

(21)申請案號：098132117

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 09 月 23 日

(51)Int. Cl. : C08G59/20 (2006.01)

C08G59/40 (2006.01)

C08J5/02 (2006.01)

(30)優先權：2008/09/24 日本 2008-244554

(71)申請人：積水化學工業股份有限公司 (日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：後藤信弘 GOTO, NOBUHIRO (JP)；瓶子克 HEISHI, MASARU (JP)；村上淳之介 MURAKAMI, JUNNOSUKE (JP)

(74)代理人：陳長文

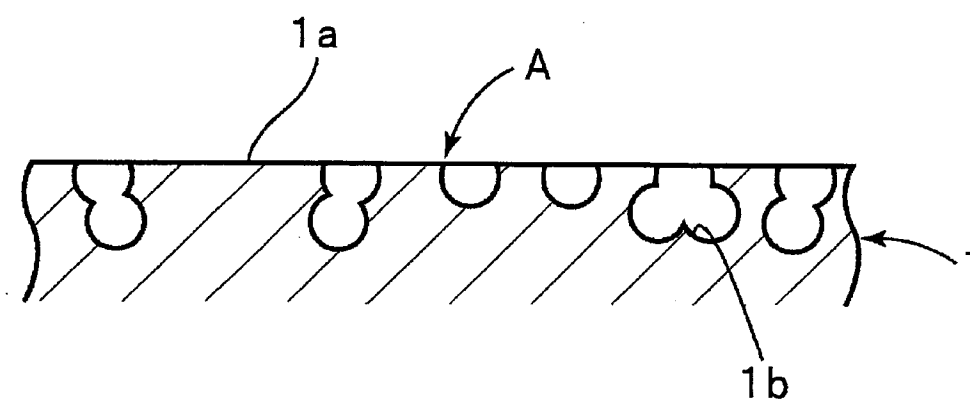
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：16 項 圖式數：2 共 52 頁

(54)名稱

半硬化體、硬化體、積層體、半硬化體之製造方法及硬化體之製造方法

(57)摘要

本發明提供一種半硬化體、及使用該半硬化體之積層體，其可減小經粗化處理之表面之表面粗糙度，進而於硬化後之硬化體之表面形成有金屬層時，可提高硬化體與金屬層之接著強度。半硬化體 1 係藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成，該反應物係使含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為 $1\mu\text{m}$ 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於 23°C 下於甲基乙基酮中浸漬 24 小時後之凝膠分率達到 90% 以上的方式進行反應而獲得者。積層體包含藉由使半硬化體 1 硬化而獲得之硬化體、以及於該硬化體之表面藉由鍍敷處理而形成之金屬層。硬化體與金屬層之接著強度為 4.9N/cm 以上。



1：半硬化體

1a：上面

1b：孔

(21)申請案號：098132117

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 09 月 23 日

(51)Int. Cl. : C08G59/20 (2006.01)

C08G59/40 (2006.01)

C08J5/02 (2006.01)

(30)優先權：2008/09/24 日本 2008-244554

(71)申請人：積水化學工業股份有限公司 (日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：後藤信弘 GOTO, NOBUHIRO (JP)；瓶子克 HEISHI, MASARU (JP)；村上淳之介 MURAKAMI, JUNNOSUKE (JP)

(74)代理人：陳長文

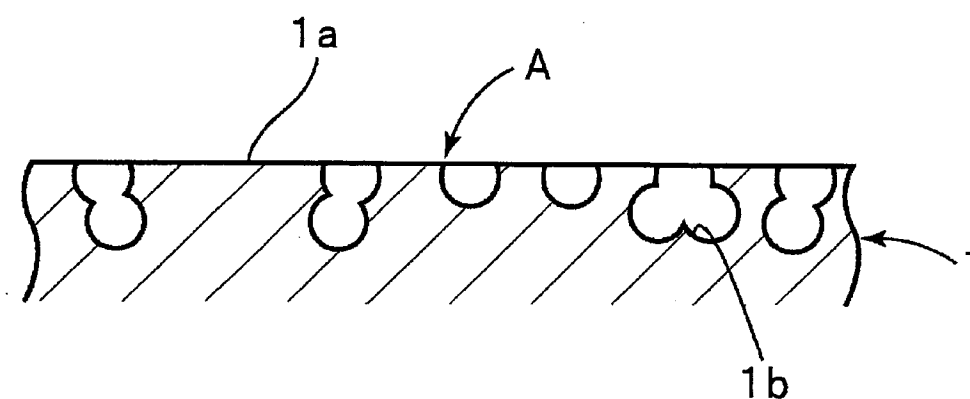
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：16 項 圖式數：2 共 52 頁

(54)名稱

半硬化體、硬化體、積層體、半硬化體之製造方法及硬化體之製造方法

(57)摘要

本發明提供一種半硬化體、及使用該半硬化體之積層體，其可減小經粗化處理之表面之表面粗糙度，進而於硬化後之硬化體之表面形成有金屬層時，可提高硬化體與金屬層之接著強度。半硬化體 1 係藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成，該反應物係使含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為 $1\mu\text{m}$ 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於 23°C 下於甲基乙基酮中浸漬 24 小時後之凝膠分率達到 90% 以上的方式進行反應而獲得者。積層體包含藉由使半硬化體 1 硬化而獲得之硬化體、以及於該硬化體之表面藉由鍍敷處理而形成之金屬層。硬化體與金屬層之接著強度為 4.9N/cm 以上。



1：半硬化體

1a：上面

1b：孔

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種半硬化體、使用該半硬化體之硬化體及積層體、半硬化體之製造方法及硬化體之製造方法，上述半硬化體係藉由使含有環氧樹脂、硬化劑及二氧化矽成分之樹脂組合物反應而形成反應物後，對該反應物進行粗化處理而形成者。

【先前技術】

先前，為了形成多層基板或半導體裝置等，而使用各種熱硬化性樹脂組合物。

例如於下述專利文獻1中揭示有一種環氧樹脂組合物，其係含有雙酚A型環氧樹脂、分子中具有磷雜菲類結構之改質苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、分子中含有三吡環之苯酚酚醛清漆硬化劑、以及無機填充材料。其中記載，將藉由環氧樹脂組合物所形成之預浸體、樹脂薄膜或樹脂清漆於100~200℃下加熱1~90分鐘，藉此形成樹脂絕緣層後，利用粗化液對樹脂絕緣層之表面進行粗化處理。

[先行技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻1]日本專利特開2008-074929號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

然而，於專利文獻1中，存在經粗化處理之樹脂絕緣層表面之表面粗糙度無法達到足夠小之情形。進而，於樹脂

絕緣層之表面藉由鍍敷處理而形成金屬層時，存在樹脂絕緣層與金屬層之接著強度較低之情形。

本發明之目的在於提供一種半硬化體、使用該半硬化體之硬化體及積層體、半硬化體之製造方法及硬化體之製造方法，其可減小經粗化處理之表面之表面粗糙度，進而於硬化後之硬化體之表面形成有金屬層時，可提高硬化體與金屬層之接著強度。

[解決問題之技術手段]

根據本發明，提供一種半硬化體，其係藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成，該反應物係使含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於23 $^{\circ}\text{C}$ 下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式進行反應而獲得者。

於本發明中，較好的是使上述樹脂組合物以於23 $^{\circ}\text{C}$ 下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到95%以上的方式進行反應。於此情形時，可進一步減小經粗化處理之半硬化體表面之表面粗糙度。

於本發明之半硬化體之某一特定態樣中，經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra為0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度Rz為3.0 μm 以下。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，上述環氧樹脂係選自由具有萘結構之環氧樹脂、具有二環戊二烯結構之環氧樹脂、具有聯苯結構之環氧樹脂、具有蒽結構之環氧

樹脂、具有雙酚A結構之環氧樹脂及具有雙酚F結構之環氧樹脂所組成群中的至少一種。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，上述硬化劑為選自由具有萘結構之酚化合物、具有二環戊二烯結構之酚化合物、具有聯苯結構之酚化合物、具有胺基三吡結構之酚化合物、活性酯化合物及氰酸酯樹脂(cyanate resin)所組成群中之至少一種。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，上述樹脂組合物進而於0.01~3重量份之範圍內含有咪唑矽烷化合物。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，係於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之粗化處理。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，係於上述粗化處理之前，對上述反應物進行膨潤處理。

於本發明之半硬化體之又一特定態樣中，係於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之膨潤處理。

本發明之硬化體係藉由使根據本發明而構成之半硬化體硬化而獲得。

於本發明之硬化體之某一特定態樣中，係藉由使上述半硬化體於130~200℃下硬化而獲得硬化體。

本發明之積層體包含根據本發明而構成之硬化體、以及於該硬化體之表面藉由鍍敷處理而形成之金屬層，且上述硬化體與上述金屬層之接著強度為4.9 N/cm以上。

本發明之半硬化體之製造方法包括以下步驟：使用含有

環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式使上述樹脂組合物反應而形成反應物；以及藉由對上述反應物進行粗化處理而形成半硬化體。

於本發明之半硬化體之製造方法的某一特定態樣中，於上述粗化處理之前，進而包括對上述反應物進行膨潤處理之步驟。

於本發明之硬化體之製造方法中，藉由將利用上述半硬化體之製造方法所獲得之半硬化體於130~200℃下硬化而獲得硬化體。

[發明之效果]

本發明之半硬化體由於係藉由對使含有環氧樹脂、硬化劑、以及對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使上述凝膠分率達到90%以上之方式進行反應而獲得的反應物進行粗化處理而形成，故而可減小經粗化處理之表面之表面粗糙度。進而，於藉由使半硬化體硬化而形成之硬化體之表面形成有鍍銅層等金屬層時，可提高硬化體與金屬層之接著強度。

【實施方式】

本案發明者等人發現，藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成半硬化體，即該反應物係使含有環氧樹脂、硬化

劑、以及對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分的樹脂組合物，以於23°C下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式進行反應而獲得者，可減小經粗化處理之半硬化體表面之表面粗糙度，且可提高硬化體與金屬層之接著強度，從而完成本發明。

用於形成本發明之半硬化體之樹脂組合物含有環氧樹脂、硬化劑、以及對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分。

本發明之半硬化體係藉由對使上述特定之樹脂組合物以於23°C下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式進行反應而獲得的反應物進行粗化處理而形成。

本發明之特徵在於：使用上述特定之樹脂組合物、以及使該樹脂組合物以滿足上述特定之凝膠分率之方式進行反應。藉由滿足該兩個必要條件，可減小經粗化處理之半硬化體表面之表面粗糙度。例如可獲得經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra為0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度Rz為3.0 μm 以下之半硬化體。上述樹脂組合物較好的是以使上述凝膠分率達到95%以上之方式進行反應。於此情形時，可進一步減小半硬化體表面之表面粗糙度。

使上述樹脂組合物以使上述凝膠分率達到90%以上之方式進行反應時之反應可為熱硬化反應，亦可為光硬化反應，亦可為電子束硬化等藉由其他觸發(trigger)之反應。

具體而言，上述凝膠分率係以如下方式測定。

將使上述樹脂組合物反應而得之半硬化體(反應物)於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時後，使用篩網將半硬化體之殘留物自甲基乙基酮中取出。將自甲基乙基酮中取出之殘留物於23℃下乾燥72小時。繼而，測定乾燥後之殘留物之重量，並可利用下述式(1)計算出凝膠分率。

$$\text{凝膠分率(\%)} = W2/W1 \times 100 \quad \cdots \text{式(1)}$$

W1：浸漬於甲基乙基酮前之半硬化體之重量

W2：乾燥後之半硬化體之殘留物之重量

首先，就上述樹脂組合物中所含之各成分說明以下。

(環氧樹脂)

上述樹脂組合物中所含之環氧樹脂係含有至少一個環氧基(環氧乙烷環)之有機化合物。每一分子之上述環氧樹脂中，環氧基之數為1以上。該環氧基之數更好的是2以上。

作為上述環氧樹脂，可使用先前公知之環氧樹脂。環氧樹脂可僅使用一種，亦可併用兩種以上。上述環氧樹脂亦包含環氧樹脂之衍生物及環氧樹脂之氫化物。

作為上述環氧樹脂，例如可列舉：芳香族環氧樹脂、脂環族環氧樹脂、脂肪族環氧樹脂、縮水甘油酯型環氧樹脂、縮水甘油胺型環氧樹脂、縮水甘油基丙烯酸型環氧樹脂或聚酯型環氧樹脂等。

又，作為上述環氧樹脂，可較好地使用可撓性環氧樹脂。藉由使用可撓性環氧樹脂，可提高硬化體之柔軟性。

作為上述可撓性環氧樹脂，可列舉：聚乙二醇之二縮水

甘油醚、聚丙二醇之二縮水甘油醚、長鏈多元醇之聚縮水甘油醚、(甲基)丙烯酸縮水甘油酯與自由基聚合性單體之共聚物、含環氧基之聚酯樹脂、將以共軛二烯化合物作為主體之(共)聚合物之碳-碳雙鍵環氧化而得之化合物、將以共軛二烯化合物作為主體之(共)聚合物之部分氫化物的碳-碳雙鍵環氧化而得之化合物、胺基甲酸酯改質環氧樹脂或聚己內酯改質環氧樹脂等。

進而，作為上述可撓性環氧樹脂，可列舉：於二聚酸或二聚酸之衍生物之分子內導入環氧基之二聚酸改質環氧樹脂、或者於橡膠成分之分子內導入環氧基之橡膠改質環氧樹脂等。

作為上述橡膠成分，可列舉：NBR(acrylonitrile butadiene rubber，丁腈橡膠)、CTBN(carboxyl-terminated butadiene acrylonitrile rubber，端羧基丁腈橡膠)、聚丁二烯或丙烯酸系橡膠等。

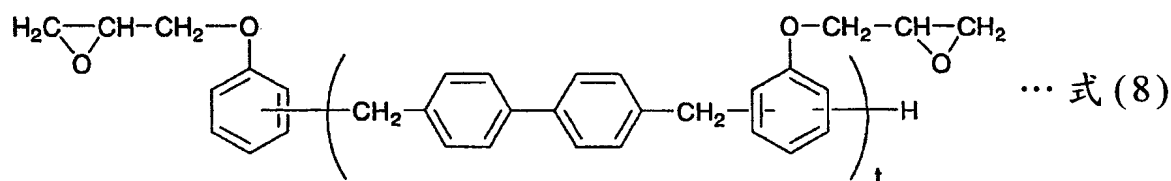
上述可撓性環氧樹脂較好的是含有丁二烯骨架。藉由使用含有丁二烯骨架之可撓性環氧樹脂，可進一步提高硬化體之柔軟性。又，可於遍及自低溫區域至高溫區域的較廣之溫度範圍中提高硬化體之伸度。

上述環氧樹脂較好的是選自由具有萘結構之萘型環氧樹脂、具有二環戊二烯結構之二環戊二烯型環氧樹脂、具有聯苯結構之聯苯型環氧樹脂、具有蒽結構之蒽型環氧樹脂、具有雙酚A結構之雙酚A型環氧樹脂及具有雙酚F結構之雙酚F型環氧樹脂所組成群中的至少一種。於此情形

時，可進一步減小半硬化體表面之表面粗糙度。

上述聯苯型環氧樹脂較好的是以下述式(8)所表示之聯苯型環氧樹脂。藉由使用該較佳之聯苯型環氧樹脂，可進一步降低硬化體之線膨脹係數。

[化 1]



上述式(8)中， t 表示1~11之整數。

上述環氧樹脂較好的是萘型環氧樹脂、蒽型環氧樹脂或二環戊二烯型環氧樹脂。藉由使用該較佳之環氧樹脂，可降低硬化體之線膨脹係數。上述環氧樹脂更好的是蒽型環氧樹脂，其原因在於可進一步降低硬化體之線膨脹係數。

(硬化劑)

上述硬化劑只要可使上述環氧樹脂硬化則並無特別限定。作為硬化劑，可使用先前公知之硬化劑。

作為上述硬化劑，例如可列舉：二氰二胺、胺化合物、由胺化合物合成之化合物、醯肼化合物、三聚氰胺化合物、酸酐、酚化合物(酚硬化劑)、活性酯化合物、苯并噁吡化合物、順丁烯二醯亞胺化合物、熱潛伏性陽離子聚合觸媒、光潛伏性陽離子聚合起始劑或氰酸酯樹脂等。亦可使用該等硬化劑之衍生物。硬化劑可僅使用一種，亦可併用兩種以上。又，亦可與硬化劑一同使用乙醯丙酮鐵等之硬化觸媒。

作為上述胺化合物，例如可列舉：鏈狀脂肪族胺化合物、環狀脂肪族胺化合物或芳香族胺化合物等。

作為上述鏈狀脂肪族胺化合物，例如可列舉：乙二胺、二乙三胺、三乙四胺、四乙五胺、聚氧丙烯二胺或聚氧丙烯三胺等。

作為上述環狀脂肪族胺化合物，例如可列舉：蓋二胺、異佛爾酮二胺、雙(4-胺基-3-甲基環己基)甲烷、二胺基二環己基甲烷、雙(胺基甲基)環己烷或N-胺基乙基哌啶等。

作為上述芳香族胺化合物，例如可列舉：間二甲苯二胺、 α -(間/對胺基苯基)乙胺、間苯二胺、二胺基二苯基甲烷或 α,α -雙(4-胺基苯基)-對二異丙基苯等。

作為上述胺化合物，亦可使用三級胺化合物。作為三級胺化合物，例如可列舉：N,N-二甲基哌啶、吡啶、甲基吡啶、二甲苳胺、2-(二甲基胺基甲基)苯酚、2,4,6-三(二甲基胺基甲基)苯酚等。

作為由上述胺化合物合成之化合物之具體例，可列舉：聚胺基醯胺化合物、聚胺基醯亞胺化合物或酮亞胺化合物等。

作為上述聚胺基醯胺化合物，例如可列舉由上述胺化合物與羧酸所合成之化合物等。作為上述羧酸，例如可列舉：丁二酸、己二酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、二氫間苯二甲酸、四氫間苯二甲酸或六氫間苯二甲酸等。

作為上述聚胺基醯亞胺化合物，例如可列舉由上述胺化合物與順丁烯二醯亞胺化合物所合成之化合物等。作為上

述順丁烯二醯亞胺化合物，例如可列舉二胺基二苯基甲烷雙順丁烯二醯亞胺等。

作為由上述胺化合物合成之化合物之其他具體例，可列舉：由上述胺化合物與環氧化合物、脲化合物、硫脲化合物、醛化合物、酚化合物或丙烯酸系化合物所合成之化合物等。

作為上述醯肼化合物，例如可列舉：1,3-雙(肼基羰乙基)-5-異丙基乙內醯脲、7,11-十八碳二烯-1,18-二甲酸二醯肼、二十烷二酸二醯肼或己二酸二醯肼等。

作為上述三聚氰胺化合物，例如可列舉2,4-二胺基-6-乙烯基-1,3,5-三吡等。

作為上述酸酐，例如可列舉：鄰苯二甲酸酐、偏苯三甲酸酐、均苯四甲酸二酐、二苯甲酮四甲酸二酐、甲基四氫苯二甲酸酐、四氫苯二甲酸酐、三烷基四氫苯二甲酸酐、六氫苯二甲酸酐或甲基六氫苯二甲酸酐等。

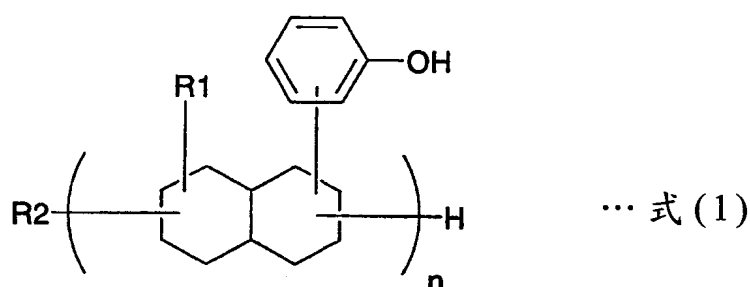
作為上述酚化合物，例如可列舉：苯酚酚醛清漆、鄰甲酚酚醛清漆、對甲酚酚醛清漆、第三丁基苯酚酚醛清漆、二環戊二烯甲酚、苯酚芳烷基樹脂、 α -萘酚芳烷基樹脂、 β -萘酚芳烷基樹脂或胺基三吡酚醛清漆樹脂等。作為酚化合物，亦可使用該等之衍生物。酚化合物可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為上述硬化劑，可較好地使用上述酚化合物。藉由使用上述酚化合物，可提高硬化體之耐熱性及尺寸穩定性，進而可降低硬化體之吸水性。進而，可進一步減小半硬化

體表面之表面粗糙度。具體而言，可進一步減小半硬化體表面之算術平均粗糙度Ra及十點平均粗糙度Rz。

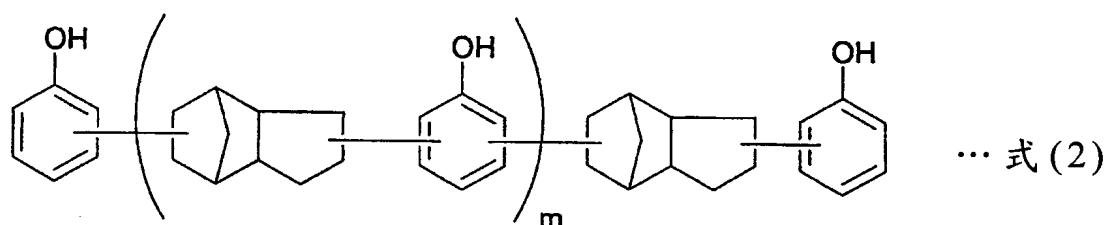
作為上述硬化劑，可更好地使用以下述式(1)、下述式(2)及下述式(3)中之任一者所表示之酚化合物。於此情形時，可進一步減小半硬化體表面之表面粗糙度。

[化2]



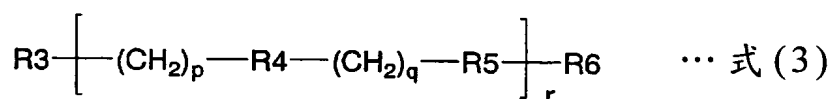
上述式(1)中，R1表示甲基或乙基，R2表示氫或烴基，n表示2~4之整數。

[化3]



上述式(2)中，m表示0~5之整數。

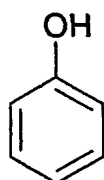
[化4]



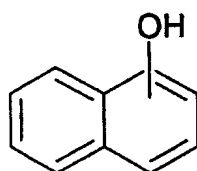
上述式(3)中，R3表示以下述式(4a)或下述式(4b)所表示之基，R4表示以下述式(5a)、下述式(5b)或下述式(5c)所表示之基，R5表示以下述式(6a)或下述式(6b)所表示之基，

R6表示氫或碳數為1~20之有機基，p表示1~6之整數，q表示1~6之整數，r表示1~11之整數。

[化5]

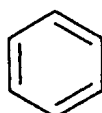


(4a)

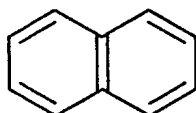


(4b)

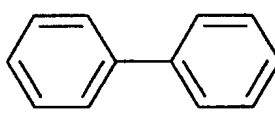
[化6]



(5a)

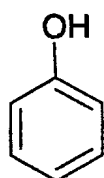


(5b)

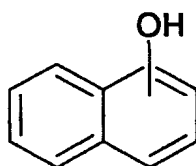


(5c)

[化7]



(6a)



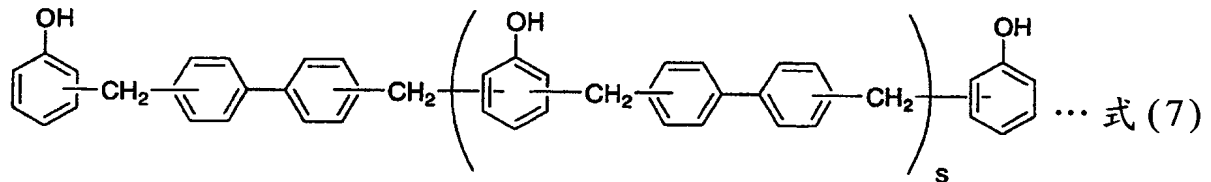
(6b)

其中，較好的是係以上述式(3)所表示之酚化合物，且上述式(3)中之R4為以上述式(5c)所表示之基的具有聯苯結構之酚化合物。藉由使用該較佳之硬化劑，可進一步提高硬化體之電性特性及耐熱性。進而，可進一步提高經歷受熱歷程時硬化體之尺寸穩定性。

上述硬化劑特別好的是具有以下述式(7)所示之結構之酚化合物。於此情形時，可進一步提高硬化體之電性特性

及耐熱性。進而，可進一步提高經歷受熱歷程時硬化體之尺寸穩定性。

[化 8]



上述式(7)中，s表示1~11之整數。

作為上述活性酯化合物，例如可列舉芳香族多元酯化合物等。藉由使用活性酯化合物，可獲得介電常數及介電損耗正切優異之硬化體。上述活性酯化合物之具體例例如揭示於日本專利特開2002-12650號公報中。

作為上述活性酯化合物之市售品，例如可列舉：DIC公司製造之商品名「EPICLON EXB9451-65T」及「EPICLON EXB9460S-65T」等。

作為上述氰酸酯樹脂(cyanate ester resin)，例如可使用：酚醛清漆型氰酸酯樹脂、雙酚型氰酸酯樹脂及一部分經三吡化之預聚物等。藉由使用氰酸酯樹脂，可進一步降低硬化體之線膨脹係數。

上述順丁烯二醯亞胺化合物較好的是選自由以下化合物所組成群中之至少一種：N,N'-4,4'-二苯基甲烷雙順丁烯二醯亞胺、N,N'-1,3-二苯基雙順丁烯二醯亞胺、N,N'-1,4-二苯基雙順丁烯二醯亞胺、1,2-雙(順丁烯二醯亞胺)乙烷、1,6-雙順丁烯二醯亞胺己烷、雙(3-乙基-5-甲基-4-順丁烯

二醯亞胺苯基)甲烷、聚苯基甲烷順丁烯二醯亞胺、雙酚A二苯醚雙順丁烯二醯亞胺、4-甲基-1,3-伸苯基雙順丁烯二醯亞胺、1,6-雙順丁烯二醯亞胺-(2,2,4-三甲基)己烷及該等之低聚物、以及含順丁烯二醯亞胺骨架之二胺縮合物。藉由使用該等較佳之順丁烯二醯亞胺化合物，可進一步降低硬化體之線膨脹係數，且可進一步提高硬化體之玻璃轉移溫度。上述低聚物係藉由使上述順丁烯二醯亞胺化合物中之單體即順丁烯二醯亞胺化合物縮合而獲得之低聚物。

其中，上述順丁烯二醯亞胺化合物更好的是聚苯基甲烷順丁烯二醯亞胺及雙順丁烯二醯亞胺低聚物中之至少一方。上述雙順丁烯二醯亞胺低聚物較好的是藉由使苯基甲烷雙順丁烯二醯亞胺與4,4'-二胺基二苯基甲烷而獲得之低聚物。藉由使用該等較佳之順丁烯二醯亞胺化合物，可進一步降低硬化體之線膨脹係數，且可進一步提高硬化體之玻璃轉移溫度。

作為上述順丁烯二醯亞胺化合物之市售品，可列舉：聚苯基甲烷順丁烯二醯亞胺(大和化成公司製造，商品名「BMI-2300」)、以及雙順丁烯二醯亞胺低聚物(大和化成公司製造，商品名「DAIMAID-100H」)等。

上述硬化劑較好的是選自由酚化合物、活性酯化合物及氰酸酯樹脂所組成群中之至少一種。上述硬化劑較好的是酚化合物或活性酯化合物。於使用該等較佳之硬化劑之情形時，對上述反應物進行粗化處理時，樹脂成分不易因粗化處理而受到不良影響。上述氰酸酯樹脂較好的是氰酸酯

樹脂。

於使用活性酯化合物或苯并呋喃化合物、尤其是活性酯化合物作為上述硬化劑之情形時，可獲得介電常數及介電損耗正切更加優異之硬化體。活性酯化合物較好的是芳香族多元酯化合物。藉由使用芳香族多元酯化合物，可獲得介電常數及介電損耗正切更加優異之硬化體。

上述硬化劑特別好的是選自由具有萘結構之酚化合物、具有二環戊二烯結構之酚化合物、具有聯苯結構之酚化合物、具有胺基三吡結構之酚化合物、活性酯化合物及氰酸酯樹脂所組成群中之至少一種。藉由使用該等較佳之硬化劑，對上述反應物進行粗化處理時，樹脂成分更加不容易因粗化處理而受到不良影響。具體而言，實施粗化處理時，可使二氧化矽成分選擇性地脫離，形成微細之孔，而不會使上述反應物之表面變得過度粗糙。因此，可於半硬化體之表面形成表面粗糙度非常小的微細之凹凸。其中，較好的是具有聯苯結構之酚化合物。

使用具有聯苯結構之酚化合物或具有萘結構之酚化合物時，可獲得電性特性、尤其是介電損耗正切優異，且強度及線膨脹係數亦優異，並且吸水率較低之硬化體。

環氧樹脂及硬化劑之分子量較大，容易在半硬化體之表面形成微細之粗糙面。環氧樹脂之重量平均分子量有時會對形成微細之粗糙面產生影響。其中，有時硬化劑之重量平均分子量會對形成微細之粗糙面產生較環氧樹脂之重量平均分子量更大的影響。硬化劑之重量平均分子量較好的

是500以上，更好的是1800以上。硬化劑之重量平均分子量之較佳上限為15000。

又，環氧樹脂之環氧當量及硬化劑之當量較大時，容易在半硬化體之表面形成微細之粗糙面。進而，當硬化劑為固體，且硬化劑之軟化溫度為60℃以上時，容易在半硬化體之表面形成微細之粗糙面。

相對於上述環氧樹脂100重量份，上述硬化劑之含量較好的是1~200重量份之範圍內。若硬化劑之含量過少，則存在樹脂組合物無法充分硬化之情形。若硬化劑之含量過多，則存在使環氧樹脂硬化之效果飽和之情形。上述硬化劑之含量之較佳下限為30重量份，較佳上限為140重量份。

(硬化促進劑)

上述樹脂組合物較好的是含有硬化促進劑。於本發明中，硬化促進劑為任意成分。對硬化促進劑並無特別限定。

上述硬化促進劑較好的是咪唑硬化促進劑。該咪唑硬化促進劑較好的是選自由以下化合物所組成群中之至少一種：2-十一烷基咪唑、2-十七烷基咪唑、2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、1-苄基-2-甲基咪唑、1-苄基-2-苯基咪唑、1,2-二甲基咪唑、1-氰基乙基-2-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-氰基乙基-2-十一烷基咪唑、1-氰基乙基-2-苯基咪唑、偏苯三甲酸1-氰基乙基-2-十一烷基咪唑鎧鹽、偏苯三甲酸1-

氰基乙基-2-苯基咪唑鎓鹽、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-十一烷基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-乙基-4'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡、2,4-二胺基-6-[2'-甲基咪唑基-(1')]-乙基-均三吡異三聚氰酸加成物、2-苯基咪唑異三聚氰酸加成物、2-甲基咪唑異三聚氰酸加成物、2-苯基-4,5-二羥基甲基咪唑及2-苯基-4-甲基-5-二羥基甲基咪唑。

進而，作為上述硬化促進劑，可列舉：三苯基膦等膦化合物、二氮雜雙環十一烯(DBU, Diazabicycloundecene)、二氮雜雙環壬烯(DBN, Diazabicyclononene)、DBU之酚鹽、DBN之酚鹽、辛酸鹽、對甲苯磺酸鹽、甲酸鹽、鄰苯二甲酸鹽或苯酚酚醛清漆樹脂鹽等。

相對於上述環氧樹脂100重量份，上述硬化促進劑之含量較好的是0.01~3重量份之範圍內。若硬化促進劑之含量過少，則存在樹脂組合物無法充分硬化之情形。

於本發明中，即使不添加硬化促進劑，亦可減小半硬化體表面之表面粗糙度。但是，於不添加硬化促進劑之情形時，存在樹脂組合物之硬化無法充分地進行而導致Tg降低，或者硬化體之強度無法充分地提高之情形。

若上述硬化促進劑之含量過多，則存在使樹脂組合物半硬化或硬化時，硬化變得不均勻之情形。並且，樹脂組合物之保存穩定性有可能會變差。上述硬化促進劑之含量之較佳下限為0.5重量份，較佳上限為2.0重量份。

(二氧化矽成分)

上述樹脂組合物含有對二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分。二氧化矽成分可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

上述二氧化矽粒子之平均粒徑為1 μm 以下。藉由使平均粒徑為1 μm 以下，可於半硬化體之表面形成微細之粗糙面。又，可於半硬化體之表面形成平均直徑為1 μm 以下左右之大小的微細之孔。上述二氧化矽粒子之平均粒徑較好的是100 nm以上。

若上述二氧化矽粒子之平均粒徑大於1 μm ，則對上述反應物進行粗化處理時，二氧化矽成分難以脫離。又，當為了於半硬化體之表面形成金屬層而實施鍍敷處理時，存在鍍敷層潛入至未脫離之二氧化矽成分與樹脂成分之空隙中的情形。因此，於形成金屬層作為電路之情形時，電路有可能會產生故障。

於使用具有萘結構、二環戊二烯結構、聯苯結構及胺基三吡結構中之任一種結構之酚化合物、芳香族多元酯化合物或苯并呋喃化合物作為硬化劑之情形時，難以藉由粗化處理而將二氧化矽成分周邊之樹脂成分剷除。於此情形時，若二氧化矽粒子之平均粒徑大於1 μm ，則二氧化矽成分更加難以脫離，因而粗化剷離強度降低。

作為上述二氧化矽粒子之平均粒徑，可採用達到50%之中位直徑(d_{50})之值。上述平均粒徑可使用雷射繞射散射方式之粒度分布測定裝置來測定。

亦可使用平均粒徑不同之複數種二氧化矽粒子。考慮到

細密填充，較好的是使用粒度分布不同之複數種二氧化矽粒子。於此情形時，例如於零件內藏基板等要求流動性之用途中，可較好地使用樹脂組合物。又，藉由使用與上述二氧化矽成分不同之平均粒徑為幾十nm之二氧化矽粒子，可提高樹脂組合物之黏度，或可控制觸變性。

二氧化矽粒子之最大粒徑較好的是5 μm 以下。若最大粒徑為5 μm 以下，則對上述反應物進行粗化處理時，二氧化矽成分變得更容易脫離。進而，不易於半硬化體之表面產生相對較大的孔，可形成均勻且微細之凹凸。

於使用具有萘結構、二環戊二烯結構、聯苯結構及胺基三吡結構中的任一種結構之酚化合物、芳香族多元酯化合物或苯并呋喃化合物作為硬化劑硬化劑之情形時，粗化液難以自上述反應物之表面滲透至上述反應物內，二氧化矽成分相對較難脫離。但是，藉由使用最大粒徑為5 μm 以下之二氧化矽成分，可使二氧化矽成分容易地脫離。於半硬化體之表面形成L/S為15 μm /15 μm 以下之微細佈線時，二氧化矽之最大粒徑較好的是2 μm 以下，其原因在於可提高絕緣可靠性。再者，所謂「L/S」係指佈線之寬度方向上之尺寸(L)/未形成佈線之部分之寬度方向上之尺寸(S)。

對二氧化矽粒子之形狀並無特別限定。作為二氧化矽粒子之形狀，例如可列舉球狀或不定形狀等。二氧化矽粒子較好的是球狀，更好的是圓球狀，其原因在於，對上述反應物進行粗化處理時二氧化矽成分更容易脫離。

二氧化矽粒子之比表面積較好的是3 m^2/g 以上。若比表

面積未達 $3 \text{ m}^2/\text{g}$ ，則存在硬化體之機械特性下降之虞。進而，存在硬化體與金屬層之密著性下降之情形。上述比表面積可藉由 BET 法而求得。

作為上述二氧化矽粒子，可列舉：將天然二氧化矽原料粉碎而獲得之結晶二氧化矽，對天然二氧化矽原料進行火焰熔融並粉碎而獲得之粉碎熔融二氧化矽，對天然二氧化矽原料進行火焰熔融、粉碎及火焰熔融而獲得之球狀熔融二氧化矽，煙熏二氧化矽 (Aerosil) 或者溶膠凝膠法二氧化矽等之合成二氧化矽等。

熔融二氧化矽由於純度較高而可較好地用作上述二氧化矽粒子。二氧化矽粒子可以分散於溶劑中之狀態而作為二氧化矽漿料來使用。藉由使用二氧化矽漿料，製造樹脂組合物時，可提高作業性及生產性。

作為上述矽烷偶合劑，可使用先前公知之矽烷化合物。上述矽烷偶合劑較好的是選自由環氧矽烷、胺基矽烷、異氰酸酯基矽烷、丙烯醯氧基矽烷、甲基丙烯醯氧基矽烷、乙烯基矽烷、苯乙烯基矽烷、脲基矽烷及硫基矽烷所組成群中之至少一種。又，亦可利用矽氮烷等烷氧基矽烷對二氧化矽粒子實施表面處理。矽烷偶合劑可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

較好的是利用上述矽烷偶合劑對上述二氧化矽粒子實施表面處理而獲得二氧化矽成分後，將該二氧化矽成分添加於樹脂組合物中。於此情形時，可進一步提高二氧化矽成分之分散性。

作為利用矽烷偶合劑對上述二氧化矽粒子實施表面處理之方法，例如可列舉以下第1~第3種方法。

作為第1種方法，可列舉乾式法。作為乾式法，例如可列舉使矽烷偶合劑直接附著於二氧化矽粒子上之方法等。於乾式法中，係將二氧化矽粒子裝入至混合機中，一面攪拌一面滴加或霧狀噴射矽烷偶合劑之醇溶液或水溶液後，進一步攪拌，利用篩網進行分級。其後，藉由加熱而使矽烷偶合劑與二氧化矽粒子脫水縮合，藉此可獲得上述二氧化矽成分。所獲得之二氧化矽成分可以分散於溶劑中之狀態而作為二氧化矽漿料來使用。

作為第2種方法，可列舉濕式法。於濕式法中，係一面攪拌含有二氧化矽粒子之二氧化矽漿料一面添加矽烷偶合劑，攪拌後過濾、乾燥且及利用篩網進行分級。繼而，藉由加熱而使矽烷化合物與二氧化矽粒子脫水縮合，藉此可獲得上述二氧化矽成分。

作為第3種方法，可列舉一面攪拌含有二氧化矽粒子之二氧化矽漿料一面添加矽烷偶合劑後，藉由加熱回流處理來進行脫水縮合之方法。所獲得之二氧化矽成分可以分散於溶劑中之狀態而作為二氧化矽漿料來使用。

於使用未處理之二氧化矽粒子之情形時，若使樹脂組合物硬化，則二氧化矽粒子與環氧樹脂係於未充分親和之狀態下複合化。於使用對上述二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分之情形時，若使樹脂組合物反應，則二氧化矽成分與環氧樹脂係於在兩者之界面處充

分親和之狀態下複合化。因此，可提高硬化體之強度及耐熱性。藉由使樹脂組合物含有對上述二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分，而非未處理之二氧化矽粒子，可提高二氧化矽成分之分散性，因此可獲得更加均勻之樹脂組合物。進而，藉由提高二氧化矽成分之分散性，可使半硬化體之表面之表面粗糙度的不均較小。

進而，藉由使用對上述二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分，可提高硬化體之耐回流焊性。又，可降低硬化體之吸水性，且可提高絕緣可靠性。

相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，上述二氧化矽成分之含量較好的是10~400重量份之範圍內。相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，上述二氧化矽成分之含量之更佳下限為25重量份，進而更佳之下限為43重量份，更佳之上限為250重量份，進而更佳之上限為150重量份。若二氧化矽成分之含量過少，則對上述反應物進行粗化處理時，因二氧化矽成分脫離而形成之孔之總表面積變小。因此，存在無法充分地提高硬化體與金屬層之接著強度之情形。若上述二氧化矽成分之含量過多，則存在硬化體容易變脆，且硬化體與金屬層之接著強度下降之情形。

(可添加之其他成分)

上述樹脂組合物較好的是含有咪唑矽烷化合物。藉由使用咪唑矽烷化合物，可進一步減小經粗化處理之硬化體表面之表面粗糙度。

相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，較好的是於0.01~3重量份之範圍內含有上述咪唑矽烷化合物。若上述咪唑矽烷化合物之含量為上述範圍內，則可進一步減小經粗化處理之硬化體表面之表面粗糙度，且可進一步提高硬化體與金屬層之粗化接著強度。上述咪唑矽烷化合物之含量之更佳下限為0.03重量份，更佳之上限為2重量份，進而更佳之上限為1重量份。於相對於上述環氧樹脂100重量份上述硬化劑之含量超過30重量份之情形時，特別好的是相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，於0.01~2重量份之範圍內含有上述咪唑矽烷化合物。

上述樹脂組合物亦可含有有機化層狀矽酸鹽。

作為上述有機化層狀矽酸鹽，例如可列舉膨潤石系黏土礦物、膨潤性雲母、蛭石或多水高嶺土等層狀矽酸鹽經有機化處理而成之有機化層狀矽酸鹽。有機化層狀矽酸鹽可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為上述膨潤石系黏土礦物，可列舉：蒙脫石、鋰膨潤石、皂石、鋁膨潤石、矽鎂石或鐵膨潤石等。

作為上述有機化層狀矽酸鹽，可較好地使用選自由蒙脫石、鋰膨潤石及膨潤性雲母所組成群中之至少一種層狀矽酸鹽經有機化處理而成之有機化層狀矽酸鹽。

上述有機化層狀矽酸鹽之平均粒徑較好的是500 nm以下。若有機化層狀矽酸鹽之平均粒徑為500 nm以下，則可進一步減小經粗化處理之表面之粗糙度。上述有機化層狀

矽酸鹽之平均粒徑較好的是100 nm以上。

作為上述有機化層狀矽酸鹽之平均粒徑，可採用達到50%之中位直徑(d50)之值。上述平均粒徑可使用雷射繞射散射方式之粒度分布測定裝置來測定。

相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，上述有機化層狀矽酸鹽之含量較好的是0.01~3重量份之範圍內。

上述樹脂組合物除上述環氧樹脂以外，亦可視需要含有可與該環氧樹脂共聚合之樹脂。

對於上述可共聚合之樹脂並無特別限定。作為上述可共聚合之樹脂，例如可列舉：苯氧樹脂、熱硬化型改質聚苯醚樹脂或苯并呋喃樹脂等。上述可共聚合之樹脂可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為上述熱硬化型改質聚苯醚樹脂之具體例，可列舉利用環氧基、異氰酸酯基或胺基等官能基將聚苯醚樹脂改質而得之樹脂等。上述熱硬化型改質聚苯醚樹脂可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為利用環氧基將聚苯醚樹脂改質而得之硬化型改質聚苯醚樹脂之市售品，例如可列舉三菱瓦斯化學(Mitsubishi Gas Chemical)公司製造之商品名「OPE-2Gly」等。

上述苯并呋喃樹脂並無特別限定。作為上述苯并呋喃樹脂之具體例，可列舉：甲基、乙基及苯基、聯苯基或環己基等含有芳基骨架之取代基鍵結於呋喃環之氮上之樹脂，或者亞甲基、仲乙基及仲苯基、仲聯苯基、仲萘基或仲環

己基等含有伸芳基骨架之取代基鍵結於兩個𠵼𠵼環之氮間之樹脂等。上述苯并𠵼𠵼樹脂可僅使用一種，亦可併用兩種以上。藉由苯并𠵼𠵼樹脂與環氧樹脂之反應，可提高硬化體之耐熱性，或者可降低吸水性及線膨脹係數。

再者，苯并𠵼𠵼單體或低聚物、或者苯并𠵼𠵼單體或低聚物藉由𠵼𠵼環之開環聚合而高分子量化之樹脂係包含於上述苯并𠵼𠵼樹脂中。

視需要亦可於上述樹脂組合物中添加熱塑性樹脂類、環氧樹脂以外之熱硬化性樹脂類、熱塑性彈性體類、交聯橡膠、低聚物類、無機化合物、成核劑、抗氧化劑、抗老化劑、熱穩定劑、光穩定劑、紫外線吸收劑、潤滑劑、阻燃助劑、抗靜電劑、防霧劑、填充劑、軟化劑、塑化劑或著色劑等之添加劑。該等添加劑可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為上述熱塑性樹脂類之具體例，可列舉：聚𠵼樹脂、聚𠵼𠵼樹脂、聚𠵼亞胺樹脂、聚𠵼𠵼亞胺樹脂或苯氧樹脂等。上述熱塑性樹脂類可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

作為上述熱硬化性樹脂類，可列舉聚乙炔基𠵼基𠵼樹脂、或藉由雙官能聚𠵼低聚物與氯甲基苯乙烯之反應而獲得之反應產物等。上述熱硬化性樹脂類可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

於使用上述熱塑性樹脂類或上述熱硬化性樹脂類之情形時，相對於上述環氧樹脂100重量份，上述熱塑性樹脂類

或上述熱硬化性樹脂類之含量之較佳下限為0.5重量份，更佳之下限為1重量份，較佳之上限為50重量份，更佳之上限為20重量份。若熱塑性樹脂類或熱硬化性樹脂類之含量過少，則存在硬化體之延展性或韌性無法充分提高之情形，若過多，則存在硬化體之強度下降之情形。

(樹脂組合物)

對上述樹脂組合物之製造方法並無特別限定。作為該樹脂組合物之製造方法，例如可列舉下述方法等：將上述環氧樹脂、上述硬化劑、上述二氧化矽成分、以及視需要而調配之成分添加於溶劑中後加以乾燥，並除去溶劑。

上述樹脂組合物例如亦可溶解於適當之溶劑中後使用。

上述樹脂組合物之用途並無特別限定。上述樹脂組合物例如可較好地用於：形成多層基板之芯層或增層等之基板用材料、接著片材、積層板、附有樹脂之銅箔、覆銅積層板、TAB(Tape Automated Bonding，捲帶自動接合)用膠帶、印刷基板、預浸體或清漆等。

又，藉由使用上述樹脂組合物，可於半硬化體之表面形成微細之孔。因此，可於藉由使半硬化體硬化而獲得之硬化體之表面形成微細之佈線，且可使該佈線中之訊號傳輸速度加快。因此，上述樹脂組合物可較好地用於附有樹脂之銅箔、覆銅積層板、印刷基板、預浸體、接著片材或TAB用膠帶等要求絕緣性之用途。

上述樹脂組合物可更好地應用於利用在硬化體之表面形成導電性鍍敷層後再形成電路之加成法、以及半加成法等

將硬化體與導電性鍍敷層積層複數層之增層基板等。於此情形時，可提高硬化體與導電性鍍敷層之接合可靠性。

上述樹脂組合物亦可用於密封用材料或阻焊劑等。又，由於可提高形成於硬化體表面之佈線的高速訊號傳輸性能，因此亦可將上述樹脂組合物用於要求高頻特性之內藏有被動零件或主動零件之零件內藏基板等。

(半硬化體、硬化體及積層體)

半硬化體通常係自被稱作B階段(B-stage)的微硬化之狀態進一步進行硬化而形成為適合於粗化處理之預硬化狀態、即半硬化狀態者。

藉由使上述樹脂組合物反應，可獲得反應物。藉由對所獲得之反應物進行粗化處理，可獲得半硬化體。

具體而言，本發明之硬化體可以如下方式獲得。

使上述樹脂組合物以於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上之方式進行反應(預硬化或半硬化)，從而獲得反應物。為了使上述樹脂組合物適度地反應，較好的是藉由加熱或光之照射等使之反應。較好的是使上述樹脂組合物以使上述凝膠分率達到95%以上之方式進行反應而獲得反應物。

於藉由加熱而使上述樹脂組合物以使上述凝膠分率達到90%以上之方式進行反應之情形時，加熱溫度並無特別限定。該加熱溫度較好的是處於130~190℃之範圍內。若加熱溫度低於130℃，則樹脂組合物無法充分地硬化因此上述凝膠分率容易降低。因此，存在半硬化體表面之凹凸變

大之傾向。若加熱溫度高於190℃，則樹脂組合物容易急速地進行硬化反應。因此，硬化度容易局部不同，其結果，存在難以獲得半硬化體表面之凹凸之均勻性的情形。

使上述樹脂組合物以使上述凝膠分率達到90%以上之方式進行反應時之加熱時間並無特別限定，例如可為15分鐘~3小時之範圍。若加熱時間較短，則由於樹脂組合物無法充分地硬化，因此存在粗化處理後之半硬化體表面之凹凸變大的傾向。因此，加熱時間較好的是30分鐘以上。就提高生產性之觀點而言，加熱時間較好的是1小時以下。

為了於半硬化體之表面形成微細之凹凸，而對上述反應物進行粗化處理。較好的是於該粗化處理之前，對反應物進行膨潤處理。但是，並非一定要對上述反應物進行膨潤處理。

作為上述膨潤處理之方法，例如可採用下述方法：使用以乙二醇等作為主成分之化合物之水溶液或有機溶劑分散溶液等對上述反應物實施處理。於上述膨潤處理中，可較好地使用40重量%之乙二醇水溶液。

於上述粗化處理中，例如可使用錳化合物、鉻化合物或過硫酸化合物等之化學氧化劑等。該等化學氧化劑可於添加水或有機溶劑之後，作為水溶液或有機溶劑分散溶液來使用。

作為上述錳化合物，可列舉過錳酸鉀或過錳酸鈉等。作為上述鉻化合物，可列舉重鉻酸鉀或無水鉻酸鉀等。作為上述過硫酸化合物，可列舉過硫酸鈉、過硫酸鉀或過硫酸

鉸等。

上述粗化處理方法並無特別限定。於上述粗化處理中，例如可較好地使用30~90 g/L之過錳酸或過錳酸鹽溶液、或者30~90 g/L之氫氧化鈉溶液。

若粗化處理之次數較多則粗化效果亦較大。然而，若粗化處理之次數超過三次，則存在粗化效果飽和之情形，或者半硬化體之表面之樹脂成分被過度削除，而難以於半硬化體之表面形成二氧化矽成分脫離之形狀的孔。因此，粗化處理較好的是進行一次或兩次。

較好的是於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之粗化處理。於對上述反應物進行上述膨潤處理之情形時，較好的是於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之膨潤處理。於進行複數次粗化處理或膨潤處理之情形時，上述粗化處理或膨潤處理之時間係表示合計之時間。藉由於上述條件下、對以使上述凝膠分率達到90%以上之方式反應之反應物進行粗化處理或膨潤處理，可進一步減小半硬化體表面之表面粗糙度。具體而言，可更容易地獲得經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra為0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度Rz為3.0 μm 以下的硬化體。

圖1中，係以局部切缺正視剖面圖以示意方式表示本發明之一實施形態之半硬化體。

如圖1所示，於半硬化體1之表面1a上形成有因二氧化矽成分脫離而形成之孔1b。

上述樹脂組合物由於係含有對上述二氧化矽粒子利用矽

烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分，因此該二氧化矽成分之分散性優異。因此，於半硬化體1中，難以形成因二氧化矽成分之凝集物脫離而形成的較大之孔。藉此，半硬化體1或藉由使半硬化體1硬化而獲得之硬化體之強度不容易局部下降，進而可提高硬化體與金屬層之接著強度。又，為了降低硬化體之線膨脹係數，可於樹脂組合物中調配較多之二氧化矽成分。即使調配較多之二氧化矽成分，亦可於半硬化體1之表面形成微細之複數個孔1b。孔1b亦可為幾個左右、例如2~10個左右之二氧化矽成分成塊脫離之孔。

進而，於藉由二氧化矽成分之脫離而形成之孔1b之附近，圖1中附以箭頭A而表示之部分之樹脂成分並未被過多地削除。尤其是使用具有萘結構、二環戊二烯結構、聯苯結構或胺基三吡結構中之任一種結構之酚化合物、芳香族多元酯化合物或具有苯并呋喃結構之化合物作為硬化劑之情形時，於因二氧化矽成分脫離而形成之孔1b之表面，樹脂成分容易被相對較多地削除。但是，於使用對上述二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施處理之二氧化矽成分之情形時，即便使用具有萘結構、二環戊二烯結構、聯苯結構或胺基三吡結構中之任一種結構之酚化合物、芳香族多元酯化合物或具有苯并呋喃結構之化合物作為硬化劑，樹脂成分亦不會被過多地削除。因此，可提高硬化體之強度。

以上述方式所獲得的半硬化體之經粗化處理之表面的算術平均粗糙度Ra較好的是0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度

Rz較好的是3.0 μm 以下。上述經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra更好的是0.2 μm 以下，進而更好的是0.15 μm 以下。上述經粗化處理之表面之十點平均粗糙度Rz更好的是2 μm 以下，進而更好的是1.5 μm 以下。若上述算術平均粗糙度Ra過大、或者上述十點平均粗糙度Rz過大，則存在無法使形成於硬化體表面之佈線中的電訊號之傳輸速度高速化的情形。算術平均粗糙度Ra及十點平均粗糙度Rz可藉由依據JIS B0601-1994之測定方法而求得。

形成於半硬化體1或硬化體之表面之複數個孔的平均直徑較好的是5 μm 以下。若複數個孔之平均直徑大於5 μm ，則存在難以於硬化體之表面形成L/S較小之佈線的情形，且所形成之佈線間容易發生短路。

可視需要向半硬化體1中施加公知之鍍敷用觸媒、或者實施非電解鍍敷後，實施電解鍍敷。藉由對半硬化體1之表面實施鍍敷處理且使半硬化體1硬化，可獲得包含硬化體與金屬層2之積層體11。

圖2中，係以局部切缺正視剖面圖來表示於使半硬化體1硬化而獲得的硬化體1A之上面1a藉由鍍敷處理而形成有金屬層2的積層體11。

於圖2所示之積層體11中，金屬層2到達至硬化體1A之上面1a上所形成的微細之孔1b內。因此，可藉由物理的固著效應而提高硬化體1A與金屬層2之接著強度。又，由於在因二氧化矽成分脫離而形成之孔1b之附近，樹脂成分未被過多地削除，因此可提高硬化體1A與金屬層2之接著強

度。

使半硬化體1A硬化時，較好的是使半硬化體1A於130~200℃下硬化。硬化體1A較好的是藉由使半硬化體1於130~200℃下硬化而獲得之硬化體。於該等情形時，可進一步提高硬化體1A與金屬層2之接著強度。

上述二氧化矽成分之平均粒徑越小，則可於半硬化體1之表面形成越微細之凹凸。由於係使用對平均粒徑為1 μm 之二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分，因此可使孔1b較小，故而可於半硬化體1之表面形成微細之凹凸。因此，可使表示電路之佈線之微細程度的L/S較小。

當於硬化體1A之表面1a形成L/S較小的銅等之佈線時，可提高佈線之訊號處理速度。例如即使訊號為5 GHz以上之高頻率，亦由於半硬化體1之表面之表面粗糙度較小，而可使將該半硬化體1硬化而獲得之硬化體1A與金屬層2之界面的電訊號之損失減小。

上述樹脂組合物由於係含有對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子利用矽烷偶合劑實施表面處理之二氧化矽成分，因此表面粗糙度之不均較小，可於硬化體1A之表面形成例如L/S為13 μm /13 μm 左右之微細之佈線。又，可於硬化體1A之表面形成L/S為10 μm /10 μm 以下之微細之佈線，而不會於佈線間產生短路。形成有此種佈線之硬化體1A可穩定地且損失較小地傳輸電訊號。

作為形成上述金屬層2之材料，可使用用於遮罩用途或

電路形成用途等之金屬箔或鍍敷金屬、或者用於電路保護用途之鍍敷用材料。

作為上述鍍敷材料，例如可列舉：金、銀、銅、銻、鈮、鎳或錫等。亦可使用該等之兩種以上之合金。亦可利用兩種以上之鍍敷材料形成複數層金屬層。進而，根據目的，鍍敷材料亦可含有除上述金屬以外之其他金屬或物質。金屬層2較好的是藉由鍍銅處理而形成之鍍銅層。

於積層體11中，硬化體1A與金屬層2之接著強度較好的是4.9 N/cm以上。

以下，藉由列舉實施例及比較例，具體地說明本發明。本發明並不限定於以下之實施例。

於實施例及比較例中，使用以下所示之材料。

(環氧樹脂)

聯苯型環氧樹脂(日本化藥公司製造，商品名為「NC-3000-H」)

雙酚A型環氧樹脂(日本化藥公司製造，商品名為「RE-310S」)

蔥型環氧樹脂(日本環氧樹脂(Japan Epoxy Resins)公司製造，商品名為「YX8800」)

萘型環氧樹脂(日本化藥公司製造，商品名為「NC-7300L」)

含三吡啶骨架之環氧樹脂(日產化學工業公司製造，商品名為「TEPIC-SP」)

(硬化劑)

具有聯苯結構之酚硬化劑(明和化成公司製造，商品名為「MEH7851-4H」，相當於以上述式(7)所表示之酚化合物)

活性酯硬化劑(活性酯化合物，DIC公司製造，商品名為「EPICLON EXB9460S-65T」，固形物成分65重量%之甲苯溶液)

氰酸酯樹脂(Ronza公司製造，商品名為「Primaset BA-230S」，固形物成分75重量%之甲基乙基酮溶液)

(硬化促進劑)

咪唑硬化促進劑(四國化成工業公司製造，商品名為「2PN-CN」，1-氰基乙基-2-甲基咪唑)

(二氧化矽漿料)

含50重量%二氧化矽成分之漿料(1)：包含對二氧化矽粒子(平均粒徑為 $0.3\ \mu\text{m}$ ，比表面積為 $18\ \text{m}^2/\text{g}$)利用胺基矽烷(信越化學工業公司製造，商品名為「KBM-573」)實施表面處理之二氧化矽成分50重量%、以及DMF(N,N-二甲基甲醯胺)50重量%；

含50重量%二氧化矽成分之漿料(2)：包含對二氧化矽粒子(平均粒徑為 $0.8\ \mu\text{m}$ ，比表面積為 $4.3\ \text{m}^2/\text{g}$)利用胺基矽烷(信越化學工業公司製造，商品名為「KBM-573」)實施表面處理之二氧化矽成分50重量%、以及DMF(N,N-二甲基甲醯胺)50重量%。

(溶劑)

N,N-二甲基甲醯胺(DMF，特級，和光純藥公司製造)

(咪唑矽烷化合物)

咪唑矽烷(日礦金屬公司製造，商品名為「IM-1000」)

(實施例1)

(1) 樹脂組合物之製備

將上述含50重量%二氧化矽成分之漿料53.08 g與DMF 7.00 g加以混合，並於常溫下攪拌，直至成為均勻之溶液為止。其後，進而添加上述咪唑硬化促進劑(四國化成工業公司製造，商品名為「2PN-CN」)0.20 g，並於常溫下攪拌，直至成為均勻之溶液為止。

繼而，添加作為環氧樹脂之雙酚A型環氧樹脂(日本化藥公司製造，商品名為「RE-310S」)18.94 g，並於常溫下攪拌，直至成為均勻之溶液為止，從而獲得溶液。向所獲得之溶液中添加作為硬化劑之具有聯苯結構之酚硬化劑(明和化成公司製造，商品名為「MEH7851-4H」)20.67 g，並於常溫下攪拌，直至成為均勻之溶液為止，從而製成樹脂組合物。

(2) 樹脂組合物之未硬化物之製作

準備經脫模處理的透明之聚對苯二甲酸乙二酯(PET)薄膜(商品名為「PET5011 550」，厚度為50 μm ，Lintec公司製造)。使用敷料器，以使乾燥後之厚度達到50 μm 之方式將所獲得之樹脂組合物塗佈於該PET薄膜上。繼而，於100°C之吉爾老化恆溫箱(Geer oven)內乾燥12分鐘，藉此製成具有縱200 mm×橫200 mm×厚50 μm 之大小且為B階段狀態的片狀之樹脂組合物之未硬化物。

(3) 半硬化體之製作

將所獲得之片狀之樹脂組合物之未硬化物真空層壓於環氧玻璃基板(FR-4，型號為「CS-3665」，利昌工業公司製造)上，於150℃下反應60分鐘(反應條件)。如此，於環氧玻璃基板上形成反應物，從而獲得環氧玻璃基板與反應物之積層樣品。其後，進行下述膨潤處理後，進行下述粗化處理(過錳酸鹽處理)。

膨潤處理：

將上述積層樣品放入至80℃之膨潤液(Swelling Dip Securiganth P，Atotech Japan公司製造)中，於80℃之膨潤溫度下搖動15分鐘。其後，使用純水進行清洗。

粗化處理(過錳酸鹽處理)：

將經膨潤處理之上述積層樣品放入至80℃之過錳酸鉀(Concentrate Compact CP，Atotech Japan公司製造)粗化水溶液中，於80℃之粗化溫度下搖動15分鐘。其後，使用25℃之清洗液(Reduction Securiganth P，Atotech Japan公司製造)清洗2分鐘後，使用純水進一步清洗。如此，於環氧玻璃基板上形成經粗化處理之半硬化體。

(4) 積層體之製作

於上述粗化處理之後，進行下述鍍銅處理。

鍍銅處理：

以如下順序對形成於環氧玻璃基板上之半硬化體實施非電解鍍銅及電解鍍銅處理。

使用60℃之鹼性清潔劑(Cleaner Securiganth 902)對經粗

化處理之半硬化體之表面進行5分鐘處理，然後進行脫脂清洗。清洗後，使用25℃之預浸液(Pre-dip Neoganth B)對上述半硬化體進行2分鐘處理。其後，使用40℃之活化劑溶液(Activator Neoganth 834)對上述半硬化體進行5分鐘處理，然後附著鈀觸媒。繼而，使用30℃之還原液(Reducer Neoganth WA)對半硬化體進行5分鐘處理。

繼而，將上述半硬化體放入至化學銅液(Basic Printoganth MSK-DK、Copper Printoganth MSK、Stabilizer Printoganth MSK)中，實施非電解鍍數直至鍍數厚度達到0.5 μm 左右為止。於非電解鍍數後，為了除去殘留之氫氣而於120℃之溫度下進行30分鐘退火處理。至非電解鍍數步驟為止之所有步驟均係利用燒杯刻度將處理液設定為1 L，並一面搖動半硬化體一面實施。

繼而，對經非電解鍍數處理之半硬化體實施電解鍍數，直至鍍數厚度達到25 μm 為止。使用硫酸銅(Reducer Cu)作為電鍍銅，並流通0.6 A/cm^2 之電流。鍍銅處理後，於180℃下將半硬化體加熱1小時而使半硬化體硬化，從而形成硬化體。如此，獲得於硬化體上形成有鍍銅層之積層體。

(實施例2~11及比較例1~5)

將所使用之材料之種類及調配量設定為如下述表1、2所示，並且當製作上述(3)半硬化體時，將使所獲得之片狀之樹脂組合物之未硬化物反應時的反應條件設定為如下述表1、2所示，除此以外，以與實施例1相同之方式製備樹脂

組合物，並製作片狀之樹脂組合物之未硬化物、半硬化體及積層體。再者，於樹脂組合物含有咪唑矽烷之情形時，該咪唑矽烷係與硬化劑一同添加。

(評價)

(硬化體B之製作)

將實施例及比較例中所獲得的片狀之樹脂組合物之未硬化物於150℃下加熱60分鐘、進而於180℃下加熱1小時而使其硬化，從而獲得硬化體B。

(1) 凝膠分率

使實施例1~7、9~11中所獲得的片狀之樹脂組合物之未硬化物於150℃下反應60分鐘，獲得半硬化體。又，使實施例8及比較例1~4中所獲得的片狀之樹脂組合物之未硬化物於130℃下反應30分鐘，獲得半硬化體。進而，使比較例5中所獲得的片狀之樹脂組合物之未硬化物於120℃下反應30分鐘，獲得半硬化體。

將所獲得之半硬化體切斷成50 mm×50 mm之大小來準備試驗樣品。測定該試驗樣品之初始重量(W1)。繼而，將試驗樣品於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時。其後，使用預先已測定重量之#400之金屬篩網來過濾甲基乙基酮中之試驗片，於金屬篩網上獲得試驗樣品之殘留物。將殘留物與金屬篩網一同在23℃下乾燥72小時。測定金屬篩網與乾燥後之殘留物之合計重量，並減去上述金屬篩網之重量，從而求得乾燥後之殘留物之重量(W2)。利用下述式(1)，由所測定之值計算出凝膠分率。將5次測定所得之平均值

作為凝膠分率。

$$\text{凝膠分率(\%)} = W2/W1 \times 100 \quad \cdots \text{式(1)}$$

(2) 介電常數及介電損耗正切

將所獲得之上述未硬化物裁剪成15 mm×15 mm之大小。重疊8片經裁剪之未硬化物，獲得積層物。將該積層物於150℃下加熱60分鐘、進而於180℃下加熱1小時而使其硬化，從而形成厚度為400 μm之積層物之硬化體。使用介電常數測定裝置(型號為「HP4291B」，HEWLETT PACKARD公司製造)，測定頻率為1 GHz時之常溫(23℃)下之積層物的介電常數及介電損耗正切。

(3) 平均線膨脹係數

將所獲得之上述硬化體B裁剪成3 mm×25 mm之大小。使用線膨脹係數計(型號為「TMA/SS120C」，Seiko Instruments公司製造)，於拉伸荷重為 2.94×10^{-2} N、升溫速度為5℃/min之條件下，測定經裁剪之硬化體於23~100℃下之平均線膨脹係數(α_1)、以及於150~260℃下之平均線膨脹係數(α_2)。

(4) 玻璃轉移溫度(Tg)

將所獲得之上述硬化體B裁剪成5 mm×3 mm之大小。使用黏彈性譜儀(型號為「RSA-II」，Rheometric Scientific F.E公司製造)，於升溫速度為5℃/min之條件下，測定自30至250℃為止經裁剪之硬化體之損失率 $\tan\delta$ ，求出損失率 $\tan\delta$ 達到最大值之溫度(玻璃轉移溫度Tg)。

(5) 斷裂強度及斷裂點伸度

將所獲得之上述硬化體B裁剪成 10×80 mm之大小。積層兩層經裁剪之硬化體B，獲得厚度為 $100\ \mu\text{m}$ 之試驗樣品。使用拉伸試驗機(商品名為「Tensilon」，Orientec公司製造)，於夾頭間距離為60 mm，十字頭速度為 $5\ \text{mm/min}$ 之條件下進行拉伸試驗，測定試驗樣品之斷裂強度(MPa)及斷裂點伸度(%)。

(6) 粗化接著強度

於在硬化體上形成有上述鍍銅層之上述積層體之鍍銅層的表面切出10 mm寬之切口。其後，使用拉伸試驗機(商品名為「Autograph」，島津製作所公司製造)，於十字頭速度為 $5\ \text{mm/min}$ 之條件下測定硬化體與鍍銅層之接著強度。將所獲得之測定值作為粗化接著強度。

(7) 表面粗糙度(算術平均粗糙度Ra及十點平均粗糙度Rz)

使用非接觸式表面粗糙度計(商品名為「WYKO」，Veeco公司製造)，測定上述經粗化處理之半硬化體之表面的算術平均粗糙度Ra及十點平均粗糙度Rz。

(8) 銅接著強度

將實施例及比較例中所獲得的片狀之樹脂組合物之未硬化物於真空中層壓於CZ處理銅箔(CZ-8301，MEC公司製造)上，於 150°C 下加熱60分鐘、進而於 180°C 下加熱1小時而使其硬化，從而獲得附有銅箔之硬化體。其後，於銅箔之表面切出10 mm寬之切口。使用拉伸試驗機(商品名為「Autograph」，島津製作所公司製造)，於十字頭速度為5

mm/min之條件下測定銅箔與硬化體之接著強度，並將所測定之接著強度作為銅接著強度。

(9) 體積電阻率

將所獲得之上述硬化體B裁剪成100 mm×100 mm之大小，獲得厚度為50 μm之試驗樣品。將所獲得之試驗樣品曝露於134℃、3 atm且2小時之PCT(Pressure Cooker Test，高壓蒸煮試驗)條件中。將U-type J-Box連接於高電阻率計(三菱化學公司製造，商品名為「Hiresta UP」)上測定曝露後之試驗樣品之體積電阻率。

將結果示於下述表1、2。

[表 1]

		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
調配成分 (g)	環氧樹脂								
	聯苯型環氧樹脂		9.06				9.06		
	雙酚A型環氧樹脂	18.94	11.58	11.10	11.50	18.94	11.58	11.10	11.50
	萘型環氧樹脂			7.75				7.75	
	苯型環氧樹脂				8.03				8.03
	含三呋喃架之環氧樹脂								
	具有聯苯結構之酚硬化劑	20.67	18.96	20.76	20.09	20.67	18.96	20.76	20.09
	活性酯化合物								
	氟酸酯樹脂								
	咪唑硬化促進劑	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
反應條件	硬化促進劑	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08
	二氧化矽塗料								
	含50重量%二氧化矽成分之塗料(1)								
	含50重量%二氧化矽成分之塗料(2)								
評價	溶劑	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00
	N,N-二甲基甲醯胺								
	咪唑矽烷化合物								
	反應條件	150°C×60 min	150°C×60 min	150°C×60 min	150°C×60 min	130°C×30 min	130°C×30 min	130°C×30 min	130°C×30 min
	(1)凝膠分率 (%)	100	100	100	100	85	88	80	86
	(2)電性特性(1 GHz)	3.3	3.2	3.4	3.3	3.3	3.2	3.4	3.3
	介電常數								
	介電損耗正切	0.017	0.012	0.018	0.017	0.017	0.012	0.018	0.017
	α1(×10 ² /°C)	39	36	32	35	39	36	32	35
	α2(×10 ² /°C)	141	132	122	130	141	132	122	130
評價	(3)平均線膨脹係數	170	178	183	186	170	178	183	186
	(4)玻璃轉移溫度Tg (°C)	87	95	86	90	87	95	86	90
	(5)斷裂強度 (MPa)	4.4	5.6	4.0	5.8	4.4	5.6	4.0	5.8
	(5)斷裂點伸度 (%)								
	(6)粗化接著強度 (N/cm)	8.8	9.8	8.8	8.8	2.0	2.0	1.0	2.0
	算術平均粗糙度Ra(μm)	0.07	0.05	0.08	0.08	0.42	0.38	0.48	0.44
	(7)表面粗糙度								
	十點平均粗糙度Rz(μm)	0.84	0.65	0.90	0.95	4.35	3.95	5.02	4.57
	(8)銅接著強度 (N/cm)	9.8	9.8	8.8	8.8	9.8	9.8	8.8	8.8
	(9)體積電阻率 (×10 ¹⁴ Ω·cm)	56	64	54	47	56	64	54	47

[表 2]

調配成分 (g)		實施例5	實施例6	實施例7	實施例8	實施例9	實施例10	實施例11	比較例5
環氧樹脂	聯苯型環氧樹脂				21.57				
	雙酚A型環氧樹脂	14.74	19.70	14.51		14.74	19.70	18.94	18.94
	萘型環氧樹脂								
	苯型環氧樹脂								
	含三吡啶骨架之環氧樹脂	2.44				2.44			
硬化劑	具有聯苯結構之酚硬化劑	22.43		15.84	18.05	22.43		20.67	20.67
	活性酯化合物		19.91				19.91		
	羧酸酯樹脂			12.36					
二氧化矽原料	咪唑硬化促進劑	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
	含50重量%二氧化矽成分之原料(1)	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08	53.08		53.08
	含50重量%二氧化矽成分之原料(2)							53.08	
溶劑	N,N-二甲基甲酰胺	7.00	7.00	3.91	7.00	7.00	7.00	7.00	7.00
	咪唑砂烷化合物					0.15	0.15		
反應條件		150℃×60 min	150℃×60 min	150℃×60 min	130℃×30 min	150℃×60 min	150℃×60 min	150℃×60 min	120℃×30 min
評價	(1)凝膠分率 (%)	98	100	100	95	100	100	100	69
	(2)電性特性(1 GHz)	3.4	3.1	3.2	3.2	3.4	3.1	3.3	3.3
	介電常數	0.019	0.006	0.012	0.012	0.020	0.006	0.017	0.017
	介電損耗正切								
	(3)平均線膨脹係數 α1(×10 ⁻⁷ /℃)	32	34	29	34	31	33	38	39
	α2(×10 ⁻⁷ /℃)	120	135	116	130	117	132	138	141
	(4)玻璃轉移溫度 Tg (℃)	193	160	190	180	200	168	171	170
	(5)斷裂強度 (MPa)	83	92	100	92	87	95	90	87
	(5)斷裂點伸度 (%)	4.0	4.1	4.5	5.8	3.9	3.9	4.8	4.4
	(6)粗化接著強度 (N/cm)	7.8	7.8	8.8	6.9	9.8	9.8	4.9	2.0
(7)表面粗糙度	算術平均粗糙度 Ra(μm)	0.14	0.06	0.19	0.20	0.08	0.05	0.05	0.56
	十點平均粗糙度 Rz(μm)	1.56	0.74	2.02	2.24	0.94	0.62	0.56	5.84
	(8)銅接著強度 (N/cm)	9.8	9.8	8.8	8.8	7.8	8.8	9.2	8.8
(9)體積電阻率	(×10 ¹⁴ Ω·cm)	46	49	50	74	52	54	80	56

【圖式簡單說明】

圖1係以示意方式表示本發明之一實施形態之半硬化體的局部切缺正視剖面圖；及

圖2係表示於硬化體之表面形成有金屬層之積層體之一例的局部切缺正視剖面圖。

【主要元件符號說明】

1	半硬化體
1a	上面
1b	孔
1A	硬化體
2	金屬層
11	積層體

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：98132117

※申請日：98.9.23

※IPC 分類：C08G 5/00 (2006.01)

C08G 5/00 (2006.01)

C08J 5/00 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

半硬化體、硬化體、積層體、半硬化體之製造方法及硬化體之製造方法

二、中文發明摘要：

本發明提供一種半硬化體、及使用該半硬化體之積層體，其可減小經粗化處理之表面之表面粗糙度，進而於硬化後之硬化體之表面形成有金屬層時，可提高硬化體與金屬層之接著強度。半硬化體1係藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成，該反應物係使含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於23 $^{\circ}\text{C}$ 下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式進行反應而獲得者。積層體包含藉由使半硬化體1硬化而獲得之硬化體、以及於該硬化體之表面藉由鍍敷處理而形成之金屬層。硬化體與金屬層之接著強度為4.9 N/cm以上。

三、英文發明摘要：

七、申請專利範圍：

1. 一種半硬化體，其係藉由對如下之反應物進行粗化處理而形成者，該反應物係使含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式進行反應而獲得者。
2. 如請求項1之半硬化體，其中上述凝膠分率為95%以上。
3. 如請求項1之半硬化體，其中經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra為0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度Rz為3.0 μm 以下。
4. 如請求項2之半硬化體，其中經粗化處理之表面之算術平均粗糙度Ra為0.3 μm 以下，且十點平均粗糙度Rz為3.0 μm 以下。
5. 如請求項1至4中任一項之半硬化體，其中上述環氧樹脂係選自由具有萘結構之環氧樹脂、具有二環戊二烯結構之環氧樹脂、具有聯苯結構之環氧樹脂、具有蒽結構之環氧樹脂、具有雙酚A結構之環氧樹脂及具有雙酚F結構之環氧樹脂所組成群中的至少一種。
6. 如請求項1至4中任一項之半硬化體，其中上述硬化劑為選自由具有萘結構之酚化合物、具有二環戊二烯結構之酚化合物、具有聯苯結構之酚化合物、具有胺基三吡結構之酚化合物、活性酯化合物及氰酸酯樹脂所組成群中之至少一種。

7. 如請求項1至4中任一項之半硬化體，其中相對於上述環氧樹脂及上述硬化劑之合計100重量份，上述樹脂組合物進而於0.01~3重量份之範圍內含有咪唑矽烷化合物。
8. 如請求項1至4中任一項之半硬化體，其中係於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之粗化處理。
9. 如請求項1至4中任一項之半硬化體，其中係於上述粗化處理之前，對上述反應物進行膨潤處理。
10. 如請求項9之半硬化體，其中係於50~80℃下對上述反應物進行5~30分鐘之膨潤處理。
11. 一種硬化體，其係藉由使如請求項1至10中任一項之半硬化體硬化而獲得者。
12. 如請求項11之硬化體，其係藉由使上述半硬化體於130~200℃下硬化而獲得者。
13. 一種積層體，其係包含如請求項11或12之硬化體、及於該硬化體之表面藉由鍍敷處理而形成之金屬層，且
上述硬化體與上述金屬層之接著強度為4.9 N/cm以上。
14. 一種半硬化體之製造方法，其係製造如請求項1至10中任一項之半硬化體者，其包括以下步驟：
使用含有環氧樹脂、硬化劑、以及藉由矽烷偶合劑對平均粒徑為1 μm 以下之二氧化矽粒子實施表面處理而得到之二氧化矽成分的樹脂組合物，以使得於23℃下於甲基乙基酮中浸漬24小時後之凝膠分率達到90%以上的方式使上述樹脂組合物反應而形成反應物；以及

藉由對上述反應物進行粗化處理而形成半硬化體。

15. 如請求項14之半硬化體之製造方法，其中於上述粗化處理之前，進而包括對上述反應物進行膨潤處理之步驟。
16. 一種硬化體之製造方法，其係藉由使利用如請求項14或15之半硬化體之製造方法所獲得的半硬化體於130~200℃下硬化而獲得硬化體。

八、圖式：

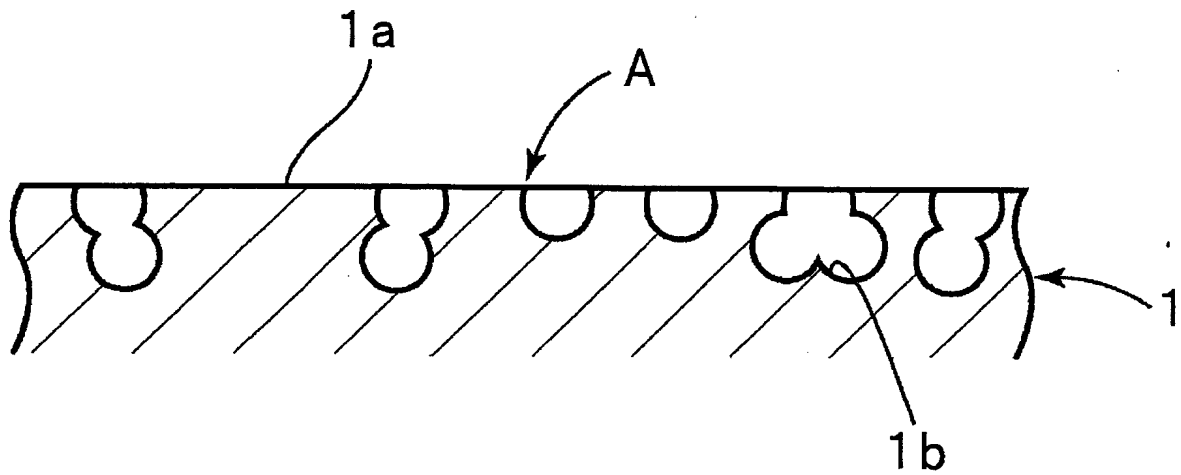


圖1

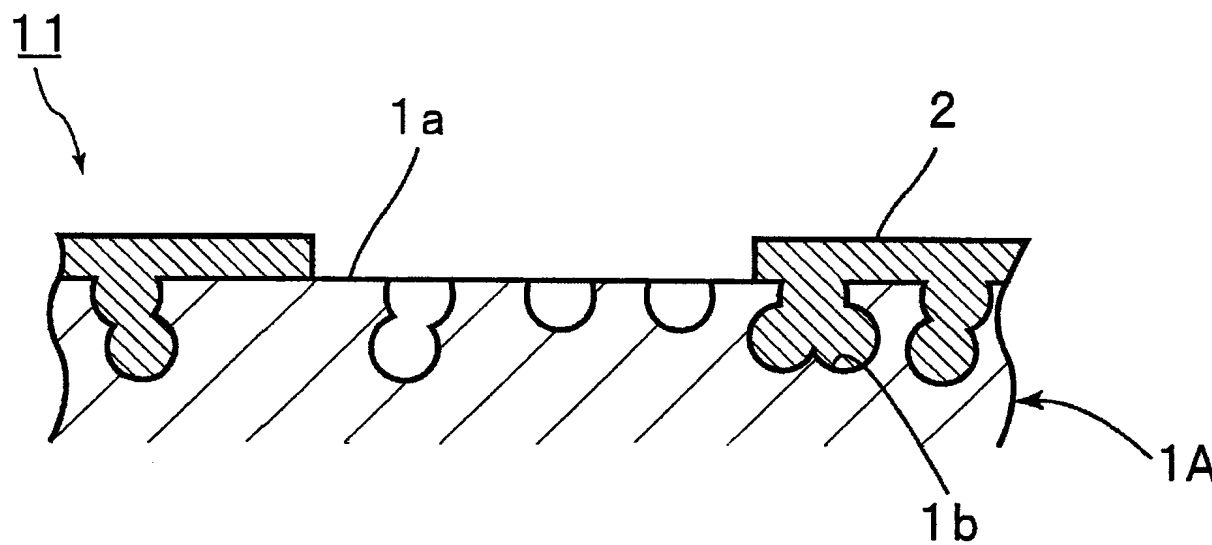


圖2

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

1	半硬化體
1a	上面
1b	孔

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)