられる。これらは、1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0053] 本実施形態の樹脂組成物は、常法にしたがって調製することができ、式(1)で表されるエポキシ樹脂(A)及びシアン酸エステル化合物(B)、上述したその他の任意成分を均一に含有する樹脂組成物が得られる方法であれば、その調製方法は特に限定されない。例えば、式(1)で表されるエポキ

シ樹脂（A）及びシアン酸エステル化合物（B）を順次溶剤に配合し、十分に攪拌することで本実施形態の樹脂組成物を容易に調製することができる。

[0054] なお、樹脂組成物の調製時に、各成分を均一に溶解或いは分散させるための公知の処理（攪拌、混合、混練処理など）を行うことができる。例えば、充填材（C）の均一分散にあたり、適切な攪拌能力を有する攪拌機を付設した攪拌槽を用いて攪拌分散処理を行うことで、樹脂組成物に対する分散性が高められる。上記の攪拌、混合、混練処理は、例えば、ボールミル、ビーズミルなどの混合を目的とした装置、または、公転・自転型の混合装置などの公知の装置を用いて適宜行うことができる。

[0055] 本実施形態の樹脂組成物は、以下に限定されないが、例えば、プリプレグ、金属箔張積層板、プリント配線板、樹脂シート、及び半導体パッケージの構成材料として用いることができる。例えば、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を基材に含浸又は塗布し乾燥することでプリプレグを得ることができる。

また、基材として剥離可能なプラスチックフィルムを用い、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、そのプラスチックフィルムに塗布し乾燥することでビルドアップ用フィルム又はドライフィルムソルダーレジストを得ることができる。ここで、溶剤は、20℃～150℃の温度で1～90分間乾燥することで乾燥できる。

また、本実施形態の樹脂組成物は溶剤を乾燥しただけの未硬化の状態で使用することもできるし、必要に応じて半硬化（Bステージ化）の状態にして使用することもできる。

[0056] 以下、本実施形態のプリプレグについて詳述する。本実施形態のプリプレグは、基材と、該基材に含浸又は塗布された上記樹脂組成物とを有するものである。本実施形態のプリプレグの製造方法は、本実施形態の樹脂組成物と基材とを組み合わせることでプリプレグを製造する方法であれば、特に限定されない。具体的には、本実施形態の樹脂組成物を基材に含浸又は塗布させた後、120～220℃の乾燥機中で、2～15分程度乾燥させる方法等によって

半硬化させることで、本実施形態のプリプレグを製造することができる。このとき、基材に対する樹脂組成物の付着量、すなわち半硬化後のプリプレグの総量に対する樹脂組成物の含有量（充填材（C）を含む。）は、20～99質量%の範囲であることが好ましい。

[0057] 本実施形態のプリプレグを製造する際に用いられる基材としては、各種プリント配線板材料に用いられている公知のものであってもよい。そのような基材としては、例えば、Eガラス、Dガラス、Lガラス、Sガラス、Tガラス、Qガラス、UNガラス、NEガラス、球状ガラス等のガラス繊維、クォーツ等のガラス以外の無機繊維、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル等の有機繊維、液晶ポリエステル等の織布が挙げられるが、これらに特に限定されるものではない。基材の形状としては、織布、不織布、ロービング、チョップドストランドマット、及びサーフェシングマット等が知られており、これらのいずれであってもよい。基材は、1種を単独で又は2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。織布の中では、特に超開織処理や目詰め処理を施した織布が、寸法安定性の観点から好適である。さらに、エポキシシラン処理、又はアミノシラン処理などのシランカップリング剤などで表面処理したガラス織布は吸湿耐熱性の観点から好ましい。また、液晶ポリエステル織布は、電気特性の面から好ましい。さらに、基材の厚さは、特に限定されないが、積層板用途であれば、0.01～0.2mmの範囲が好ましい。

[0058] 本実施形態の金属箔張積層板は、少なくとも1枚以上積層された上述のプリプレグと、そのプリプレグの片面又は両面に配された金属箔とを有するものである。具体的には、前述のプリプレグ1枚に対して、又はプリプレグを複数枚重ねたものに対して、その片面又は両面に銅やアルミニウムなどの金属箔を配置して、積層成形することにより作製することができる。ここで用いられる金属箔は、プリント配線板材料に用いられているものであれば、特に限定されないが、圧延銅箔及び電解銅箔等の銅箔が好ましい。また、金属箔の厚さは、特に限定されないが、2～70 μ mであると好ましく、3～3

5 μm であるとより好ましい。成形条件としては、通常のプリント配線板用積層板及び多層板の作製時に用いられる手法を採用できる。例えば、多段プレス機、多段真空プレス機、連続成形機、又はオートクレーブ成形機などを用い、温度180～350℃、加熱時間100～300分、面圧20～100 kg/cm²の条件で積層成形することにより本実施形態の金属箔張積層板を製造することができる。また、上記のプリプレグと、別途作製した内層用の配線板とを組み合わせる積層成形することにより、多層板を作製することもできる。多層板の製造方法としては、例えば、上述したプリプレグ1枚の両面に35 μm の銅箔を配置し、上記条件にて積層形成した後、内層回路を形成し、この回路に黒化処理を実施して内層回路板を形成する。さらに、この内層回路板と上記のプリプレグとを交互に1枚ずつ配置し、さらに最外層に銅箔を配置して、上記条件にて好ましくは真空下で積層成形する。こうして、多層板を作製することができる。

[0059] 本実施形態の金属箔張積層板は、更にパターン形成することにより、プリント配線板として好適に用いることができる。プリント配線板は、常法に従って製造することができ、その製造方法は特に限定されない。以下、プリント配線板の製造方法の一例を示す。まず、上述した金属箔張積層板を用意する。次に、金属箔張積層板の表面にエッチング処理を施して内層回路を形成することにより、内層基板を作製する。この内層基板の内層回路表面に、必要に応じて接着強度を高めるための表面処理を施し、次いで、その内層回路表面に上述したプリプレグを所要枚数重ねる。さらに、その外側に外層回路用の金属箔を積層し、加熱加圧して一体成形する。このようにして、内層回路と外層回路用の金属箔との間に、基材及び熱硬化性樹脂組成物の硬化物からなる絶縁層が形成された多層の積層板が製造される。次いで、この多層の積層板にスルーホールやバイアホール用の穴あけ加工を施した後、この穴の壁面に内層回路と外層回路用の金属箔とを導通させるめっき金属皮膜を形成する。さらに、外層回路用の金属箔にエッチング処理を施して外層回路を形成することで、プリント配線板が製造される。

[0060] 上記の製造例で得られるプリント配線板は、絶縁層と、この絶縁層の表面に形成された導体層とを有し、絶縁層が上述した本実施形態の樹脂組成物を含む構成となる。すなわち、上述した本実施形態のプリプレグ（基材及びこれに含浸又は塗布された本実施形態の樹脂組成物）、上述した本実施形態の金属箔張積層板の樹脂組成物の層（本実施形態の樹脂組成物からなる層）が、本実施形態の樹脂組成物を含む絶縁層から構成されることになる。

[0061] 本実施形態の樹脂シートは、支持体と、その支持体の表面に配された、上記樹脂組成物の層とを含む樹脂シート（積層シート）を指すだけでなく、積層シートから支持体を取り除いた樹脂組成物層のみ（単層シート）も本実施形態の樹脂シートに該当する。すなわち、本実施形態の樹脂シートは、本実施形態の樹脂組成物を有するものである。

上記の積層シートは、上記の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を支持体に塗布し乾燥することで得ることができる。ここで用いる支持体としては、特に限定されないが、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、エチレンテトラフルオロエチレン共重合体フィルム、並びにこれらのフィルムの表面に離型剤を塗布した離型フィルム、ポリイミドフィルム等の有機系のフィルム基材、銅箔、アルミ箔等の導体箔、ガラス板、SUS板、FRP等の板状の無機系のフィルムが挙げられる。塗布方法としては、例えば、上記の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、バーコーター、ダイコーター、ドクターブレード、ベーカーアプリアケーター等で支持体上に塗布することで、支持体と樹脂組成物層が一体となった積層シートを作製する方法が挙げられる。また、塗布後、さらに乾燥して得られる樹脂シートから支持体を剥離又はエッチングすることで、単層シートを得ることもできる。なお、上記の本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解又は相溶させた溶液を、シート状のキャビティを有する金型内に供給し乾燥する等してシート状に成形することで、支持体を用いることなく単層シートを得ることもできる。

[0062] なお、本実施形態の樹脂シート又は単層シートの作製において、溶剤を除

去する際の乾燥条件は、特に限定されないが、 20°C ～ 200°C の温度で1～90分間乾燥させることが好ましい。 20°C 以上であると樹脂組成物中への溶剤の残存をより防止でき、 200°C 以下であると樹脂組成物の硬化の進行を抑制することができる。また、本実施形態の樹脂シート又は単層シートにおける樹脂層の厚さは、本実施形態の樹脂組成物の溶液の濃度と塗布厚さにより調整することができ、特に限定されない。ただし、その厚さは $0.1\sim 500\mu\text{m}$ であると好ましい。樹脂層の厚さが $500\mu\text{m}$ 以下であると、乾燥時に溶剤が更に残り難くなる。

実施例

[0063] 以下、本実施形態を実施例及び比較例を用いてより具体的に説明する。本実施形態は、以下の実施例によって何ら限定されるものではない。

[0064] (合成例1) シアン酸エステル化合物の合成

1-ナフトールアラルキル樹脂(新日鉄住金化学(株)製)300g(OH基換算 1.28mol)及びトリエチルアミン194.6g(1.92mol)(ヒドロキシ基 1mol に対して 1.5mol)をジクロロメタン1800gに溶解させ、これを溶液1とした。

塩化シアン125.9g(2.05mol)(ヒドロキシ基 1mol に対して 1.6mol)、ジクロロメタン293.8g、36%塩酸194.5g(1.92mol)(ヒドロキシ基1モルに対して 1.5mol)、水1205.9gを、攪拌下、液温 $-2\sim -0.5^{\circ}\text{C}$ に保ちながら、溶液1を30分かけて注下した。溶液1注下終了後、同温度にて30分攪拌した後、トリエチルアミン65g(0.64mol)(ヒドロキシ基 1mol に対して 0.5mol)をジクロロメタン65gに溶解させた溶液(溶液2)を10分かけて注下した。溶液2注下終了後、同温度にて30分攪拌して反応を完結させた。

その後反応液を静置して有機相と水相を分離した。得られた有機相を水1300gで5回洗浄した。水洗5回目の廃水の電気伝導度が $5\mu\text{S}/\text{cm}$ であったことから、水による洗浄により、イオン性化合物を十分に除去できた

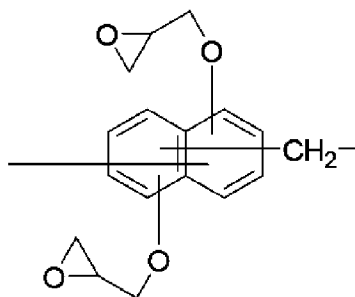
ことを確認した。

水洗後の有機相を減圧下で濃縮し、最終的に90℃で1時間濃縮乾固させて目的とするナフトールアラルキル型のシアン酸エステル化合物(SNCN)(橙色粘性物)を331g得た。得られたSNCNの質量平均分子量Mwは600であった。また、SNCNのIRスペクトルは 2250 cm^{-1} (シアン酸エステル基)の吸収を示し、且つ、ヒドロキシ基の吸収は示さなかった。

[0065] (実施例1)

合成例1により得られたSNCN50質量部、下記式(1-1)で表される繰り返し単位を有するエポキシ樹脂(DIC(株)製の「EPICLON EXA-4710H-70M」)50質量部、熔融シリカ(SC2050MB、アドマテックス(株)製)100質量部、オクチル酸亜鉛(日本化学産業(株)製)0.05質量部を混合してワニスを得た。このワニスをメチルエチルケトンで希釈し、厚さ0.1mmのEガラス織布に含浸塗工し、165℃で5分間加熱乾燥して、樹脂含有量50質量%のプリプレグを得た。なお、予め、EPICLON EXA-4710H-70Mを後述する分子量測定に供し、そのZ平均分子量を1810と特定した。

[0066] [化12]



(1-1)

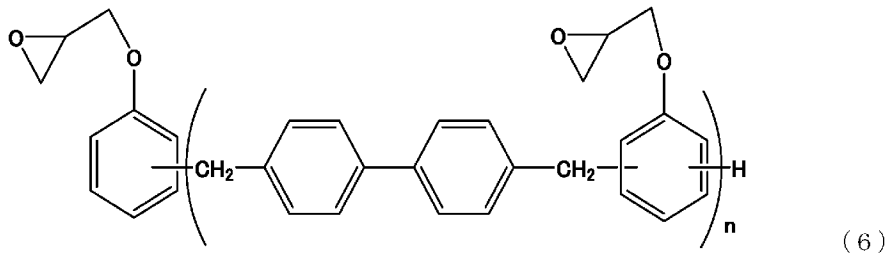
[0067] 得られたプリプレグを8枚、及び4枚重ねて、12 μm 厚の電解銅箔(3EC-M3-VLP、三井金属(株)製)を上下に配置し、圧力30kgf/cm²、温度220℃で120分間の積層成型を行い、絶縁層厚さ0.8mm及び0.4mmの金属箔張積層板を得た。得られた金属箔張積層板を用いて、後述する要領にて半田フロート試験及びガラス転移温度測定を行った。

結果を表 1 に示す。

[0068] (比較例 1)

実施例 1 において、式 (1) で表されるエポキシ樹脂を 50 質量部用いる代わりに、下記式 (6) で表されるビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂 (NC-3000-FH、日本化薬 (株) 製) 50 質量部を用い、オクチル酸亜鉛を 0.11 質量部とした以外は、実施例 1 と同様にして樹脂含有量 50 質量%のプリプレグを得た。さらに、実施例 1 と同様にして厚さ 0.8 mm、及び 0.4 mm の金属箔張積層板を得た。得られた金属箔張積層板の評価結果を表 1 に示す。

[0069] [化13]



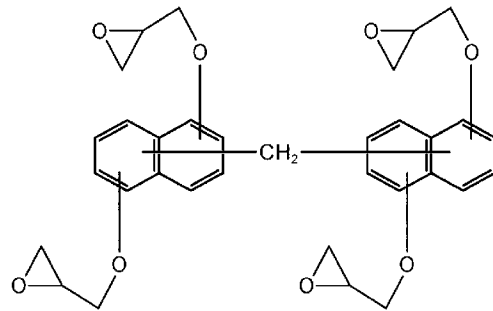
(式 (6) 中、n は 0 ~ 15 の整数を示す。)

[0070] (比較例 2)

実施例 1 において、式 (1) で表されるエポキシ樹脂を 50 質量部用いる代わりに、下記式 (7) で表されるナフタレン型エポキシ樹脂 (DIC (株) 製の「EPICLON HP-4710」) 50 質量部を用い、オクチル酸亜鉛を 0.10 質量部とした以外は、実施例 1 と同様にして樹脂含有量 50 質量%のプリプレグを得た。なお、予め、EPICLON HP-4710 を後述する分子量測定に供し、その Z 平均分子量を 1330 と特定した。さらに、実施例 1 と同様にして厚さ 0.8 mm、及び 0.4 mm の金属箔張積層板を得た。得られた金属箔張積層板の評価結果を表 1 に示す。

[0071]

[化14]



(7)

[0072] [測定方法及び評価方法]

(1) 分子量測定

約10mgのエポキシ樹脂を5mLのテトラヒドロフランに溶解させ、0.45μmのフィルターでろ過した溶液を試料とし、下記の条件にてゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)に供し、分子量分布を測定した。分子量校正曲線を介して得られたGPC曲線の各溶出位置の分子量を M_i とし、分子数を N_i として、Z平均分子量 M_z を次式により求めた。

$$M_z = \frac{\sum (N_i \cdot M_i^3)}{\sum (N_i \cdot M_i^2)}$$

(条件)

検出器：示差屈折率検出器（昭和電工製 RI-504）

カラム：東ソー株式会社製 TSK gel SuperHZ4000、SuperHZ2500、SuperHZ1000（各1本、長さ15cm×内径6.0mm）

溶媒：テトラヒドロフラン

流速：0.45mL/min

カラム温度：40℃

標準試料：東ソー株式会社製 単分散ポリスチレン

データ処理：TRC製 GPCデータ処理システム

[0073] (2) 半田フロート試験

得られた絶縁層厚さ0.4mmの金属箔張積層板50mm×50mmのサンプルを3つ用意し、300℃半田に30分間フロートさせて、外観異常（デラミネーション発生）の有無を目視判定により行った。異常が認められた

サンプルの数に基づき、下記の基準で評価した。

○：0個

△：1～2個

×：3個

[0074] (3) ガラス転移温度 (T_g)

得られた絶縁層厚さ0.8mmの銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ12.7mm×30mmに切断後、表面の銅箔をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを用い、JIS C6481に準拠して動的粘弾性分析装置 (TAインストルメント製) でDMA法により、貯蔵弾性率E'、損失弾性率E''を測定し、E''及びtan δ (=E''/E')のピークの値をそれぞれT_gとして耐熱性を評価した。

[0075] [表1]

半田フロート試験			実施例1	比較例1	比較例2
ガラス転移温度 [T _g]	E'	[°C]	348	250	283
	tan δ	[°C]	327	259	294

[0076] 本出願は、2017年8月31日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願 (特願2017-167497) 及び2017年11月1日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願 (特願2017-211967) に基づくものであり、それらの内容はここに参照として取り込まれる。

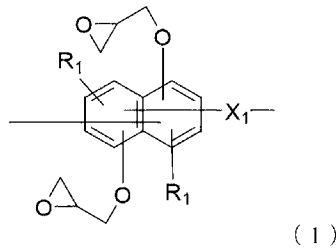
産業上の利用可能性

[0077] 本発明の樹脂組成物は、プリプレグ、金属箔張積層板、積層樹脂シート、樹脂シート、プリント配線板等の材料として、産業上の利用可能性を有する。

請求の範囲

[請求項1] 下記式（1）で表される繰り返し単位を有し、かつ、Z平均分子量が1400以上3000以下であるエポキシ樹脂（A）と、
シアン酸エステル化合物（B）と、
を含有する、樹脂組成物。

[化1]



（式（1）中、 X_1 は炭素数1～3のアルキレン基又はアルケニレン基を表し、 R_1 は各々独立に水素原子又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルケニル基を表す。）

[請求項2] 前記エポキシ樹脂（A）の含有量が、樹脂固形分100質量部に対し、1～90質量部である、請求項1に記載の樹脂組成物。

[請求項3] 前記式（1）で表されるエポキシ樹脂（A）以外のエポキシ樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、及び重合可能な不飽和基を有する化合物からなる群より選択される一種以上をさらに含有する、請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

[請求項4] 充填材（C）をさらに含有する、請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項5] 前記充填材（C）の含有量が、樹脂固形分100質量部に対し、50～1600質量部である、請求項4に記載の樹脂組成物。

[請求項6] 基材と、
前記基材に含浸又は塗布された、請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物と、
を有する、プリプレグ。

- [請求項7] 少なくとも1枚以上積層された請求項6に記載のプリプレグと、
前記プリプレグの片面又は両面に配された金属箔と、
を有する、金属箔張積層板。
- [請求項8] 請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物を有する、樹脂シ
ート。
- [請求項9] 絶縁層と、
前記絶縁層の表面に形成された導体層と、
を有し、
前記絶縁層が、請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物を
含む、プリント配線板。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/032130

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
Int.Cl. C08G59/32 (2006.01) i, B32B15/092 (2006.01) i, B32B27/38 (2006.01) i, C08G59/40 (2006.01) i, C08J5/24 (2006.01) i, C08L63/00 (2006.01) i, H05K1/03 (2006.01) i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl. C08G59/00-59/72, C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14, B32B1/00-43/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14, C08J5/04-5/10, C08J5/24, H05K1/03		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Published examined utility model applications of Japan		1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan		1971-2018
Registered utility model specifications of Japan		1996-2018
Published registered utility model applications of Japan		1994-2018
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 06-233486 A (HITACHI, LTD.) 19 August 1994, entire text (Family: none)	1-9
A	WO 2017/066929 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC, ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS LLC) 27 April 2017, entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2004-250584 A (DAINIPPON INK AND CHEMICALS INC.) 09 September 2004, entire text (Family: none)	1-9
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents:		
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"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
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	
Date of the actual completion of the international search 29.10.2018		Date of mailing of the international search report 13.11.2018
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/032130

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-323728 A (DAINIPPON INK AND CHEMICALS INC.) 18 November 2004, entire text (Family: none)	1-9
A	WO 2013/115069 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 08 August 2013, entire text & US 2015/0014032 A1, entire text & EP 2810971 A1	1-9
A	JP 2015-086329 A (PANASONIC INTELLECTUAL PROPERTY MANAGEMENT CO., LTD.) 07 May 2015, entire text & US 2016/0060429 A1, entire text & WO 2015/064064 A1 & CN 105492542 A	1-9
A	JP 2015-003982 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 08 January 2015, entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2015-196823 A (MITSUBISHI ELECTRIC CORPORATION) 09 November 2015, entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2016-219640 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 22 December 2016, entire text & KR 10-2016-0137410 A & TW 201708401 A	1-9
A	JP 2017-082201A (AJINOMOTO CO., INC.) 18 May 2017, entire text & KR 10-2017-0049448 A & CN 106912158 A & TW 201730300 A	1-9
A	JP 2017-128667 A (SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD., SUMITOMO ELECTRIC WINTEC INC.) 27 July 2017, entire text (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08G59/32(2006.01)i, B32B15/092(2006.01)i, B32B27/38(2006.01)i, C08G59/40(2006.01)i, C08J5/24(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H05K1/03(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08G59/00 - 59/72, C08K3/00 - 13/08, C08L1/00 - 101/14, B32B1/00 - 43/00, B29B11/16, B29B15/08 - 15/14, C08J5/04 - 5/10, C08J5/24, H05K1/03

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

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

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 06-233486 A (株式会社日立製作所) 1994.08.19, 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2017/066929 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC, ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS LLC) 2017.04.27, 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2004-250584 A (大日本インキ化学工業株式会社) 2004.09.09, 全文 (ファミリーなし)	1-9

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

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

国際調査を完了した日

29.10.2018

国際調査報告の発送日

13.11.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号 100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

松浦 裕介

4 J

5579

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2004-323728 A (大日本インキ化学工業株式会社) 2004. 11. 18, 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2013/115069 A1 (三菱瓦斯化学株式会社) 2013. 08. 08, 全文 & US 2015/0014032 A1, 全文 & EP 2810971 A1	1-9
A	JP 2015-086329 A (パナソニック I P マネジメント株式会社) 2015. 05. 07, 全文 & US 2016/0060429 A1, 全文 & WO 2015/064064 A1 & CN 105492542 A	1-9
A	JP 2015-003982 A (住友ベークライト株式会社) 2015. 01. 08, 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2015-196823 A (三菱電機株式会社) 2015. 11. 09, 全文 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2016-219640 A (住友ベークライト株式会社) 2016. 12. 22, 全文 & KR 10-2016-0137410 A & TW 201708401 A	1-9
A	JP 2017-082201 A (味の素株式会社) 2017. 05. 18, 全文 & KR 10-2017-0049448 A & CN 106912158 A & TW 201730300 A	1-9
A	JP 2017-128667 A (住友電気工業株式会社, 住友電工ウインテック株式会社) 2017. 07. 27, 全文 (ファミリーなし)	1-9