

(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10月5日(05.10.2023)



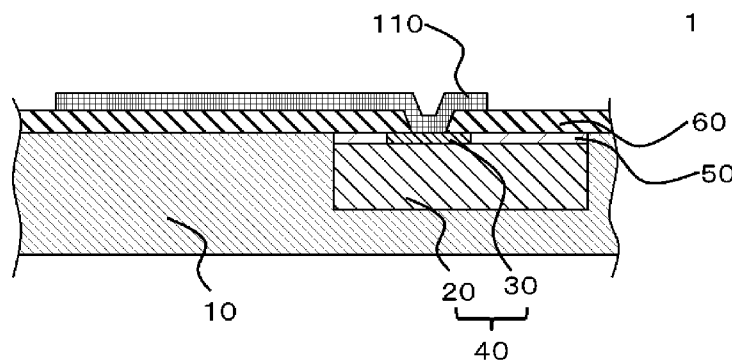
(10) 国際公開番号

WO 2023/190309 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 7/12 (2006.01) C08L 63/04 (2006.01)
C08K 3/013 (2018.01) C08L 71/10 (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01) C23C 26/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/012147
- (22) 国際出願日: 2023年3月27日(27.03.2023)
- (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 2022-055266 2022年3月30日(30.03.2022) JP
- (71) 出願人: 住友ベークライト株式会社(SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) [JP/JP];
〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 片山 敏彦 (KATAYAMA Toshihiko);
〒1400002 東京都品川区東品川2丁目5番8号
住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 速水 進治(HAYAMI Shinji); 〒1410031
東京都品川区西五反田7丁目9番2号 K
DX五反田ビル9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, 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,

(54) Title: SURFACE-MODIFIER RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 表面改質材用樹脂組成物



(57) Abstract: A surface-modifier resin composition which is for use in a process comprising a step in which the surface-modifier resin composition is adhered to a surface of a structure including a first region, which is made of a cured epoxy resin composition, and a step in which the surface-modifier resin composition is thereafter removed from the surface to thereby modify the surface, the surface-modifier resin composition including a phenoxy resin.

(57) 要約: エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、その後、表面から表面改質材用樹脂組成物を除去することにより表面を改質する工程と、を含むプロセスに用いられる表面改質材用樹脂組成物であって、当該表面改質材用樹脂組成物がフェノキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。



WO 2023/190309 A1

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：表面改質材用樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、表面改質材用樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器に対する小型化、軽量化および高機能化等への要求は、ますます高くなってきている傾向にある。これに伴い、電子機器に搭載される半導体パッケージについても、さらなる小型化や高密度化が要求されている。要求を満たす半導体パッケージを実現できる技術として、チップサイズよりも大きな再配線領域を設けることが可能なファンアウト型ウエハレベルパッケージ（以下、適宜、「ファンアウト型WLP」という。）に関する提案が、ここ数年で数多くなされている（特許文献1等）。

[0003] また、従来の代表的なファンアウト型WLPの製造プロセスにおいては、複数の半導体チップが封止材の内部に埋め込まれた構造体を作製した後、上記構造体における上記半導体チップに設けられた接続端子が配されている側の面上領域にワニス状の樹脂組成物を塗工することにより絶縁性樹脂膜を形成することが行われていた（特許文献1等）

[0004] また、上記封止材について、ファンアウト型WLPの製造プロセスにおける中間製品の取扱性の向上、ひいてはファンアウト型WLPの製造効率の向上を目的として、成形時に反りの生じにくい硬化物を作製できる封止用組成物に関する提案も数多くなされている（特許文献2等）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2014-236095号公報

特許文献2：国際公開第2020/255749号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 従来の製造プロセスにより得られたファンアウト型WLPは、例えば、半導体チップをエポキシ樹脂封止材などの樹脂組成物によって封止した構造体上、つまりエポキシ樹脂硬化体を含む構造体上に、絶縁性樹脂膜を形成したものである。

本発明者らは、上記の従来の製造プロセスにより得られたファンアウト型WLPについて検討した。その結果、この絶縁性樹脂膜の品質が、ファンアウト型WLPの信頼性に大きく影響を及ぼすことを見出した。

[0007] 従来の製造プロセスでは、上述のように絶縁性樹脂膜の原料である樹脂ワニスに構造体表面に塗工した後に、樹脂ワニス中に含まれる溶剤を乾燥させ、当該原料を硬化させる処理を経て絶縁性樹脂膜を形成する。

本発明者らは、上記処理において、構造体表面が樹脂ワニスによって十分に濡れている理想的な状態となっていないこと、特に極端な例では、樹脂ワニスに構造体表面にはじかれ、構造体表面に樹脂ワニスに十分に塗工できていない状態も発生することがあることを確認した。以上より、本発明者らは、ファンアウト型WLPの信頼性を向上させるためには、封止構造体上に形成される絶縁性樹脂膜の膜質を向上させることが重要であることを見いだした。

[0008] 以上を踏まえ、本発明は、エポキシ樹脂硬化体を含む構造体の表面に対して行われる処理の信頼性を向上させることを課題とした。

より具体的には、上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する処理を行う場合において、絶縁性樹脂膜の品質を向上させることを課題とした。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、以下に提供される発明を完成させ、上記課題を解決した。

[0010] [1]

エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、

その後、上記表面から上記表面改質材用樹脂組成物を除去することにより上記表面を改質する工程と、

を含むプロセスに用いられる上記表面改質材用樹脂組成物であって、

当該表面改質材用樹脂組成物がフェノキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[2]

上記 [1] に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記フェノキシ樹脂がビスフェノールA骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールA骨格とビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂からなる群より選択される1種または2種以上を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[3]

上記 [1] または [2] に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記フェノキシ樹脂の重量平均分子量 M_w が2,500以上120,000以下である、表面改質材用樹脂組成物。

[4]

上記 [1] ~ [3] のいずれか1つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

さらにエポキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[5]

上記 [4] に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記エポキシ樹脂が3官能以上のエポキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[6]

上記 [5] に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記エポキシ樹脂が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からなる群より選択される1種または2種以上を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[7]

上記 [1] ~ [6] のいずれか1つに記載の表面改質材用樹脂組成物にお

いて、

さらに界面活性剤を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[8]

上記 [1] ~ [7] のいずれか 1 つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

さらに溶剤を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[9]

上記 [1] ~ [8] のいずれか 1 つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記エポキシ樹脂組成物硬化体が、さらに無機充填材を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[1 0]

上記 [1] ~ [9] のいずれか 1 つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記プロセスが、さらに表面を改質した上記表面に対して、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体からなる群より選択される 1 種または 2 種以上を含む感光性樹脂組成物を付着させる工程を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[1 1]

上記 [1 0] に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する上記工程の前における上記第 1 領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第 1 領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 > \theta 2$ である、表面改質材用樹脂組成物。

[1 2]

上記 [1] ~ [1 1] のいずれか 1 つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記表面が、金属配線により形成された第2領域を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[13]

上記[12]に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する上記工程の前における上記第2領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第2領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 < \theta 2$ である、表面改質材用樹脂組成物。

[14]

上記[1]～[13]のいずれか1つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

非感光性である、表面改質材用樹脂組成物。

[15]

上記[1]～[14]のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

感光剤を実質的に含まない、表面改質材用樹脂組成物。

[16]

上記[1]～[15]のいずれか1つに記載の表面改質材用樹脂組成物において、

硬化剤を実質的に含まない、表面改質材用樹脂組成物。

[17]

上記[4]～[6]のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

(前記エポキシ樹脂の量/前記フェノキシ樹脂の量)が、質量基準で1～10である、表面改質材用樹脂組成物。

[18]

上記[1]～[17]のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物に

おいて、

電子デバイスの製造に用いられる、表面改質材用樹脂組成物。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、構造体表面の濡れ性を向上させ、エポキシ樹脂組成物硬化体を含む構造体の表面に対して行われる処理の信頼性を向上できる表面改質材用樹脂組成物が提供される。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本実施形態に係る電子デバイスの構成の一例を示す縦断面図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明の実施形態について、図面を参照しつつ、詳細に説明する。

図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

煩雑さを避けるため、(i)同一図面内に同一の構成要素が複数ある場合には、その1つのみに符号を付し、全てには符号を付さない場合がある。

すべての図面はあくまで説明用のものである。図面中の各部材の形状や寸法比などは、必ずしも現実の物品と対応しない。

[0014] 本明細書中、数値範囲の説明における「X～Y」との表記は、特に断らない限り、X以上Y以下のことを表す。例えば、「1～5質量%」とは「1質量%以上5質量%以下」を意味する。

[0015] 本明細書における基（原子団）の表記において、置換か無置換かを記していない表記は、置換基を有しないものと置換基を有するものの両方を包含するものである。例えば「アルキル基」とは、置換基を有しないアルキル基（無置換アルキル基）のみならず、置換基を有するアルキル基（置換アルキル基）をも包含するものである。

本明細書における「(メタ)アクリル」との表記は、アクリルとメタクリルの両方を包含する概念を表す。「(メタ)アクリレート」等の類似の表記についても同様である。

本明細書における「有機基」の語は、特に断りが無い限り、有機化合物か

ら1つ以上の水素原子を除いた原子団のことを意味する。例えば、「1価の有機基」とは、任意の有機化合物から1つの水素原子を除いた原子団のことを表す。

[0016] <表面改質材用樹脂組成物>

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、エポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、その後、上記表面から上記表面改質材用樹脂組成物を除去することにより上記表面を改質する工程と、を含むプロセスに用いられる上記表面改質材用樹脂組成物であって、当該表面改質材用樹脂組成物がフェノキシ樹脂を含む。

[0017] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を用いることにより、エポキシ樹脂組成物硬化体を含む構造体の表面に対して行われる処理の信頼性を向上させることができる。特に、上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する処理を行う場合において、絶縁性樹脂膜の品質を向上させることができる。

この理由については必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0018] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、フェノキシ樹脂を含む。

フェノキシ樹脂は、エポキシ樹脂の骨格を有するとともに、分子内に多数の水酸基（-OH）を有する。このため、エポキシ樹脂組成物硬化体を含む構造体の表面から表面改質材用樹脂組成物を除去したとき、極微量のフェノキシ樹脂が当該表面に強く束縛された状態で残存するものと考えられる。

[0019] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、溶剤による洗浄等により上記表面から十分に除去するのであるが、目視で確認できない程度の極微量のフェノキシ樹脂が当該表面との相互作用により強く吸着された状態で残存するものと考えられる。これにより、当該表面の性質が変化し、その後、当該表面に対して行われる処理、たとえば絶縁性樹脂膜の形成の信頼性が向上したと考えられる。本実施形態の表面改質材用樹脂組成物による処理を行うことにより、上記表面に形成される絶縁性樹脂膜は、マイクロボイドがなく、表面と

の界面において十分に密着し、その品質は格段に向上すると考えられる。

[0020] 以上の理由により、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、エポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、その後、上記表面から上記表面改質材用樹脂組成物を除去することにより上記表面を改質する工程と、を含むプロセスに用いられる。その結果、構造体表面に塗工した際の塗工ムラを抑制し、上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する処理を行う場合において、絶縁性樹脂膜の品質を向上できる。

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、好ましくは、半導体デバイス等の電子デバイスの製造に適用される。すなわち、上記構造体は、半導体デバイス等の電子デバイスの製造における部材でありうる。また、上記各プロセスは、半導体デバイス等の電子デバイスの製造工程の一部であり得る。

[0021] ここで、「付着する」とは、上記表面に本実施形態の表面改質材用樹脂組成物が接触することを意味し、その手段としては公知の方法のいずれも用いることができる。公知の方法としては、例えば、テーブルコート法、スピコート法、ディップコート法、ダイコート法、スプレーコート法、バーコート法、ロールコート法、カーテンフローコート法、スリットコート法、インクジェットコート法、ディスペンス法などを挙げることができる。これらは、構造体の形状やサイズ、生産性などを考慮して適宜選ばれる。

[0022] 以下、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物について、さらに詳細に説明する。

[0023] (フェノキシ樹脂)

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、フェノキシ樹脂を含む。これにより、表面改質材用樹脂組成物によって構造体の表面を表面改質した際に、構造体表面の濡れ性を向上させ、上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する処理を行う場合において、絶縁性樹脂膜の品質を向上できる。

なお、フェノキシ樹脂とは、狭義にはビスフェノール類とエピクロルヒドリンより合成されるポリヒドロキシポリエーテルであるが、本明細書では、

多官能エポキシ樹脂（例えば、ビスエポキシ化合物など）と多官能フェノール類とを重付加反応させて得られる高分子（広義のフェノキシ樹脂）もフェノキシ樹脂に含める。

[0024] フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールA骨格とビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂、ビフェニル型フェノキシ樹脂、ビスフェノールS骨格を含むフェノキシ樹脂、ビフェニル型フェノキシ樹脂とビスフェノールS骨格を含むフェノキシ樹脂等が挙げられる。この中でもビスフェノールA骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールA骨格とビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂からなる群より選択される1種または2種以上を含むことが好ましい。

このとき、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0025] また、フェノキシ樹脂は、分子鎖両末端または分子鎖内部にエポキシ基等の反応性基を有することが好ましい。フェノキシ樹脂中の反応性基は、エポキシ樹脂中のエポキシ基と架橋反応可能なものである。このようなフェノキシ樹脂を使用することにより、溶剤に対する溶解性が向上し、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を構造体表面へ付着する際の濡れ広がり性を向上させるほか、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0026] フェノキシ樹脂の重量平均分子量 M_w は、2,500以上120,000以下であることが好ましい。また、フェノキシ樹脂の重量平均分子量 M_w の下限値は、好ましくは2,500以上であり、より好ましくは2,750以上であり、特に好ましくは3,000以上である。フェノキシ樹脂の重量平均分子量 M_w が上記下限値以上であることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

さらに、フェノキシ樹脂の重量平均分子量 M_w の上限値は、好ましくは1

20,000以下であり、より好ましくは80,000以下であり、特に好ましくは60,000以下である。フェノキシ樹脂の重量平均分子量Mwが上記上限値以下であることにより、表面改質処理の際における濡れ広がり性が向上し、表面改質処理の作業性を向上させることができる。

そして、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるフェノキシ樹脂の含有量が上記下限値以上かつ上記上限値以下であることにより、表面改質処理後に構造体表面の濡れ性と表面改質処理の作業性とのバランスに優れた表面改質材用樹脂組成物を得ることができる。

[0027] フェノキシ樹脂の重量平均分子量Mwは、たとえばGPC測定により得られる標準ポリスチレン（PS）の検量線から求めた、ポリスチレン換算値を用いる。

測定条件は、たとえば以下の通りである。

東ソー社製ゲルパーミエーションクロマトグラフィー装置HLC-8320GPC

カラム：東ソー社製TSK-GEL Supermultipore HZ-M

検出器：液体クロマトグラム用RI検出器

測定温度：40℃

溶媒：THF

試料濃度：2.0mg/ミリリットル

[0028] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるフェノキシ樹脂の含有量の下限値としては、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物における全固形分の含有量を100質量部としたとき、好ましくは5質量部以上であり、より好ましくは10質量部以上であり、さらに好ましくは15質量部以上である。フェノキシ樹脂の含有量が上記下限値以上であることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

また、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるフェノキシ樹脂の含有量の上限値としては、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物における全固

形分の含有量を100質量部としたとき、好ましくは100質量部以下であり、より好ましくは50質量部以下であり、さらに好ましくは40質量部以下である。フェノキシ樹脂の含有量が上記上限値以下であることにより、表面改質処理の際における濡れ広がり性が向上し、表面改質処理の作業性を向上させることができる。

そして、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるフェノキシ樹脂の含有量が上記下限値以上かつ上記上限値以下であることにより、表面改質処理後に構造体表面の濡れ性と表面改質処理の作業性とのバランスに優れた表面改質材用樹脂組成物を得ることができる。

[0029] (エポキシ樹脂)

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、さらにエポキシ樹脂を含むことが好ましい。これにより、フェノキシ樹脂の溶剤溶解性を向上させ、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を構造体表面へ付着する際の濡れ広がり性を向上させるほか、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0030] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるエポキシ樹脂としては、例えば、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を用いることができる。エポキシ樹脂は、モノマー、オリゴマー、ポリマー全般を用いることができ、その分子量や分子構造は特に限定されない。

上記エポキシ樹脂としては、たとえば、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、クレゾールナフトール型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、ナフタレン骨格型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールFジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールSジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジル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、芳香族多官能エポキシ樹脂、脂肪族エポキシ樹脂、脂肪族多官能エポキシ樹脂

脂、脂環式エポキシ樹脂、多官能脂環式エポキシ樹脂などが挙げられる。エポキシ樹脂は、単独で用いても複数組み合わせ用いてもよい。

[0031] また、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるエポキシ樹脂としては、分子内に3官能以上の多官能エポキシ樹脂（つまり、1分子中にエポキシ基が3個以上を有する多官能エポキシ樹脂）を含むことが好ましい。これにより、フェノキシ樹脂との相溶性が向上し、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0032] 3官能以上の多官能エポキシ樹脂としては、例えば、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、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、およびテトラメチルビスフェノールF型エポキシ樹脂からなる群より選択される1種以上のエポキシ樹脂を含むことが好ましく、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からなる群より選択される1種または2種以上を含むことがより好ましい。これにより、フェノキシ樹脂との相溶性が向上し、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0033] 上記エポキシ樹脂の重量平均分子量（Mw）は、特に限定されないが、例えば、好ましくは300～3000であり、より好ましくは300～2000であり、さらに好ましくは300～1000である。比較的分子量のエポキシ樹脂を使用することで、フェノキシ樹脂との相溶性が向上し、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0034] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、上記エポキシ樹脂以外の他の熱硬化性樹脂を含有してよい。他の熱硬化性樹脂としては、例えば、ユリア（尿素）樹脂、メラミン樹脂等のトリアジン環を有する樹脂；不飽和ポリエステル樹脂；ビスマレイミド化合物等のマレイミド樹脂；ポリウレタン樹脂；ジアリルフタレート樹脂；シリコン系樹脂；ベンゾオキサジン樹脂；ポリイミド樹脂；ポリアミドイミド樹脂；ベンゾシクロブテン樹脂、ノボラック

型シアネート樹脂、ビスフェノールA型シアネート樹脂、ビスフェノールE型シアネート樹脂、テトラメチルビスフェノールF型シアネート樹脂等のシアネート樹脂等のシアネートエステル樹脂等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0035] (界面活性剤)

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、好ましくは、界面活性剤を含む。これにより、表面改質材用樹脂組成物の付着性を向上させ、構造体の表面改質効果をより効果的に発現させることができる。

界面活性剤としては、フッ素系界面活性剤、シリコーン系界面活性剤、アルキル系界面活性剤、アクリル系界面活性剤などが挙げられる。

別観点として、界面活性剤は、非イオン性であることが好ましい。非イオン性の界面活性剤の使用は、例えば、組成物中の他成分との非意図的な反応を抑え、組成物の保存安定性を高める点で好ましい。

[0036] 界面活性剤は、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含む界面活性剤を含むことが好ましい。これにより、表面改質材用樹脂組成物の塗布性を向上させ、構造体の表面改質効果をより効果的に発現させることができる。このような界面活性剤としては、例えば、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含むノニオン系界面活性剤であることが好ましい。界面活性剤として使用可能な市販品としては、例えば、DIC株式会社製の「メガファック」シリーズの、F-251、F-253、F-281、F-430、F-477、F-551、F-552、F-553、F-554、F-555、F-556、F-557、F-558、F-559、F-560、F-561、F-562、F-563、F-565、F-568、F-569、F-570、F-572、F-574、F-575、F-576、R-40、R-40-LM、R-41、R-94、スリーエム社製のFC4430やFC4432等の、フッ素を含有するオリゴマー構造の界面活性剤、株式会社ネオス製のフタージェント250、フタージェント251等のフッ素含有ノニオン系界面活性剤、ワッカー・ケミー社製のSILFOA

M（登録商標）シリーズ（例えばSD 100 TS、SD 670、SD 850、SD 860、SD 882）、ビックケミー社製のBYK-333、BYK-349、BYK-313、BYK-323等のシリコン系界面活性剤が挙げられる。

また、スリーエム社製のFC4430やFC4432、ビックケミー社製のBYK-333などが、好ましい界面活性剤として挙げることができる。

[0037] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物が界面活性剤を含む場合、1または2以上の界面活性剤を含むことができる。

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物が界面活性剤を含む場合、その含有量の下限値は、実施形態の表面改質材用樹脂組成物におけるフェノキシ樹脂を100質量部としたとき、好ましくは0.001質量部以上、より好ましくは0.005質量部以上である。界面活性剤の含有量が上記下限値以上であることにより、表面改質材用樹脂組成物の付着性を向上させることができる。

また、本実施形態における界面活性剤の含有量の上限値は好ましくは1質量部以下、より好ましくは0.5質量部以下である。界面活性剤の含有量が上記上限値以下であることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0038]（溶剤／組成物の性状）

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、好ましくは溶剤を含む。これにより、構造体表面に対する表面改質材用樹脂組成物の付着性を向上させ、構造体表面の改質を容易に行うことができる。

溶剤は、通常、有機溶剤を含む。上述の各成分を溶解または分散可能で、かつ、各構成成分と実質的に化学反応しないものである限り、有機溶剤は特に限定されない。

[0039] 有機溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、トルエン、プロピレングリコールメチルエチルエーテル、プロピレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコール1-モノメチルエーテル2-アセテート

、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、ベンジルアルコール、プロピレンカーボネート、エチレングリコールジアセテート、プロピレングリコールジアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールメチル- n -プロピルエーテル、酢酸ブチル、 γ -ブチロラクトン、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸ブチル等が挙げられる。これらは単独で用いられても複数組み合わせで用いられてもよい。

[0040] 本実施形態の表面改質材用樹脂組成物が溶剤を含む場合、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、通常、ワニス状である。より具体的には、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、好ましくは、少なくともフェノキシ樹脂およびエポキシ樹脂が、溶剤に溶解した、ワニス状の組成物である。本実施形態の表面改質材用樹脂組成物がワニス状であることにより、構造体表面への付着を容易に行うことができる。

[0041] 溶剤を用いる場合は、表面改質材用樹脂組成物中の全固形分（不揮発成分）の濃度が、好ましくは10～50質量%、より好ましくは20～45質量%となるように用いられる。この範囲とすることで、各成分を十分に溶解または分散させることができる。さらに、不揮発成分の含有量を調整することにより、表面改質材用樹脂組成物の粘度を適切に制御できる。

別観点として、表面改質材用樹脂組成物全体中の、フェノキシ樹脂およびエポキシ樹脂の割合は、好ましくは20～50質量%である。ある程度多量のフェノキシ樹脂およびエポキシ樹脂を用いることで、構造体表面の改質を行いやすい。

また、表面改質材用樹脂組成物がエポキシ樹脂を含む場合、（エポキシ樹脂の量／フェノキシ樹脂の量）は、質量基準で、好ましくは1～10、より好ましくは1.5～8、さらに好ましくは2～5である。このような比率でフェノキシ樹脂とエポキシ樹脂を併用することで、各樹脂に基づく効果が最大限に発揮されやすくなり、また、2種類の樹脂の併用による相乗効果を

一層得やすくなる。

[0042] (その他の成分)

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、上記の成分に加えて、必要に応じて、上掲の成分以外の成分を含んでもよい。そのような成分としては、例えば、水、シリカ等の充填材、増感剤、フィルム化剤等が挙げられる。

ちなみに、用途を踏まえると、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、通常、非感光性である。別の言い方として、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、感光剤を実質的に含まない（例えば全不揮発成分中1質量%以下）。

また、用途を踏まえると、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、通常、硬化剤を実質的に含まない（例えば全不揮発成分中1質量%以下）。

[0043] <構造体>

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を付着させる構造体は、表面にエポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む。換言すると、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、エポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に付着する用途に用いられる。

[0044] 以下、第1領域を形成するエポキシ樹脂組成物に含まれる各成分について説明する。

[0045] [第1領域]

(エポキシ樹脂)

本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物に用いることができるエポキシ樹脂としては、一般的に封止用のエポキシ樹脂組成物に使用される公知のエポキシ樹脂が挙げられる。公知のエポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール、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等のフェノール類及び／又は 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類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、ベンズアルデヒド

、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する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；例えばビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ビスフェノールA/D等のジグリシジルエーテル；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；フェノール類とジメトキシパラキシレン又はビス（メトキシメチル）ビフェニルから合成されるフェノールアラルキル型樹脂やビフェニレン骨格フェノールアラルキル型樹脂、ナフトールアラルキル型樹脂等アラルキル型樹脂のエポキシ化物；スチルベン型エポキシ樹脂；ハイドロキノ型エポキシ樹脂；フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロルヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロルヒドリンの反応により得られ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類の共縮合樹脂のエポキシ化物であるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂；トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；テルペン変性エポキシ樹脂；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；脂環族エポキシ樹脂；及びこれらのエポキシ樹脂をシリコーン、アクリロニトリル、ブタジエン、イソプレン系ゴム、ポリアミド系樹脂等により変性したエポキシ樹脂などが挙げられる。

[0046] 本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物中の全エポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂組成物全体に対して好ましくは5質量%以上であり、より好ましくは6質量%以上、さらに好ましくは7質量%以上である。

また、エポキシ樹脂組成物を用いて得られる構造体について、エポキシ樹脂組成物中の全エポキシ樹脂の含有量は、エポキシ樹脂組成物全体に対して好ましくは15質量%以下であり、より好ましくは14質量%以下、さらに好ましくは13質量%以下である。

[0047] 本実施形態において、エポキシ樹脂組成物中の全エポキシ樹脂のエポキシ当量は、好ましくは100g/eq以上であり、より好ましくは120g/

e q 以上であり、さらに好ましくは150 g / e q 以上である。

また、エポキシ樹脂組成物を用いて得られる構造体について、高温信頼性や耐リフロー性を向上させる観点から、エポキシ樹脂組成物中の全エポキシ樹脂のエポキシ当量は、好ましくは500 g / e q 以下であり、より好ましくは480 g / e q 以下であり、さらに好ましくは450 g / e q 以下である。

[0048] (硬化剤)

本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物に用いることができる硬化剤としては、一般的に封止用のエポキシ樹脂組成物に使用される公知の硬化剤が挙げられる。公知の硬化剤として具体的には、フェノール系硬化剤、アミン系硬化剤（アミノ基を有する硬化剤）などを挙げることができる。

[0049] フェノール系硬化剤としては、例えばフェノール、クレゾール、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類及び／又は 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類とホルムアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する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、トリフェニルメタン型フェノール樹脂やビフェニレン骨格含有多官能フェノール樹脂等の多官能フェノール樹脂、フェノール類及び／又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス（メトキシメチル）ビフェニルから合成されるビフェニレン骨格含有多官能フェノール樹脂等のフェノ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、テルペン変性フェノール樹脂が挙げられる。

[0050] アミン系硬化剤としては、エチレンジアミン、トリメチレンジアミン、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン等の炭素数2～20の直鎖脂肪族ジアミン、メタフェニレンジアミン、パラフェニレンジアミン、パラキシレンジアミン、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プロパン、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、4, 4'-ジアミノジシクロヘキサン、ビス(4-アミノフェニル)フェニルメタン、1, 5-ジアミノナフタレン、メタキシレンジアミン、パラキシレンジアミン、1, 1'-ビス(4-アミノフェニル)シクロヘキサン、ジシアノジアミド等を挙げることができる。

[0051] その他の硬化剤としては、ポリパラオキシスチレン等のポリオキシスチレン；ヘキサヒドロ無水フタル酸（HHPA）、メチルテトラヒドロ無水フタル酸（MTHPA）などの脂環族酸無水物、無水トリメリット酸（TMA）、無水ピロメリット酸（PMDA）、ベンゾフェノンテトラカルボン酸（BTDA）などの芳香族酸無水物などを含む酸無水物等；ポリサルファイド、チオエステル、チオエーテルなどのポリメルカプタン化合物；イソシアネートプレポリマー、ブロック化イソシアネートなどのイソシアネート化合物；カルボン酸含有ポリエステル樹脂などの有機酸類等を挙げることができる。

[0052] この中でも、本実施形態における構造体の密着性および高温信頼性の観点から、多官能型フェノール樹脂、フェノールアラルキル型フェノール樹脂のうち1種または2種を含むことが好ましく、トリフェニルメタン型フェノール樹脂またはビフェニレン骨格含有多官能フェノール樹脂を含むことがさらに好ましい。

これらは単独で用いてもよいし、2種以上を混合して用いてもよい。

[0053] 本実施形態において、エポキシ樹脂組成物中の硬化剤の含有量は、成形時において、優れた流動性を実現し、充填性や密着性の向上を図る観点から、エポキシ樹脂組成物全体に対して好ましくは1質量%以上であり、より好ましくは2質量%以上、さらに好ましくは3質量%以上である。

また、エポキシ樹脂組成物を用いて得られる構造体について、高温信頼性や耐リフロー性を向上させる観点から、エポキシ樹脂組成物中の硬化剤の含有量は、エポキシ樹脂組成物全体に対して好ましくは25質量%以下であり、より好ましくは15質量%以下、さらに好ましくは10質量%以下である。

[0054] （無機充填材）

無機充填材は、樹脂組成物の硬化に伴う吸湿量の増加や、強度の低下を低減する機能を有するものであり、当該分野で一般的に用いられる無機充填材を使用することができる。

[0055] 無機充填材としては、例えば、溶融シリカ、球状シリカ、結晶シリカ、アルミナ、窒化珪素および窒化アルミ等が挙げられ、これらの無機充填材は、単独でも混合して使用してもよい。

[0056] 無機充填材の平均粒径 D_{50} は、例えば $0.01\ \mu\text{m}$ 以上、 $150\ \mu\text{m}$ 以下とすることができる。

[0057] エポキシ樹脂組成物における無機充填材の量の下限值は、エポキシ樹脂組成物の全質量に対して、好ましくは60質量%以上であり、より好ましくは70質量%以上であり、さらに好ましくは80質量%以上である。下限値が上記範囲内であると、得られるエポキシ樹脂組成物の硬化に伴う吸湿量の増加や、強度の低下を、より効果的に低減することができ、したがって硬化物の耐半田クラック性をさらに改善することができる。

[0058] また、エポキシ樹脂組成物中の無機充填材の量の上限值は、エポキシ樹脂組成物の全質量に対して、好ましくは93質量%以下であり、より好ましくは91質量%以下であり、さらに好ましくは90質量%以下である。上限値が上記範囲内であると、得られるエポキシ樹脂組成物は良好な流動性を有するとともに、良好な成形性を備える。

[0059] なお、後述する、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物や、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛、三酸化アンチモン等の無機難燃剤を用いる場合には、これらの無機難燃剤と上記無機充填材の合計量を上記範囲内とすることが好ましい。

[0060] (その他の成分)

本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、硬化剤、エポキシ樹脂および無機充填材に加え、以下に示す成分を含み得る。

[0061] (硬化促進剤)

硬化促進剤は、エポキシ樹脂のエポキシ基と硬化剤の反応基との反応を促

進する機能を有するものであり、当該分野で一般に使用される硬化促進剤が用いられる。

[0062] 硬化促進剤の具体例としては、有機ホスフィン、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等のリン原子含有化合物；1，8-ジアザビシクロ（5，4，0）ウンデセン-7、ベンジルジメチルアミン、2-メチルイミダゾール等が例示されるアミジンや3級アミン、さらには上記アミジン、アミンの4級塩等の窒素原子含有化合物が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を組み合わせ用いることができる。これらのうち、硬化性の観点からはリン原子含有化合物が好ましく、また構造体を成形する際の流動性の観点では、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が特に好ましく、構造体を成形する際の連続成形における金型の汚染が軽度である点では、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等のリン原子含有化合物は特に好ましい。

[0063] エポキシ樹脂組成物で用いることができる有機ホスフィンとしては、例えばエチルホスフィン、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；トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリフェニルホスフィン等の第3ホスフィン；およびこれらの誘導体が挙げられる。

[0064] (カップリング剤)

カップリング剤は、エポキシ樹脂組成物中に無機充填材が含まれる場合に、エポキシ樹脂と無機充填材との密着性を向上させる機能を有するものであり、例えば、シランカップリング剤等が用いられる。

[0065] シランカップリング剤としては、各種のものを用いることができるが、アミノシランを用いるのが好ましい。これにより、エポキシ樹脂組成物の流動性および耐半田性を向上させることができる。

[0066] アミノシランとしては、特に限定されないが、例えば、 γ -アミノプロピ

ルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、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、N- β （アミノエチル） γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニル γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β （アミノエチル） γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-6-（アミノヘキシル）3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-（3-（トリメトキシシリルプロピル）-1, 3-ベンゼンジメタナミン等が挙げられる。

[0067] シランカップリング剤等のカップリング剤の配合割合の下限值としては、全エポキシ樹脂組成物中0.01質量%以上が好ましく、より好ましくは0.05質量%以上、特に好ましくは0.1質量%以上である。シランカップリング剤等のカップリング剤の配合割合の下限值が上記範囲内であれば、エポキシ樹脂と無機充填材との界面強度が低下することがなく、本実施形態のエポキシ樹脂組成物硬化体を用いた電子装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、シランカップリング剤等のカップリング剤の配合割合の上限値としては、全樹脂組成物中1質量%以下が好ましく、より好ましくは0.8質量%以下、特に好ましくは0.6質量%以下である。シランカップリング剤等のカップリング剤の配合割合の上限値が上記範囲内であれば、エポキシ樹脂と無機充填材との界面強度が低下することがなく、本実施形態のエポキシ樹脂組成物硬化体を用いた電子装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、シランカップリング剤等のカップリング剤の配合割合が上記範囲内であれば、エポキシ樹脂組成物硬化体の吸水性が増大することがなく、本実施形態のエポキシ樹脂組成物硬化体を用いた電子装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。

[0068]（無機難燃剤）

本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物において、無機難燃剤は、エポキシ樹脂組成物の難燃性を向上させる機能を有するものであり、一般に使用される無機難燃剤が用いられる。

- [0069] 具体的には、燃焼時に脱水、吸熱することによって燃焼反応を阻害する金属水酸化物や、燃焼時間の短縮することができる複合金属水酸化物が好ましく用いられる。
- [0070] 金属水酸化物としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化ジルコニアを挙げることができる。
- [0071] 複合金属水酸化物としては、2種以上の金属元素を含むハイドロタルサイト化合物であって、少なくとも一つの金属元素がマグネシウムであり、かつ、その他の金属元素がカルシウム、アルミニウム、スズ、チタン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、または亜鉛から選ばれる金属元素であればよく、そのような複合金属水酸化物としては、水酸化マグネシウム・亜鉛固溶体が市販品で入手が容易である。
- [0072] なかでも、密着性と高温信頼性のバランスの観点からは水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム・亜鉛固溶体が好ましい。
- [0073] 無機難燃剤は、単独で用いても、2種以上用いてもよい。また、密着性への影響を低減する目的から、シランカップリング剤等の珪素化合物やワックス等の脂肪族系化合物等で表面処理を行って用いてもよい。
- [0074] なお、本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物では上記無機難燃剤を使用することは差し支えないが、好ましくは無機難燃剤を125℃で20時間乾燥処理し、デシケータ内で冷却後の重量を初期重量として、200℃の高温槽に上記無機難燃剤を投入し、1000時間加熱処理、デシケータ内で冷却後の重量を処理後重量とした場合の初期重量に対する処理後の重量減少率が0.1重量%以上である難燃剤を使用しないことが好ましく、さらには無機難燃剤を使用せず、難燃性を有するレジンのみでエポキシ樹脂組成物を構成することが望ましい。
- [0075] また、上述したその他の成分以外に、カーボンブラック、ベンガラ、酸化チタン等の着色剤；イオン捕捉剤；カルナバワックス等の天然ワックス、ポリエチレンワックス等の合成ワックス、ステアリン酸やステアリン酸亜鉛等の高級脂肪酸およびその金属塩類もしくはパラフィン等の離型剤；シリコー

ンオイル、シリコンゴム等の低応力添加剤を適宜配合してもよい。

[0076] 本実施形態におけるエポキシ樹脂組成物は、上記の硬化剤およびエポキシ樹脂、ならびに必要なに応じて上記のその他の成分を、当該分野で通常用いられる方法により混合することにより得ることができる。

[0077] [第2領域]

また、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を付着させる構造体は、上記表面に上記第1領域を含むほか、好ましくは上記表面が、金属配線により形成された第2領域を含む。

[0078] ここで、上記第2領域を形成する金属配線に用いることができる金属としては、電子デバイスの配線に使用することができる公知の金属を用いることができる。

公知の金属としては、銅、アルミニウム、ニッケル、バナジウム、チタン、クロム、コバルト、金、タングステン及びこれらの金属を含む合金が挙げられるが、より好ましくは銅及びアルミニウムであり、さらに好ましくは銅である。

[0079] 金属配線の形成方法は、特に限定なく、既存の方法を適用することができる。例えば、特開2007-157879号公報、特表2001-521288号公報、特開2004-214501号公報、特開2004-101850号公報に記載された方法を使用することができる。例えば、フォトリソグラフィ、リフトオフ、電解メッキ、無電解メッキ、エッチング、印刷、及びこれらを組み合わせた方法などが考えられる。より具体的には、スパッタリング、フォトリソグラフィ及びエッチングを組み合わせたパターンニング方法、フォトリソグラフィと電解メッキを組み合わせたパターンニング方法が挙げられる。

[0080] 金属配線の厚さとしては、最も厚肉の部分で、0.1 μm 以上50 μm 以下が好ましく、1 μm 以上10 μm 以下がより好ましい。

[0081] <電子デバイスの製造方法>

本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を用いた電子デバイスの製造方法は

、エポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む構造体を準備する工程と、上記構造体の表面に、上記表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、当該表面から上記表面改質材用樹脂組成物を除去して上記表面を改質する工程と、を含むプロセスである。

換言すると、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物を用いて、エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された領域を含む構造体を準備する工程と、上記構造体の表面に、上記表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、当該表面から上記表面改質材用樹脂組成物を除去して上記表面を改質する工程と、を含む、表面改質方法を構造体に適用することにより、構造体の表面を改質することができる。

このようにすることで、構造体表面の濡れ性を向上させ、構造体表面に塗工した際の塗ムラを抑制し、上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する処理を行う場合において、絶縁性樹脂膜の品質を向上できる。

[0082] 以下、本実施形態の電子デバイスの製造方法における各工程について、詳細に説明する。

[0083] (エポキシ樹脂組成物の硬化体により形成された第1領域を含む構造体を準備する工程)

まず、エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された第1領域を含む上記構造体を準備する。

上記構造体は、特に限定されないが、例えば電子部品を封止するようにエポキシ樹脂組成物を成形し、硬化することにより形成される。本実施形態において、エポキシ樹脂組成物は、たとえば電子部品とともに配線基板を封止するように形成されていてもよい。配線基板の一面および他面、ならびに配線基板に搭載された電子部品を封止するようにエポキシ樹脂組成物硬化体が設けられている。また、エポキシ樹脂組成物は、たとえば配線基板の一部または全部を封止するように形成されていてもよい。このとき、構造体の表面において、エポキシ樹脂組成物硬化体が露出している部分が上記第1領域となる。

さらに、接続端子または配線が露出するように、配線基板のうちの接続端子または配線を封止せずに他の部分全体を封止するようにエポキシ樹脂組成物硬化体が設けられる場合が例示されている。このとき、構造体の表面において、エポキシ樹脂組成物硬化体が露出している部分が上記第1領域となり、接続端子または配線が露出している部分が上記第2領域となる。

[0084] (構造体の表面に、表面改質材用樹脂組成物を付着する工程)

次いで、上記構造体の表面に、上記表面改質材用樹脂組成物を付着する。このときの付着方法としては、公知の付着方法のいずれも用いることができる。公知の付着方法としては、例えば、テーブルコート法、スピコート法、ディップコート法、ダイコート法、スプレーコート法、バーコート法、ロールコート法、カーテンフローコート法、スリットコート法、インクジェットコート法、ディスペンス法などを挙げることができる。これらは、構造体の形状やサイズ、生産性などを考慮して適宜選ばれる。

[0085] (構造体表面から表面改質材用樹脂組成物を除去して表面を改質する工程)

その後、構造体表面から表面改質材用樹脂組成物を除去して表面を改質する。このとき、構造体表面から表面改質材用樹脂組成物を除去する方法としては、公知の洗浄方法のいずれも用いることができるが、例えば、溶剤を構造体にスプレーすることによって洗浄する方法が挙げられる。

このとき、溶剤としては、表面改質材用樹脂組成物を溶解するものであれば特に限定されないが、例えば、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、メチル-2-n-アミルケトン等のケトン類；3-メトキシブタノール、3-メチル-3-メトキシブタノール、1-メトキシ-2-プロパノール、1-エトキシ-2-プロパノール等のアルコール類；プロピ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メチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類；プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート、乳酸エチル、ピルビ

ン酸エチル、酢酸ブチル、3-メトキシプロピオン酸メチル、3-エトキシプロピオン酸エチル、酢酸tert-ブチル、プロピオン酸tert-ブチル、プロピレングリコールモノ-tert-ブチルエーテルアセテート、γ-ブチロラクトン等のエステル類等が挙げられ、これらの1種または2種以上を用いることができる。

[0086] このとき、当該表面から、上記表面改質材用樹脂組成物を完全に除去することが好ましい。ここで、「完全に除去する」とは、例えば、構造体表面の断面像を観察した時に、上記表面改質材用樹脂組成物からなる層が観察されないことを指す。

[0087] (絶縁性樹脂膜を形成する工程)

本実施形態の電子デバイスの製造方法におけるプロセスは、改質した上記表面に接して絶縁性樹脂膜を形成する工程をさらに含むことが好ましい。このときの絶縁性樹脂膜としては、感光性樹脂膜であっても、非感光性樹脂膜であってもよい。

[0088] ・第1実施形態

上記プロセスにおける絶縁性樹脂膜を形成する工程の第1実施形態としては、例えば、感光性樹脂膜の原料および溶剤を含む溶液を塗布した後、上記溶剤を乾燥させ、上記感光性樹脂膜を得る工程を含むことが好ましい。

[0089] 溶剤を乾燥させる方法としては、感光性樹脂膜の原料および溶剤を含む溶液から溶剤を揮発させられれば特に限定されず、ポリマーの種類に応じて公知の方法を用いることができる。乾燥工程は、例えば、温度30℃以上150℃以下、1分間以上1時間以下の条件で行うことができる。

[0090] このときの上記感光性樹脂膜の原料および溶剤を含む溶液としては、例えば、以下のような感光性樹脂組成物が挙げられる。

[0091] [感光性樹脂組成物]

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくはポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体からなる群より選択される1種または2種以上を含む。これにより、硬化(加熱)によ

る収縮を小さくすることができる。

換言すると、本実施形態の電子デバイスの製造方法におけるプロセスは、さらに表面を改質した上記表面に対してポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリアミド樹脂またはその前駆体からなる群より選択される1種または2種以上を含む感光性樹脂組成物を付着させる工程を含む。そして、本実施形態の表面改質材用樹脂組成物は、上記プロセスとしてさらに表面を改質した上記表面に対してポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリアミド樹脂またはその前駆体からなる群より選択される1種または2種以上を含む感光性樹脂組成物を付着させる工程を含む用途に用いられる。

- [0092] ポリベンゾオキサゾール樹脂は、前駆体であるポリアミド樹脂を熱処理することによって、脱水閉環して得ることができる。
- [0093] ポリアミド樹脂は、典型的には、(i) まず、ジアミンと酸二無水物とを反応(縮重合)させてポリアミドを合成し、(ii) その後、そのポリアミドをイミド化させ(閉環反応させ)、(iii) 必要に応じてポリマー末端に所望の官能基を導入することにより得ることができる。
- [0094] 原料のジアミンとしては、例えば、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル(3, 4'-ODA)、4, 4'-ジアミノ-2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ピフェニル(TFMB)、3, 3', 5, 5'-テトラメチルベンジジン、2, 3, 5, 6-テトラメチル-1, 4-フェニレンジアミン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジメチルベンジジン、3, 3'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、2, 2'-ビス(p-アミノフェニル)ヘキサフルオロプロパン、ビス(トリフルオロメトキシ)ベンジジン(TFMOB)、2, 2'-ビス(ペンタフルオロエトキシ)ベンジジン(TFEOB)、2, 2'-トリフルオロメチル-4, 4'-オキシジアニリン(OBATF)、2-フェニル-2-トリフルオロメチル-ビス(p-アミノフェニル)メタン、2-フェニル-2-トリフルオロメチル-ビス(m-アミノフェニル)メタン、2, 2'-ビス(2-ヘプタフルオロイソプロポキシ-

テトラフルオロエトキシ)ベンジジン (DFPOB)、2, 2-ビス (m-アミノフェニル)ヘキサフルオロプロパン (6-FmDA)、2, 2-ビス (3-アミノ-4-メチルフェニル)ヘキサフルオロプロパン、3, 6-ビス (トリフルオロメチル)-1, 4-ジアミノベンゼン (2TFMPDA)、1-(3, 5-ジアミノフェニル)-2, 2-ビス (トリフルオロメチル)-3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ヘプタフルオロペンタン、3, 5-ジアミノベンゾトリフルオリド (3, 5-DABTF)、3, 5-ジアミノ-5-(ペンタフルオロエチル)ベンゼン、3, 5-ジアミノ-5-(ヘプタフルオロプロピル)ベンゼン、2, 2'-ジメチルベンジジン (DMBZ)、2, 2', 6, 6'-テトラメチルベンジジン (TMBZ)、3, 6-ジアミノ-9, 9-ビス (トリフルオロメチル)キサンテン (6FC DAM)、3, 6-ジアミノ-9-トリフルオロメチル-9-フェニルキサンテン (3FC DAM)、3, 6-ジアミノ-9, 9-ジフェニルキサンテン等を挙げることができる。もちろん、使用可能なジアミンはこれらのみ限定されない。ジアミンは1種または2種以上使用可能である。

[0095] 原料の酸二無水物としては、例えば、無水ピロメリット酸無水物 (PMDA)、ジフェニルエーテル-3, 3', 4, 4'-テトラカルボン酸二無水物 (ODPA)、ベンゾフェノン-3, 3', 4, 4'-テトラカルボン酸二無水物 (BTDA)、ビフェニル-3, 3', 4, 4'-テトラカルボン酸二無水物 (BPDA)、ジフェニルスルホン-3, 3', 4, 4'-テトラカルボン酸二無水物 (DSDA)、ジフェニルメタン-3, 3', 4, 4'-テトラカルボン酸二無水物、2, 2-ビス (3, 4-無水フタル酸)プロパン、2, 2-ビス (3, 4-無水フタル酸)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン (6FDA)等を挙げることができる。もちろん、使用可能な酸二無水物はこれらのみ限定されない。酸二無水物は1種または2種以上使用可能である。

[0096] ジアミンと酸二無水物との使用比率は、基本的にはモル比で1:1である。ただし、所望の末端構造を得るために、一方を過剰に用いてもよい。具体

的には、ジアミンを過剰に用いることで、ポリイミド樹脂の末端（両末端）はアミノ基となりやすい。一方、酸二無水物を過剰に用いることで、ポリイミド樹脂の末端（両末端）は酸無水物基となりやすい。

[0097] 本実施形態の感光性樹脂組成物において、ポリイミド樹脂またはその前駆体の末端のアミノ基および／または酸無水物基に、何らかの試薬を反応させて、ポリイミド樹脂末端が所望の官能基を有するようにしてもよい。

[0098] 本実施形態におけるポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体の重量平均分子量は、例えば5,000~100,000、好ましくは7,000~75,000、より好ましくは10,000~50,000である。ポリベンゾオキサゾール樹脂およびポリイミド樹脂の重量平均分子量がある程度大きいことにより、例えば樹脂膜の十分な耐熱性を得ることができる。また、ポリイミド樹脂の重量平均分子量が大きすぎないことにより、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体を有機溶剤に溶解させやすくなる。

重量平均分子量は、通常、ポリスチレンを標準物質として用いたゲルパーミアクションクロマトグラフィー（GPC）法により求めることができる。

[0099]（感光剤）

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくは感光剤を含む。感光剤は、光により活性種を発生して感光性樹脂組成物を硬化させることが可能なものである限り、特に限定されない。

[0100] 感光剤は、好ましくは光ラジカル発生剤を含む。光ラジカル発生剤は、特に、上記ポリイミド樹脂を重合させるのに効果的である。

[0101] 用いることができる光ラジカル発生剤は特に限定されず、公知のものを適宜用いることができる。

例えば、2,2-ジエトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、1-[4

— (2-ヒドロキシエトキシ) フェニル] — 2-ヒドロキシ— 2-メチル— 1-プロパン— 1-オン、 2-ヒドロキシ— 1- {4- [4- (2-ヒドロキシ— 2-メチルプロピオニル) ベンジル] フェニル} — 2-メチルプロパン— 1-オン、 2-メチル— 1- (4-メチルチオフェニル) — 2-モルフォリノプロパン 1-オン、 2-ベンジル— 2-ジメチルアミノ— 1- (4-モルフォリノフェニル) — ブタノン— 1、 2- (ジメチルアミノ) — 2- [(4-メチルフェニル) メチル] — 1- [4- (4-モルホリニル) フェニル] — 1-ブタノン等のアルキルフェノン系化合物；ベンゾフェノン、 4, 4'-ビス (ジメチルアミノ) ベンゾフェノン、 2-カルボキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系化合物；ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾイン系化合物；チオキサントン、 2-エチルチオキサントン、 2-イソプロピルチオキサントン、 2-クロロチオキサントン、 2, 4-ジメチルチオキサントン、 2, 4-ジエチルチオキサントン等のチオキサントン系化合物；2- (4-メトキシフェニル) — 4, 6-ビス (トリクロロメチル) — s-トリアジン、 2- (4-メトキシナフチル) — 4, 6-ビス (トリクロロメチル) — s-トリアジン、 2- (4-エトキシナフチル) — 4, 6-ビス (トリクロロメチル) — s-トリアジン、 2- (4-エトキシカルボキニルナフチル) — 4, 6-ビス (トリクロロメチル) — s-トリアジン等のハロメチル化トリアジン系化合物；2-トリクロロメチル— 5- (2'-ベンゾフリル) — 1, 3, 4-オキサジアゾール、 2-トリクロロメチル— 5- [β- (2'-ベンゾフリル) ビニル] — 1, 3, 4-オキサジアゾール、 4-オキサジアゾール、 2-トリクロロメチル— 5-フリル— 1, 3, 4-オキサジアゾール等のハロメチル化オキサジアゾール系化合物；2, 2'-ビス (2-クロロフェニル) — 4, 4', 5, 5'-テトラフェニル— 1, 2'-ビイミダゾール、 2, 2'-ビス (2, 4-ジクロロフェニル) — 4, 4', 5, 5'-テトラフェニル— 1, 2'-ビイミダゾール、 2, 2'-ビス (2, 4, 6-トリクロロフェニル) — 4, 4', 5,

5'-テトラフェニル-1, 2'-ビイミダゾール等のビイミダゾール系化合物; 1, 2-オクタジオン, 1-[4-(フェニルチオ)フェニル]-2-(O-ベンゾイルオキシム)、エタノン, 1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-, 1-(O-アセチルオキシム)等のオキシムエステル系化合物; ビス(η 5-2, 4-シクロペンタジエン-1-イル)-ビス(2, 6-ジフルオロ-3-(1H-ピロール-1-イル)-フェニル)チタニウム等のチタノセン系化合物; アシルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィン系化合物; p-ジメチルアミノ安息香酸、p-ジエチルアミノ安息香酸等の安息香酸エステル系化合物; 9-フェニルアクリジン等のアクリジン系化合物; 等を挙げることができる。

[0102] 感光性樹脂組成物は、感光剤を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

感光剤の含有量は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体100質量部に対して、例えば5質量部以上30質量部以下であり、好ましくは10質量部以上25質量部以下である。

[0103] (架橋剤)

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくは架橋剤を含む。架橋剤を用いることにより、例えば架橋剤と感光性樹脂組成物に含まれる他の成分が反応したり、架橋剤どうしで重合したりするようになり、架橋剤が感光性樹脂組成物と密接に絡み合うようになり、樹脂膜の耐薬品性および伸び率を向上させるものと考えられる。

[0104] 架橋剤の含有量は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体100質量部に対して、例えば0.1質量部以上であり、好ましくは0.5質量部以上、より好ましくは1質量部以上である。架橋剤の含有量が0.1質量部以上であることにより、樹脂膜が高い耐薬品性を有することができる。

また、架橋剤の含有量は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体100質量部に対して、例えば30質量部以下であり、好ましくは20質量部以下、より好ましくは10質量部以下である。架橋剤の含有量が30質量部以下であることにより、感光性樹脂組成物におけるポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体の比率が維持され、樹脂膜の伸び率が良好となるほか、樹脂膜と構造体との密着性が十分に向上する。

[0105] 本実施形態の感光性樹脂組成物は、架橋剤を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

[0106] (カップリング剤)

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくはカップリング剤を含み、より好ましくはシランカップリング剤を含む。シランカップリング剤を用いることにより、例えば樹脂膜と構造体との密着性をより高めることができる。

[0107] シランカップリング剤としては、例えば、アミノ基含有シランカップリング剤、エポキシ基含有シランカップリング剤、(メタ)アクリロイル基含有シランカップリング剤、メルカプト基含有シランカップリング剤、ビニル基含有シランカップリング剤、ウレイド基含有シランカップリング剤、スルフィド基含有シランカップリング剤、環状無水物構造を有するシランカップリング剤、などのシランカップリング剤を用いることができる。

[0108] アミノ基含有シランカップリング剤としては、例えばビス(2-ヒドロキシエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、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、N- β (アミノエチル) 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 -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

エポキシ基含有シランカップリング剤としては、例えば γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 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、 γ -グリシジルプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

(メタ)アクリロイル基含有シランカップリング剤としては、例えば γ -(メタ)アクリロイルオキシプロピル)トリメトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロイルオキシプロピル)メチルジメトキシシラン、 γ -(メタ)アクリロイルオキシプロピル)メチルジエトキシシラン等が挙げられる。

メルカプト基含有シランカップリング剤としては、例えば3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

ビニル基含有シランカップリング剤としては、例えばビニルトリス(β -メトキシエトキシ)シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン等が挙げられる。

ウレイド基含有シランカップリング剤としては、例えば3-ウレイドプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。

スルフィド基含有シランカップリング剤としては、例えばビス(3-(トリエトキシシリル)プロピル)ジスルフィド、ビス(3-(トリエトキシシリル)プロピル)テトラスルフィド等が挙げられる。

環状無水物構造を有するシランカップリング剤としては、例えば3-トリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物、3-トリエトキシシリルプロピルコハク酸無水物、3-ジメチルメトキシシリルプロピルコハク酸無水物等が挙げられる。

[0109] 本実施形態においては、特に、環状無水物構造を有するシランカップリング剤が好ましく用いられる。詳細は不明だが、環状無水物構造は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体の主鎖、側鎖および/または末端と反応しやすく、そのために特に良好な密着性向上効果が得られると推測される。

[0110] シランカップリング剤が用いられる場合、単独で用いられてもよいし、2種以上の密着助剤が併用されてもよい。

シランカップリング剤が用いられる場合、その使用量は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体の使用量を100質量部としたとき、例えば0.1~20質量部、好ましくは0.3~15質量部、より好ましくは0.4~12質量部、さらに好ましくは0.5~10質量部である。

[0111] (界面活性剤)

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくは、界面活性剤を含む。これにより、感光性樹脂組成物の塗布性を一層高めうる。

界面活性剤としては、フッ素系界面活性剤、シリコーン系界面活性剤、アルキル系界面活性剤、アクリル系界面活性剤などが挙げられる。

別観点として、界面活性剤は、非イオン性であることが好ましい。非イオン性の界面活性剤の使用は、例えば、組成物中の他成分との非意図的な反応を抑え、組成物の保存安定性を高める点で好ましい。

[0112] 界面活性剤は、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含む界面活性剤を含むことが好ましい。これにより、均一な樹脂膜を得られること（塗布性の向上）や、現像性の向上に加え、接着強度の向上にも寄与する。このような界面活性剤としては、例えば、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含むノニオン系界面活性剤であることが好ましい。界面活性剤として使用可能な市販品としては、例えば、DIC株式会社製の「メガファック」シリーズの、F-251、F-253、F-281、F-430、F-477、F-551、F-552、F-553、F-554、F-555、F-556、F-557、F-558、F-559、F-560、F-561、F-562、F-563、F-565、F-568、F-569、F-570、F-572、F-574、F-575、F-576、R-40、R-40-LM、R-41、R-94、スリーエム社製のFC4430やFC4432等の、フッ素を含有するオリゴマー構造の界面活性剤、

株式会社ネオス製のフタージェント250、フタージェント251等のフッ素含有ノニオン系界面活性剤、ワッカー・ケミー社製のSILFOAM（登録商標）シリーズ（例えばSD 100 TS、SD 670、SD 850、SD 860、SD 882）、ビッケミー社製のBYK-333、BYK-349、BYK-313、BYK-323等のシリコーン系界面活性剤が挙げられる。

また、スリーエム社製のFC4430やFC4432、ビッケミー社製のBYK-333などが、好ましい界面活性剤として挙げることができる。

[0113] 本実施形態の感光性樹脂組成物が界面活性剤を含む場合、1または2以上の界面活性剤を含むことができる。

本実施形態の感光性樹脂組成物が界面活性剤を含む場合、その量は、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体の含有量を100質量部としたとき、例えば0.001～1質量部、好ましくは0.005～0.5質量部である。

[0114] （溶剤／感光性樹脂組成物の性状）

本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくは溶剤を含む。これにより、構造体に対して塗布法により樹脂膜を容易に形成することができる。

溶剤は、通常、有機溶剤を含む。上述の各成分を溶解または分散可能で、かつ、各構成成分と実質的に化学反応しないものである限り、有機溶剤は特に限定されない。

[0115] 有機溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、トルエン、プロピレングリコールメチルエチルエーテル、プロピレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコール1-モノメチルエーテル2-アセテート、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、ベンジルアルコール、プロピレンカーボネート、エチレングリコールジアセテート、プロピレングリコールジアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールメチル-n-ブ

ロピルエーテル、酢酸ブチル、 γ -ブチロラクトン、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸ブチル等が挙げられる。これらは単独で用いられても複数組み合わせで用いられてもよい。

[0116] 本実施形態の感光性樹脂組成物が溶剤を含む場合、本実施形態の感光性樹脂組成物は、通常、ワニス状である。より具体的には、本実施形態の感光性樹脂組成物は、好ましくは、少なくともポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体が、溶剤に溶解した、ワニス状の組成物である。本実施形態の感光性樹脂組成物がワニス状であることにより、塗布による均一な膜形成を行うことができる。また、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体が溶剤に「溶解」していることで、均質な硬化膜を得ることができる。

[0117] 溶剤を用いる場合は、感光性樹脂組成物中の全固形分（不揮発成分）の濃度が、好ましくは10～50質量%、より好ましくは20～45質量%となるように用いられる。この範囲とすることで、各成分を十分に溶解または分散させることができる。また、良好な塗布性を担保することができ、ひいてはスピコート時の平坦性の良化にもつながる。さらに、不揮発成分の含有量を調整することにより、感光性樹脂組成物の粘度を適切に制御できる。

[0118] (その他の成分)

本実施形態の感光性樹脂組成物は、上記の成分に加えて、必要に応じて、上記の成分以外の成分を含んでもよい。そのような成分としては、例えば、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体およびポリイミド樹脂またはその前駆体以外の樹脂、水、シリカ等の充填材、硬化触媒、増感剤、フィルム化剤等が挙げられる。

[0119] このとき、上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する工程の前における上記第1領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第1領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 > \theta 2$ であることが好ましい。

このようにすることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0120] また、上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する工程の前における上記第2領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第2領域の上記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 < \theta 2$ であることが好ましい。

このようにすることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

上記第1領域および第2領域における接触角の測定は、25℃で行うことができる。また、接触角の測定に用いる感光性樹脂組成物は、通常、有機溶剤を含むワニス状である。感光性樹脂組成物としては、実際に電子デバイスの製造方法に用いる感光性樹脂組成物を用いることができる。また、感光性樹脂組成物の例としては、後掲の実施例で用いている住友ベークライト株式会社のウェハーコート樹脂を挙げることができる。

[0121] ・第2実施形態

また、本実施形態の電子デバイスの製造方法におけるプロセスにおいて、絶縁性樹脂膜を形成する工程の第2実施形態としては、重合性単量体および溶剤を含む溶液を塗布した後、上記溶剤を乾燥させ、上記重合性単量体を重合させる工程を含むことが好ましい。

[0122] 溶剤を乾燥させる方法としては、重合性単量体および溶剤を含む溶液から溶剤を揮発させられれば特に限定されず、重合性単量体の種類に応じて公知の方法を用いることができる。溶剤を乾燥させる方法としては、例えば、温度30℃以上150℃以下、1分間以上1時間以下の条件が挙げられる。

[0123] 重合性単量体を重合させる工程としては、特に限定されず、重合性単量体の種類に応じて公知の方法を用いることができる。重合性単量体を重合させる工程としては、例えば、熱処理やエネルギー線を照射する方法が挙げられる。このときのエネルギー線としては、例えば、放射線、紫外線、可視光線

及び電子線などが挙げられる。

[0124] このときの重合性単量体および溶剤を含む溶液としては、例えば、以下のような樹脂組成物が挙げられる。

[0125] [重合性単量体および溶剤を含む溶液]

(重合性単量体)

本実施形態の上記重合性単量体および溶剤を含む溶液に含まれる重合性単量体としては、感光性樹脂組成物に用いられる公知の重合性単量体を使用することが可能である。使用可能なものは特に限定されないが、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ターシャルブチル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、セチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、イソアミル（メタ）アクリレート、イソステアリル（メタ）アクリレート、ベヘニル（メタ）アクリレート、その他のアルキル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ターシャルブチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、フェノキシエチル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート、グリセロールモノ（メタ）アクリレート、グリセロールジ（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、ジンクモノ（メタ）アクリレート、ジンクジ（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、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、ジメリルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコール（メタ）アクリレート、トリフロロエチル（メタ）アクリレート、2, 2, 3, 3-テトラフロロプロピル（メタ）アクリレート、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘキサフロロブチル（メタ）アクリレート、パーフロロ

オクチル（メタ）アクリレート、パーフロオクチルエチル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、1，4-ブレンジオールジ（メタ）アクリレート、1，6-ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、1，9-ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、1，3-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、1，10-デカンジオールジ（メタ）アクリレート、ヒドロキシピバリン酸ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールモノ（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、テトラメチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、テトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、メトキシエチル（メタ）アクリレート、ブトキシエチル（メタ）アクリレート、エトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、オクトキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ラウロキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ステアロキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、アリロキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ノニルフェノキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ポリアルキレンオキサイド変性ビスフェノールAジ（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、N，N'-メチレンビス（メタ）アクリルアミド、N，N'-エチレンビス（メタ）アクリルアミド、1，2-ジ（メタ）アクリルアミドエチレングリコール、ジ（メタ）アクリロイロキシメチルトリシクロデカン、2-（メタ）アクリロイロキシエチルコハク酸、2-（メタ）アクリロイロキシエチルヘキサヒドロフタル酸、2-（メタ）アクリロイロキシエチル、2-ヒドロキシプロピルフタレート、2-ヒドロキシ-3-アクリロイロキシプロピルメタクリレート、N-（メタ）アクリロイロキシエチルマレイミド、N-（メタ）

) アクリロイロキシエチルヘキサヒドロフタルイミド、N-(メタ)アクリロイロキシエチルフタルイミド、n-ビニル-2-ピロリドン、スチレン誘導体、 α -メチルスチレン誘導体等の公知の化合物が挙げられる。これらの化合物のうち、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0126] (溶剤)

本実施形態の溶液は、溶剤を含む。これにより、構造体に対して塗布法により樹脂膜を容易に形成することができる。

溶剤は、通常、有機溶剤を含む。上述の各成分を溶解または分散可能で、かつ、各構成成分と実質的に化学反応しないものである限り、有機溶剤は特に限定されない。

[0127] 有機溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、トルエン、プロピレングリコールメチルエチルエーテル、プロピレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコール1-モノメチルエーテル2-アセテート、ジエチレングリコールエチルメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、ベンジルアルコール、プロピレンカーボネート、エチレングリコールジアセテート、プロピレングリコールジアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールメチル-n-プロピルエーテル、酢酸ブチル、 γ -ブチロラクトン、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸ブチル等が挙げられる。これらは単独で用いられても複数組み合わせ用いられてもよい。

[0128] 本実施形態の溶液は、溶剤を含むため、通常、ワニス状である。より具体的には、本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、重合性単量体が、溶剤に溶解した、ワニス状の組成物である。本実施形態の上記重合性単量体および溶剤を含む溶液がワニス状であることにより、塗布による均一な膜形成を行うことができる。また、重合性単量体が溶剤に「溶解」していることで、均質な硬化膜を得ることができる。

[0129] 溶剤を用いる場合は、上記重合性単量体および溶剤を含む溶液中の全固成分（不揮発成分）の濃度が、好ましくは10～50質量%、より好ましくは20～45質量%となるように用いられる。この範囲とすることで、各成分を十分に溶解または分散させることができる。また、良好な塗布性を担保することができるが、ひいてはスピンコート時の平坦性の良化にもつながる。さらに、不揮発成分の含有量を調整することにより、上記重合性単量体および溶剤を含む溶液の粘度を適切に制御できる。

[0130] （その他の成分）

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、上記の成分に加えて、必要に応じて、上記の成分以外の成分を含んでもよい。そのような成分としては、例えば、感光剤、架橋剤、シランカップリング剤、界面活性剤、重合性単量体以外の樹脂、水、シリカ等の充填材、硬化触媒、増感剤、フィルム化剤等が挙げられる。

[0131] （感光剤）

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、好ましくは感光剤を含む。感光剤は、光により活性種を発生して重合性単量体および溶剤を含む溶液を硬化させることが可能なものである限り、特に限定されない。

[0132] 感光剤は、好ましくは光ラジカル発生剤を含む。光ラジカル発生剤は、特に、重合性単量体を重合させるのに効果的である。

[0133] 用いることができる光ラジカル発生剤は特に限定されず、公知のものを適宜用いることができる。

例えば、2, 2-ジエトキシアセトフェノン、2, 2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、1-[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]-2-ヒドロキシ-2-メチル-1-プロパン-1-オン、2-ヒドロキシ-1-{4-[4-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオニル)ベンジル]フェニル}-2-メチルプロパン-1-オン、2-メチル-1-(4-メチルチオフェニル)-2-モルフ

オリノプロパン1-オン、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォリノフェニル)-ブタノン-1、2-(ジメチルアミノ)-2-[(4-メチルフェニル)メチル]-1-[4-(4-モルホリニル)フェニル]-1-ブタノン等のアルキルフェノン系化合物；ベンゾフェノン、4,4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン、2-カルボキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系化合物；ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾイン系化合物；チオキサントン、2-エチルチオキサントン、2-イソプロピルチオキサントン、2-クロロチオキサントン、2,4-ジメチルチオキサントン、2,4-ジエチルチオキサントン等のチオキサントン系化合物；2-(4-メトキシフェニル)-4,6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-(4-メトキシナフチル)-4,6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-(4-エトキシナフチル)-4,6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-(4-エトキシカルボキシルナフチル)-4,6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン等のハロメチル化トリアジン系化合物；2-トリクロロメチル-5-(2'-ベンゾフリル)-1,3,4-オキサジアゾール、2-トリクロロメチル-5-[\beta-(2'-ベンゾフリル)ビニル]-1,3,4-オキサジアゾール、4-オキサジアゾール、2-トリクロロメチル-5-フリル-1,3,4-オキサジアゾール等のハロメチル化オキサジアゾール系化合物；2,2'-ビス(2-クロロフェニル)-4,4',5,5'-テトラフェニル-1,2'-ビミダゾール、2,2'-ビス(2,4-ジクロロフェニル)-4,4',5,5'-テトラフェニル-1,2'-ビミダゾール、2,2'-ビス(2,4,6-トリクロロフェニル)-4,4',5,5'-テトラフェニル-1,2'-ビミダゾール等のビミダゾール系化合物；1,2-オクタンジオン、1-[4-(フェニルチオ)フェニル]-2-(O-ベンゾイルオキシム)、エタノン、1-[9-エチル-6-(2-メチルベンゾイル)-9H-カルバゾール-3-イル]-,1-(O-ア

セチルオキシム)等のオキシムエステル系化合物;ビス(η⁵-2,4-シクロペンタジエン-1-イル)-ビス(2,6-ジフルオロ-3-(1H-ピロール-1-イル)-フェニル)チタニウム等のチタノセン系化合物;アシルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィン系化合物;p-ジメチルアミノ安息香酸、p-ジエチルアミノ安息香酸等の安息香酸エステル系化合物;9-フェニルアクリジン等のアクリジン系化合物;等を挙げることができる。

[0134] 重合性単量体および溶剤を含む溶液は、感光剤を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

感光剤の含有量は、重合性単量体100質量部に対して、例えば5質量部以上30質量部以下であり、好ましくは10質量部以上25質量部以下である。

[0135] (架橋剤)

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、好ましくは架橋剤を含む。架橋剤を用いることにより、例えば架橋剤と重合性単量体および溶剤を含む溶液に含まれる他の成分が反応したり、架橋剤どうしで重合したりするようになり、架橋剤が重合性単量体および溶剤を含む溶液と密接に絡み合うようになり、樹脂膜の耐薬品性および伸び率を向上させるものと考えられる。

[0136] 架橋剤の含有量は、重合性単量体100質量部に対して、例えば0.1質量部以上であり、好ましくは0.5質量部以上、より好ましくは1質量部以上である。架橋剤の含有量が0.1質量部以上であることにより、樹脂膜が高い耐薬品性を有することができる。

また、架橋剤の含有量は、重合性単量体100質量部に対して、例えば30質量部以下であり、好ましくは20質量部以下、より好ましくは10質量部以下である。架橋剤の含有量が30質量部以下であることにより、重合性単量体および溶剤を含む溶液における重合性単量体の比率が維持され、樹脂膜の伸び率が良好となるほか、樹脂膜と構造体との密着性が十分に向上する

。

[0137] 本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、架橋剤を1種のみ含んでもよいし、2種以上含んでもよい。

[0138] (シランカップリング剤)

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、好ましくは、シランカップリング剤を含む。シランカップリング剤を用いることにより、例えば樹脂膜と構造体との密着性をより高めることができる。

[0139] シランカップリング剤としては、例えば、アミノ基含有シランカップリング剤、エポキシ基含有シランカップリング剤、(メタ)アクリロイル基含有シランカップリング剤、メルカプト基含有シランカップリング剤、ビニル基含有シランカップリング剤、ウレイド基含有シランカップリング剤、スルフィド基含有シランカップリング剤、環状無水物構造を有するシランカップリング剤、などのシランカップリング剤を用いることができる。

[0140] アミノ基含有シランカップリング剤としては、例えばビス(2-ヒドロキシエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、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、N- β (アミノエチル) 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 -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N- β (アミノエチル) γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

エポキシ基含有シランカップリング剤としては、例えば γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 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、 γ -グリシジルプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

(メタ)アクリロイル基含有シランカップリング剤としては、例えば γ -(γ -(メタ)アクリロイルオキシプロピル)トリメトキシシラン、 γ -(γ -

タ) アクリロイルオキシプロピル) メチルジメトキシシラン、 γ - ((メ
タ) アクリロイルオキシプロピル) メチルジエトキシシラン等が挙げられる
。

メルカプト基含有シランカップリング剤としては、例えば3-メルカプト
プロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

ビニル基含有シランカップリング剤としては、例えばビニルトリス (β -
メトキシエトキシ) シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキ
シシラン等が挙げられる。

ウレイド基含有シランカップリング剤としては、例えば3-ウレイドプロ
ピルトリエトキシシラン等が挙げられる。

スルフィド基含有シランカップリング剤としては、例えばビス (3- (ト
リエトキシシリル) プロピル) ジスルフィド、ビス (3- (トリエトキシシ
リル) プロピル) テトラスルフィド等が挙げられる。

環状無水物構造を有するシランカップリング剤としては、例えば3-トリ
メトキシシリルプロピルコハク酸無水物、3-トリエトキシシリルプロピ
ルコハク酸無水物、3-ジメチルメトキシシリルプロピルコハク酸無水物等
が挙げられる。

[0141] 本実施形態においては、特に、環状無水物構造を有するシランカップリン
グ剤が好ましく用いられる。詳細は不明だが、環状無水物構造は、重合性単
量体の主鎖、側鎖および/または末端と反応しやすく、そのために特に良好
な密着性向上効果が得られると推測される。

[0142] シランカップリング剤が用いられる場合、単独で用いられてもよいし、2
種以上の密着助剤が併用されてもよい。

シランカップリング剤が用いられる場合、その使用量は、重合性単量体の
使用量を100質量部としたとき、例えば0.1~20質量部、好ましくは
0.3~15質量部、より好ましく0.4~12質量部、さらに好ましくは
0.5~10質量部である。

[0143] (界面活性剤)

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液は、好ましくは、界面活性剤を含む。これにより、重合性単量体および溶剤を含む溶液の塗布性を一層高めうる。

界面活性剤としては、フッ素系界面活性剤、シリコーン系界面活性剤、アルキル系界面活性剤、アクリル系界面活性剤などが挙げられる。

別観点として、界面活性剤は、非イオン性であることが好ましい。非イオン性の界面活性剤の使用は、例えば、組成物中の他成分との非意図的な反応を抑え、組成物の保存安定性を高める点で好ましい。

[0144] 界面活性剤は、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含む界面活性剤を含むことが好ましい。これにより、均一な樹脂膜を得られること（塗布性の向上）や、現像性の向上に加え、接着強度の向上にも寄与する。このような界面活性剤としては、例えば、フッ素原子およびケイ素原子の少なくともいずれかを含むノニオン系界面活性剤であることが好ましい。界面活性剤として使用可能な市販品としては、例えば、D I C株式会社製の「メガファック」シリーズの、F-251、F-253、F-281、F-430、F-477、F-551、F-552、F-553、F-554、F-555、F-556、F-557、F-558、F-559、F-560、F-561、F-562、F-563、F-565、F-568、F-569、F-570、F-572、F-574、F-575、F-576、R-40、R-40-LM、R-41、R-94等の、フッ素を含有するオリゴマー構造の界面活性剤、株式会社ネオス製のフタージェント250、フタージェント251等のフッ素含有ノニオン系界面活性剤、ワッカー・ケミー社製のS I L F O A M（登録商標）シリーズ（例えばSD 100 TS、SD 670、SD 850、SD 860、SD 882）等のシリコーン系界面活性剤が挙げられる。

また、スリーエム社製のFC4430やFC4432なども、好ましい界面活性剤として挙げるができる。

[0145] 本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液が界面活性剤を含む場合

、1または2以上の界面活性剤を含むことができる。

本実施形態の重合性単量体および溶剤を含む溶液が界面活性剤を含む場合、その量は、重合性単量体の含有量を100質量部としたとき、例えば0.001～1質量部、好ましくは0.005～0.5質量部である。

[0146] このとき、上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する工程の前における上記第1領域の上記絶縁性樹脂膜に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第1領域の上記絶縁性樹脂膜に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 > \theta 2$ であることが好ましい。

このようにすることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0147] また、上記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する工程の前における上記第2領域の上記絶縁性樹脂膜に対する接触角を $\theta 1$ 、上記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における上記第2領域の上記絶縁性樹脂膜に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 < \theta 2$ であることが好ましい。

このようにすることにより、構造体の表面改質処理後に構造体表面の濡れ性をより好適に向上させることができる。

[0148] <電子デバイス>

上記製造方法により製造された電子デバイス1は、図1に示すように、エポキシ樹脂組成物硬化体10と、個片化されたダイ20および電極パッド30からなる半導体チップ40と、パッシベーション膜50を備える構造体の上に、前述の感光性樹脂組成物からなる絶縁性樹脂膜60と、露出した電極パッド30と、絶縁性樹脂膜60とを覆うように形成された導電膜110を備えている。

[0149] このとき、エポキシ樹脂組成物硬化体10と絶縁性樹脂膜60とが接する界面が上記第1領域であり、電極パッド30と絶縁性樹脂膜60もしくは導電膜110とが接する界面が上記第2領域である。

本実施形態における電子デバイス1は、上記第1領域および上記第2領域が本実施形態における表面改質材用樹脂組成物によって表面改質処理されているものである。

[0150] 以上、本発明の実施形態について述べたが、これらは本発明の例示であり、上記以外の様々な構成を採用することができる。また、本発明は上述の実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での変形、改良等は本発明に含まれる。

実施例

[0151] 本発明の実施態様を、実施例および比較例に基づき詳細に説明する。念のため述べておくと、本発明は実施例のみに限定されない。

[0152] [表面に下地層（第1領域に相当）が形成された構造体を得るための下地材（E-1）～（E-5）]

表面に下地層（第1領域に相当）が形成された構造体を得るための下地材である、（E-1）～（E-4）のエポキシ樹脂硬化体について、以下のよう調製した。

まず、表1に示す各成分をミキサーにより混合した。次いで、得られた混合物を、直径65mmのシリンダー内径を持つ同方向回転二軸押出機にてスクリュー回転数30rpm、110℃の樹脂温度で熔融混練した。次に、直径20cmの回転子の上方より熔融混練された樹脂組成物を2kg/hrの割合で供給し、回転子を3000rpmで回転させて得られる遠心力によって、115℃に加熱された円筒状外周部の複数の小孔（孔径0.9mm）を通過させた。その後、冷却することで顆粒状の下地材（E-1）～（E-4）を得た。

また、（E-5）については、市販品のスパッタリング用の銅をそのまま用いた。

[0153] 表面に下地層が形成された構造体を得るための各下地材（E-1）～（E-4）の原料の詳細を表1に示す。

表1における各成分の原料の詳細は下記のとおりである。

[0154] [各下地材 (E-1) ~ (E-5) の原料]

(無機充填材)

・無機充填材1：球状溶融シリカ（龍森株式会社製、品番：MUF-4、粒径 $3.8\mu\text{m}$ ）

・無機充填材2：球状溶融シリカ（龍森株式会社製、品番：MSR-SC3-TS、粒径 $3.8\mu\text{m}$ ）

・無機充填材3：球状溶融シリカ（アドマテックス株式会社製、品番：SC-2500-SQ、粒径 $0.5\mu\text{m}$ ）

・無機充填材4：球状溶融シリカ（アドマテックス株式会社製、品番：SC-5500-SQ、粒径 $1.5\mu\text{m}$ ）

(着色剤)

・着色剤1：カーボンブラック（三菱化学株式会社製、品番：MA-600）

[0155] (カップリング剤)

・カップリング剤1：N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン（東レ・ダウコーニング株式会社製、品番：CF-4083）

・カップリング剤2：シランカップリング剤の加水分解品（ γ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシランの加水分解物）

・カップリング剤3：3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン（チッソ株式会社製、品番：S810）

[0156] (エポキシ樹脂)

・エポキシ樹脂1：ビフェニル型エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、品番：YX-4000K）

・エポキシ樹脂2：トリスフェニルメタン／ビフェニル混合型エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製、品番：YL6677）

・エポキシ樹脂3：ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社製、品番：NC3000L）

・エポキシ樹脂4：ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂とビフェノールグ

リシジルエーテルの混合物（日本化薬株式会社製、品番：CER-3000-L）

（硬化剤）

・硬化剤1：トリスフェニルメタン混合型フェノール樹脂（エア・ウォーター株式会社製、品番：HE910-20）

・硬化剤2：フェノールノボラック型フェノール樹脂（住友ベークライト株式会社製、品番：PR-55617）

・硬化剤3：ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂（日本化薬株式会社製、品番：GPH-65）

・硬化剤4：ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂（明和化成株式会社製、品番：MEH-7851SS）

[0157]（硬化促進剤）

・硬化促進剤1：テトラフェニルホスホニウム・4，4'-スルフォニルジフェノラート

・硬化促進剤2：テトラフェニルホスホニウムビス（ナフタレン-2，3-ジオキシ）フェニルシリケート

・硬化促進剤3：トリフェニルホスフィンとp-ベンゾキノンの付加物（ケイ・アイ化成株式会社製、品番：TPP-BQ）

・硬化促進剤4：テトラフェニルホスホニウム-2，3-ジヒドロキシナフタレート

[0158]（離型剤）

・離型剤1：カルナバワックス（東亜合成株式会社製、品番：TOWAX-132）

（難燃剤）

・難燃剤1：水酸化アルミニウム粉砕物、D50=2.1 μ m、D90=7.1 μ m、電気伝導度=24 μ S/cm

（イオン捕捉剤）

・イオン補足剤1：ヒドロキシタルサイト（東亜合成株式会社製、品番：

S B M - 8 6 7 7)

(低応力剤)

・低応力剤1：ポリエーテル変性シリコンオイル（東レ・ダウコーニング株式会社製、品番：F Z - 3 7 3 0）

[0159] [表1]

		E-1	E-2	E-3	E-4
配合 (質量部)	無機充填材1	77.00			
	無機充填材2		76.20		
	無機充填材3	5.00	4.00		
	無機充填材4	5.00	4.00	78.00	78.00
	着色剤1	0.50	0.30	0.30	0.30
	カップリング剤1	0.50	0.30	0.30	0.30
	カップリング剤2	0.05			
	カップリング剤3		0.05		
	エポキシ樹脂1	1.85			
	エポキシ樹脂2	5.53			
	エポキシ樹脂3		9.27		
	エポキシ樹脂4			9.10	9.10
	硬化剤1	2.70			
	硬化剤2	0.99			
	硬化剤3		5.36		
	硬化剤4			6.60	6.60
	硬化促進剤1	0.14			
	硬化促進剤2	0.03		0.20	0.20
	硬化促進剤3		0.12		
	硬化促進剤4			0.10	0.10
	離型剤1	0.15	0.05	0.30	0.30
	難燃剤1			5.00	5.00
	イオン捕捉剤1	0.10	0.15		
低応力剤1	0.46	0.10	0.20	0.20	
合計		100.00	100.00	100.10	100.10

[0160] [表面改質材用樹脂組成物の調製]

後掲の表2および表3に従い配合された各原料を、室温下で2.5時間攪拌し、混合溶液を得た。その後、その混合溶液を孔径1.0 μ mのポリプロピレンフィルターで濾過した。このようにして、表面改質材用樹脂組成物を得た。

[0161] 表2および表3における各成分の原料の詳細は下記のとおりである。

なお、後述する[表面改質処理]において構造体上に表面改質材用樹脂組成物を塗布していない比較例1~5、7~10については、表2および3における表面改質材用樹脂組成物の組成を「-」として記載した。

[0162] < (A) フェノキシ樹脂 >

(A-1) ビスフェノールA骨格を含むフェノキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、品番：jER1256、Mw：51,000、エポキシ当量：7,800g/eq）

(A-2) ビスフェノールA骨格およびビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、品番：jER4275、Mw：60,000、エポキシ当量：9,000g/eq）

(A-3) ビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、品番：jERYX7105、Mw：3,000、エポキシ当量：487g/eq）

[0163] < (B) エポキシ樹脂 >

(B-1) 多官能エポキシ樹脂（日本化薬株式会社製、品番：EPPN201、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、官能基数：2～10）

[0164] < (C) 界面活性剤 >

(C-1) FC4432（3M社製、フッ素系）

[0165] < (D) 溶剤 >

(D-1) プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート（PGMEA）

(D-2) γ -ブチロラクトン（GBL）

[0166] [構造体の準備]

以下に示す方法によって、エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された第1領域を含む構造体を作成した。

[0167] (E-1) ~ (E-4)

耐熱性グレードがFR-4のガラス基材エポキシ樹脂銅張り積層板からなる、厚み0.1mm、幅77.5mm、長さ240mmの回路基板上に、厚み0.15mm、4mm角の半導体素子を銀ペーストにて接着したもの12個を、半導体素子を搭載した面が下向きになるようにして、基板固定手段により上型に固定した。次いで、各下地材（E-1）～（E-4）からなる樹

脂粒状体を下型キャビティ内に供給したのち、キャビティ内を減圧にしなが
ら、圧縮成形機（TOWA株式会社製）により、12個の半導体素子をパネ
ル成形し、表面に下地層が形成された構造体を得た。この際の成形条件は、
金型温度175℃、成形圧力2.0MPa、硬化時間120秒で行った。

[0168] (E-5)

8インチシリコンウェハ上に、3000Åの膜厚になるように(E-5)
をスパッタリングすることで、表面に下地層が形成された構造体を得た。

[0169] [表面改質処理]

塗布工程として、上記[構造体の準備]にて得られた構造体上に、表面改
質材用樹脂組成物をスピコートによって塗布した。

次いで、乾燥工程として、上記表面改質材用樹脂組成物がコートされた構
造体を110℃で3分乾燥して、構造体上に膜厚が5μmの表面改質用樹脂
膜を形成した。

その後、洗浄工程として、得られた表面改質用樹脂膜に対し、2500r
pmの回転数で回転させながらシクロペンタノンで30秒間吹き付け、その
後同回転数で20秒スピ乾燥をおこなうことで、構造体上の表面改質材用
樹脂膜を除去した。

この時、実施例においては上記塗布工程、上記乾燥工程および上記洗浄工
程を全て行ったが、比較例においては、上記洗浄工程のみを行ったか、もし
くは上記塗布工程、上記乾燥工程および上記洗浄工程をいずれも行わなかつ
た。

[0170] [感光性樹脂膜の作製]

上記[表面改質処理]後の構造体上に、感光性樹脂組成物をスピコート
によって塗布した。

次いで、上記感光性樹脂組成物がコートされた構造体を120℃で5分乾
燥して、構造体上に膜厚が5μmの感光性樹脂膜を形成した。

[0171] この時、感光性樹脂膜の作製に使用した感光性樹脂組成物の詳細は以下で
ある。これらは、ポリベンゾオキサゾール前駆体を含み、感光性樹脂組成物

である。

[0172] < (F) 感光性樹脂組成物 >

(F-1) ウェハーコート樹脂 (住友ベークライト株式会社製、品番: CR
C-8903)

(F-2) ウェハーコート樹脂 (住友ベークライト株式会社製、品番: CR
C-8300S)

[0173] [評価]

(感光性樹脂組成物の塗布性)

上記 [感光性樹脂膜の作製] にて得られた感光性樹脂膜が形成された構造体について、上記感光性樹脂膜の表面状態を目視にて観察し、塗布状態を以下の3段階から評価した。

結果を表2に示す。

良い: ハジキが発生せず、凹凸がなく平滑で均一な表面状態

悪い: 若干のハジキが発生したが、比較的軽微な凹凸を有する表面状態

とても悪い: ハジキが一部または全面で発生し、大きな凹凸を有する表面状態

[0174]

[表2]

表2		比較例1	比較例2	実施例1	比較例3	比較例4	実施例2	比較例5	比較例6	実施例3	比較例7	実施例4	比較例8	実施例5	実施例6	実施例7
表面改質材用樹脂組成物 〔真層部〕	A-1	—	—	30	—	—	30	—	0	30	—	30	—	30	0	0
	A-2	—	—	0	—	—	0	—	0	0	—	0	—	0	30	0
	A-3	—	—	0	—	—	0	—	0	0	—	0	—	0	0	30
	B-1	—	—	100	—	—	100	—	130	100	—	100	—	100	100	100
	C-1	—	—	0.1	—	—	0.1	—	0.1	0.1	—	0.1	—	0.1	0.1	0.1
	D-1	—	—	163	—	—	163	—	163	163	—	163	—	163	163	163
下地材	D-2	—	—	70	—	—	70	—	70	70	—	70	—	70	70	70
	E-1	使用	使用	使用	使用	使用	使用	—	—	—	—	—	—	—	使用	使用
	E-2	—	—	—	—	—	—	使用	使用	使用	—	—	—	—	—	—
	E-3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	使用	使用	—	—	—	—
感光性樹脂膜	E-4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	使用	—	—
	F-1	使用	使用	使用	—	—	—	使用	使用	使用	使用	使用	使用	使用	使用	使用
表面改質処理	F-2	—	—	—	使用	使用	使用	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	スピコンコート	—	—	実施	—	—	実施	—	実施	実施	実施	—	—	実施	実施	実施
		ソフトベーク(乾燥)	—	—	実施	—	—	実施	—	実施	実施	—	—	—	実施	実施
	洗浄	—	—	実施	—	—	実施	—	実施	実施	—	—	—	実施	実施	実施
感光性樹脂組成物の塗布性 (目視評価)		とても悪い	とても悪い	良い	とても悪い	悪い	良い	悪い	悪い	良い	とても悪い	良い	悪い	良い	良い	良い

[0175] 表2においては、各実施例で用いた下地材を「使用」と記載し、各実施例で用いた感光性樹脂組成物を「使用」と記載し、また、各実施例で行った表面改質処理を「実施」と記載した。

表2に示されるとおり、各実施例においては、表面改質材用樹脂組成物を用いた表面改質を行うことによって、感光性樹脂組成物の塗布性が向上し、構造体表面におけるハジキの発生が抑制できた。

[0176] (表面改質処理前後における感光性樹脂組成物の接触角)

まず、上記[構造体の準備]によって得られた下地層が形成された構造体に対し、感光性樹脂組成物(F-1)を2μL滴下した。その後、液滴が着滴してから10秒後の接触角を液滴法にて評価し、この時の接触角をθ1とした。なお、測定は接触角計(協和界面科学社製、DROPMAS-501)を用いて行った。

次いで、上記構造体について、上記[表面改質処理]に記載の方法で表面改質処理を行った。表面改質処理後の構造体に対し、同様の手法によって接触角を評価し、この時の接触角をθ2とした。

さらに、評価した接触角θ1とθ2の関係についても評価した。結果を表3に示す。

なお、比較例9および10では、表面改質処理を行っていないため、表面改質処理後の接触角θ2およびθ1とθ2の関係は評価していない。表3には「-」として記載した。

[0177] [表3]

表3			比較例9	比較例10	実施例8	実施例9
表面改質材用樹脂組成物 [質量部]	フェノキシ樹脂	A-1	-	-	30	30
	エポキシ樹脂	B-1	-	-	100	100
	界面活性剤	C-1	-	-	0.1	0.1
	溶剤	D-1	-	-	163	163
		D-2	-	-	70	70
下地材	エポキシ樹脂組成物	E-2	使用		使用	
	スパッタCu	E-5		使用		使用
感光性樹脂膜	感光性樹脂組成物	F-1	使用	使用	使用	使用
表面改質処理	スピコート		-	-	実施	実施
	ソフトベーク(乾燥)		-	-	実施	実施
	洗浄		-	-	実施	実施
表面改質処理前における感光性樹脂組成物の接触角θ1[°]			40	25	40	25
表面改質処理後における感光性樹脂組成物の接触角θ2[°]			-	-	33	27
θ1とθ2の関係			-	-	θ1>θ2	θ1<θ2
感光性樹脂組成物の塗布性 (目視評価)			悪い	悪い	良い	良い

[0178] 表3においては、各実施例で用いた下地材を「使用」と記載し、各実施例で用いた感光性樹脂組成物を「使用」と記載し、また、各実施例で行った表面改質処理を「実施」と記載した。

表3に示されるとおり、各実施例においては、表面改質材用樹脂組成物を用いた表面改質を行うことによって、構造体表面の樹脂領域においては接触角が低減し、金属領域においては接触角が増大することによって、樹脂領域および金属領域の接触角の差が小さくなっていた。これにより、構造体表面における濡れ性が均一化され、構造体表面におけるハジキの発生が抑制できたと考えられる。

[0179] この出願は、2022年3月30日に出願された日本出願特願2022-055266号を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

符号の説明

[0180]	1	電子デバイス
	10	エポキシ樹脂組成物硬化体
	110	導電膜
	20	ダイ
	30	電極パッド
	40	半導体チップ
	50	パッシベーション膜
	60	絶縁性樹脂膜

請求の範囲

- [請求項1] エポキシ樹脂組成物硬化体により形成された第1領域を含む構造体の表面に表面改質材用樹脂組成物を付着する工程と、
その後、前記表面から前記表面改質材用樹脂組成物を除去することにより前記表面を改質する工程と、
を含むプロセスに用いられる前記表面改質材用樹脂組成物であって、
当該表面改質材用樹脂組成物がフェノキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項2] 請求項1に記載の表面改質材用樹脂組成物において、
前記フェノキシ樹脂がビスフェノールA骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂、ビスフェノールA骨格とビスフェノールF骨格を含むフェノキシ樹脂からなる群より選択される1種または2種以上を含む、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項3] 請求項1または2に記載の表面改質材用樹脂組成物において、
前記フェノキシ樹脂の重量平均分子量M_wが2,500以上120,000以下である、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項4] 請求項1～3のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、
さらにエポキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項5] 請求項4に記載の表面改質材用樹脂組成物において、
前記エポキシ樹脂が3官能以上のエポキシ樹脂を含む、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項6] 請求項5に記載の表面改質材用樹脂組成物において、
前記エポキシ樹脂が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からなる群より選択される1種または2種以上を含む、表面改質材用樹脂組成物。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

さらに界面活性剤を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項8] 請求項1～7のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

さらに溶剤を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

前記エポキシ樹脂組成物硬化体が、さらに無機充填材を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項10] 請求項1～9のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

前記プロセスが、さらに表面を改質した前記表面に対して、ポリベンゾオキサゾール樹脂またはその前駆体、および、ポリイミド樹脂またはその前駆体、からなる群より選択される1種または2種以上を含む感光性樹脂組成物を付着させる工程を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項11] 請求項10に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

前記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する前記工程の前における前記第1領域の前記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、前記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後における前記第1領域の前記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 > \theta 2$ である、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項12] 請求項11に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

前記表面が、金属配線により形成された第2領域を含む、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項13] 請求項12に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

前記表面改質材用樹脂組成物は、表面改質材用樹脂組成物を付着する前記工程の前における前記第2領域の前記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 1$ 、前記表面改質材用樹脂組成物を除去する工程の後に

における前記第2領域の前記感光性樹脂組成物に対する接触角を $\theta 2$ としたとき、 $\theta 1 < \theta 2$ である、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項14] 請求項1～13のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

非感光性である、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項15] 請求項1～14のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

感光剤を実質的に含まない、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項16] 請求項1～15のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

硬化剤を実質的に含まない、表面改質材用樹脂組成物。

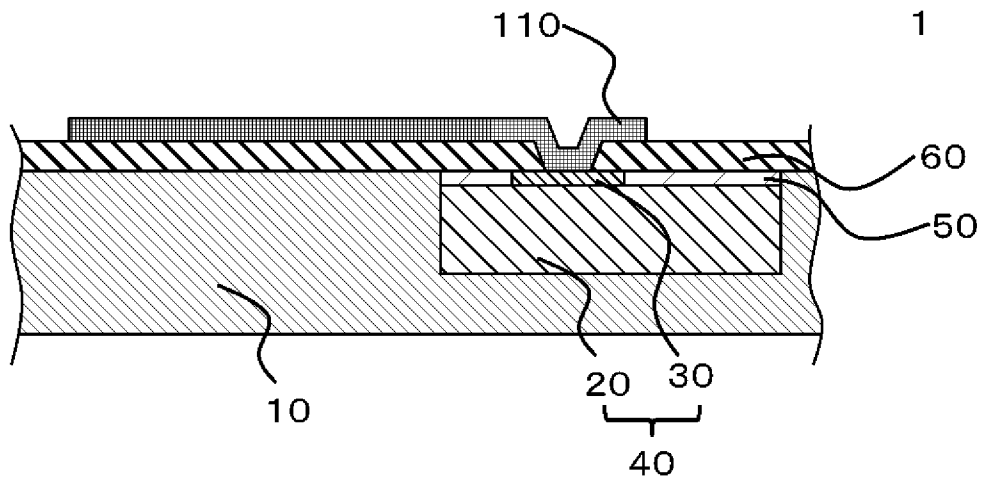
[請求項17] 請求項4～6のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

(前記エポキシ樹脂の量/前記フェノキシ樹脂の量)が、質量基準で1～10である、表面改質材用樹脂組成物。

[請求項18] 請求項1～17のいずれか1項に記載の表面改質材用樹脂組成物において、

電子デバイスの製造に用いられる、表面改質材用樹脂組成物。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/012147

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>C08J 7/12</i>(2006.01)i; <i>C08K 3/013</i>(2018.01)i; <i>C08L 63/00</i>(2006.01)i; <i>C08L 63/04</i>(2006.01)i; <i>C08L 71/10</i>(2006.01)i; <i>C23C 26/00</i>(2006.01)i FI: C08J7/12 A CFC; C08L71/10; C08L63/00; C08L63/04; C08K3/013; C23C26/00 A</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) C08J7/00-7/02;7/12-7/18; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; C23C24/00-30/00; C09D1/00-10/00;101/00-201/10		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-255140 A (FUJIFILM CORP) 23 October 2008 (2008-10-23) entire text	1-18
A	JP 2013-028713 A (DAICEL CORP) 07 February 2013 (2013-02-07) entire text	1-18
A	JP 2007-211114 A (NIPPON SHOKUBAI CO LTD) 23 August 2007 (2007-08-23) entire text	1-18
A	JP 2012-214872 A (FUJIFILM CORP) 08 November 2012 (2012-11-08) entire text	1-18
A	JP 2003-020323 A (CANON INC) 24 January 2003 (2003-01-24) entire text	1-18
<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 12 June 2023		Date of mailing of the international search report 20 June 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2023/012147

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2008-255140	A 23 October 2008	(Family: none)	
JP 2013-028713	A 07 February 2013	(Family: none)	
JP 2007-211114	A 23 August 2007	(Family: none)	
JP 2012-214872	A 08 November 2012	(Family: none)	
JP 2003-020323	A 24 January 2003	US 2003/0025760 A1 entire text EP 1251151 A2	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08J 7/12(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 63/04(2006.01)i; C08L 71/10(2006.01)i; C23C 26/00(2006.01)i FI: C08J7/12 A CFC; C08L71/10; C08L63/00; C08L63/04; C08K3/013; C23C26/00 A</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）） C08J7/00-7/02;7/12-7/18; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; C23C24/00-30/00; C09D1/00-10/00;101/00-201/10</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>			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>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>										
<p>C. 関連すると認められる文献</p>										
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 2008-255140 A（富士フイルム株式会社）23.10.2008（2008-10-23） 文献全体	1-18								
A	JP 2013-028713 A（株式会社ダイセル）07.02.2013（2013-02-07） 文献全体	1-18								
A	JP 2007-211114 A（株式会社日本触媒）23.08.2007（2007-08-23） 文献全体	1-18								
A	JP 2012-214872 A（富士フイルム株式会社）08.11.2012（2012-11-08） 文献全体	1-18								
A	JP 2003-020323 A（キヤノン株式会社）24.01.2003（2003-01-24） 文献全体	1-18								
<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 “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 “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献</p>										
国際調査を完了した日	12.06.2023	国際調査報告の発送日 20.06.2023								
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 大村 博一 4F 3973 電話番号 03-3581-1101 内線 3430									

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/JP2023/012147

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2008-255140 A	23.10.2008	(ファミリーなし)	
JP 2013-028713 A	07.02.2013	(ファミリーなし)	
JP 2007-211114 A	23.08.2007	(ファミリーなし)	
JP 2012-214872 A	08.11.2012	(ファミリーなし)	
JP 2003-020323 A	24.01.2003	US 2003/0025760 A1 文献全体 EP 1251151 A2	