(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
2022年2月10日(10.02.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/030370 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 23/28 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
H01L 23/31 (2006.01) *C08L 79/00* (2006.01)
C08K 5/54 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
C08L 45/00 (2006.01) *C08K 3/22* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/028227

(22) 国際出願日： 2021年7月30日(30.07.2021)

(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 2020-132827 2020年8月5日(05.08.2020) JP

(71) 出願人: 信越化学工業株式会社(**SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内一丁目４番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 長田 将一(**OSADA Shoichi**); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 川村 訓史(**KAWAMURA Norifumi**); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 堀篭 洋希(**HORIGOME Hiroki**); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 萩原 健司(**HAGIWARA Kenji**); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 横田 竜平(**YOKOTA Ryuhei**); 〒3790224 群馬県安中市松井田町人見１番地１０ 信越化学工業株式会社 シリコーン電子材料技術研究所内 Gunma (JP).

(74) 代理人: 好宮 幹夫, 外 (**YOSHIMIYA Mikio** et al.); 〒1100005 東京都台東区上野７丁目６番１１号 第一下谷ビル８Ｆ 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, IT, JO, 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,

(54) **Title:** HEAT-CURABLE RESIN COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称： 熱硬化性樹脂組成物及び半導体装置

(57) **Abstract:** The present invention is a heat-curable resin composition characterized in containing (A) a heat-curable resin, (B) a laser direct structuring additive, (C) an inorganic filler, and (D) a coupling agent, the (D) coupling agent: containing one or more coupling agents selected from the group consisting of triazine functional group type, isocyanate functional group type, isocyanuric acid functional group type, benzotriazole functional group type, acid anhydride functional group type, azasilacyclopentane functional group type, imidazole functional group type, and unsaturated-group-containing silane coupling agents; and being a coupling agent other than mercaptosilane coupling agents, aminosilane coupling agents, and epoxy silane coupling agents. A heat-curable resin composition that gives a cured product in which a plating layer formed on the surface of the cured product does not peel from the cured product, and in which no cracking occurs, is thereby provided.

(57) 要約：本発明は、（Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤、（Ｃ）無機充填材、及び（Ｄ）カップリング剤を含む熱硬化性樹脂組成物であって、前記（Ｄ）カップリング剤が、トリアジン官能基型、イソシアネート官能基型、イソシアヌル酸官能基型、ベンゾトリアゾール官能基型、酸無水物官能基型、アザシラシクロペンタン官能基型、イミダゾール官能基型及び不飽和基含有シランカップリング剤からなる群から選択される一種以上を含み、かつ、メルカプトシランカップリング剤、アミノシランカップリング剤及びエポキシシランカップリング剤以外のものであることを特徴とする熱硬化性樹脂組成物である。これにより、硬化物の表面に形成されたメッキ層が硬化物から剥がれず、またクラックも発生しない硬化物を与える熱硬化性樹脂組成物が提供される。

WO 2022/030370 A1

［続葉有］

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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, 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 ： 熱硬化性樹脂組成物及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、無電解メッキなどにより硬化物表面、硬化物断面及び開口部に、被覆層又は配線層を作製可能な、熱硬化性樹脂組成物、その硬化物及び該硬化物を有する半導体装置に関する。

背景技術

[0002] 携帯電話、スマートフォン等の通信機器に搭載される半導体装置では、機器が発する電磁ノイズによる誤動作を防ぐため、電磁波シールド性を持たせる必要がある。

半導体装置に電磁波シールド性をもたせる方法として、板金による方法、スパッタにより半導体表面に金属層を蒸着する方法等がある。しかし、板金により電磁波シールド性をもたせる方法は、通信機器の薄型化・小型化に適さず、またスパッタにより金属層を蒸着する方法は、その過程で高真空にする必要があり、連続生産ができず生産性に劣るものである。

[0003] また、ウェアラブルデバイス等の発展に伴い、半導体装置もさらなる薄型化が要求されている。そこで、半導体封止材の表面にメッキによる金属配線パターンを形成することで、半導体装置の上に新たな半導体装置を直接作製可能となる。

[0004] また、配線以外にも半導体封止材の表面にアンテナを形成することで通信機器向け半導体装置の小型化も試みられている。

[0005] そうした開発の一環として、近年ではウェハーレベル封止のチップサイズパッケージにおいて、再配線層をチップの外側に設けることで、複数のチップ間を高密度の配線で接続できる技術が開発されている。しかし、現在の再配線に用いられる方式としては、銅電解メッキなどが主流であり、レジストの塗布、パターン形成、洗浄、スパッタ、レジストの除去、電解メッキと工程が非常に煩雑である。また電解メッキによる方法では、樹脂やチップに対

しても耐薬品性が求められている。

[0006] そうした中、選択的にメッキパターンを構築する方法として、レーザーダイレクトストラクチャリング（以下「ＬＤＳ」と記載する）という技術が開発されている（特許文献１）。この技術ではＬＤＳ添加剤を熱可塑性樹脂に添加し、その硬化物をレーザーにて活性化することで、照射した部分のみにメッキ層（金属層）を形成できる。この技術では接着層や、レジスト等を用いずに硬化物表面、断面、または開口部に金属層の形成が可能という特徴がある（特許文献２、３）。

[0007] また熱可塑樹脂だけではなく熱硬化性樹脂にＬＤＳ添加剤を添加し、メッキ付き特性に優れたＬＤＳ用熱硬化性樹脂組成物や、それを用いた三次元成形回路部品も開発されている（特許文献４）。

しかしながらメッキ後の金属配線が硬化物から剥がれてしまうという問題や、硬化物にクラックが発生するという問題も生じる。原因として、メッキ金属析出の核となるＬＤＳ添加剤と熱硬化性樹脂の結合が弱いこと、及び析出したメッキ金属と熱硬化性樹脂の結合が弱いことが考えられる。結合が十分でないと、レーザー照射によるＬＤＳ活性化工程、及びアルカリ性無電解メッキの工程でＬＤＳ添加剤と熱硬化性樹脂の界面、及び析出したメッキ金属と熱硬化性樹脂の界面にミクロンオーダーの隙間が生じ、メッキ後の金属層が硬化物から剥離しやすくなる。また硬化物に機械応力、または熱応力がかかった時、隙間を起点にクラックが発生するためと考えられる。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特表２００４－５３４４０８号公報

特許文献2：特開２０１５－１０８１２３号公報

特許文献3：国際公開第２０１５／０３３２９５号

特許文献4：特許第６２６５３０８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、熱硬化性樹脂組成物であって、該組成物の硬化物の表面、断面、又は開口部に形成されたメッキ層は硬化物から剥がれることがなく、また、硬化物にクラックも発生しない熱硬化性樹脂組成物の提供を目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 上記課題を解決するために、本発明では、

（Ａ）熱硬化性樹脂、

（Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤、

（Ｃ）無機充填材、及び

（Ｄ）カップリング剤

を含む熱硬化性樹脂組成物であって、

前記（Ｄ）カップリング剤が、トリアジン官能基型シランカップリング剤、イソシアネート官能基型シランカップリング剤、イソシアヌル酸官能基型シランカップリング剤、ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤、酸無水物官能基型シランカップリング剤、アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤、イミダゾール官能基型シランカップリング剤及び不飽和基含有シランカップリング剤からなる群から選択される一種以上を含み、かつ、前記（Ｄ）カップリング剤が、メルカプトシランカップリング剤、アミノシランカップリング剤及びエポキシシランカップリング剤以外のものであることを特徴とする熱硬化性樹脂組成物を提供する。

[0011] 本発明の熱硬化性樹脂組成物であれば、その硬化物の表面、断面、又は開口部に形成されたメッキ層は硬化物から剥がれることがなく、また、硬化物にクラックも発生しない。

[0012] また、本発明では、前記（Ｂ）成分が、下記式（１）

$$AB_2O_4 \qquad (1)$$

（式中、Ａは鉄、銅、ニッケル、コバルト、亜鉛、マグネシウム及びマンガンから選ばれる１種もしくは２種以上の金属元素であり、Ｂは鉄、クロム又

はタングステンであり、ただしＡ及びＢは同時に鉄ではない）

の平均組成式で示され、スピネル構造を有する金属酸化物であることが好ましい。

[0013] このような（Ｂ）成分は、ＬＤＳ添加剤として熱可塑性樹脂組成物に添加すると、その硬化物をレーザー等にて活性化することで、照射した部分のみにメッキ層（金属層）を効率よく形成できる。

[0014] また、本発明では、前記（Ｂ）成分中の６価クロムの含有量が１００ｐｐｍ未満であることが好ましい。

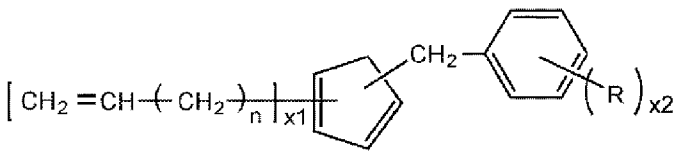
[0015] このような（Ｂ）成分を含む熱硬化性樹脂組成物であれば、電子電気機器における特定有害物質の使用制限についての欧州連合（ＥＵ）による指令（ＲｏＨＳ指令）に適合し、廃電気・電子機器のリサイクルを容易にすることができる。

[0016] また、本発明では、前記（Ｂ）成分が表面処理されていないレーザーダイレクトストラクチャリング添加剤であることが好ましい。

[0017] このような（Ｂ）成分は、表面処理がなされていないため、メッキ層の剥離、機械強度の低下を引き起こしにくい。

[0018] また、本発明では、前記（Ａ）熱硬化性樹脂が、（ｉ）エポキシ樹脂、（ｉｉ）１分子中に、１つ以上のダイマー酸骨格、１つ以上の炭素数６以上の直鎖アルキレン基、及び２つ以上の環状イミド基を含有する環状イミド化合物、（ｉｉｉ）１分子中に２個以上のシアナト基を有するシアネートエステル化合物、（ｉｖ）下記式（２）

[化1]



(2)

（式（２）中、Ｒは炭素数１～６のアルキル基、炭素数２～６のアルケニル基、及び炭素数６～１０のアリール基から選ばれる基を示し、ｎは１～４の整数であり、ｘ１及びｘ２は独立して０、１又は２であり、ただし、Ｒがア

ルキル基又はアリール基を示す場合は、ｘ１は１又は２であり、かつ、１≦ｘ１＋ｘ２≦４である）

で示されるシクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーから選択される一種類または二種類以上を含むものであることが好ましい。

[0019] このような樹脂が（Ａ）成分として好適に使用できる。

[0020] また、本発明は上記熱硬化性樹脂組成物が硬化してなるものであることを特徴とする硬化物を提供する。

[0021] このような硬化物は、その表面、断面、又は開口部に形成されたメッキ層が硬化物から剥がれることがなく、また、硬化物にクラックも発生しないため、電磁波シールド性を必要とする通信デバイスや、アンテナ若しくは配線層を備える半導体装置等の封止材として有用である。

[0022] また、本発明は、上記硬化物を有するものであることを特徴とする半導体装置を提供する。

[0023] 本発明の半導体装置は、上記硬化物を有するためアンテナや配線層等の金属層の密着性に優れるとともに、連続生産が可能であり、生産性に優れている。

[0024] この場合、前記硬化物の一部または全部がメッキ処理されているものであることが好ましい。

[0025] このようなものであれば、接着層や、レジスト等を用いずに硬化物の表面、断面、または開口部に金属層の形成が選択的かつ効率的になされるとともに、メッキの剥がれや、硬化物にクラックが生じることもないため、信頼性の高いものとなる。

[0026] さらに本発明は、上記半導体装置の製造方法であって、前記硬化物の一部または全部をメッキ処理する工程を含み、前記メッキ処理がレーザー照射箇所に施されることを特徴とする半導体装置の製造方法を提供する。

[0027] このような半導体装置の製造方法であれば、連続生産がより効果的に行えるため、生産性に優れている。

発明の効果

[0028] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、ＬＤＳ添加剤及び析出したメッキ金属と熱硬化性樹脂の界面の結合が強い硬化物を与える組成物であって、無電解メッキ処理等によりその硬化物の表面又は内部に金属層（メッキ層等）を、選択的かつ容易に形成できる。この金属層（メッキ層等）は硬化物と強固な結合を有しており容易に脱離しない。また機械的応力や熱応力によってクラックが発生しない。したがって、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、小型で薄型の、電磁波シールド性を必要とする通信デバイス、アンテナを備える半導体装置及び配線層を備える半導体装置等の封止材として好適である。また、本発明の組成物の硬化物を有する半導体装置は、連続生産が可能であり、生産性に優れる。

発明を実施するための形態

[0029] 上述のように、ＬＤＳ添加剤及び形成した金属層と熱硬化性樹脂の界面の結合が強い硬化物を与える熱硬化性樹脂組成物の開発が求められていた。

[0030] 本発明者らは、上記課題解決のため鋭意研究したところ、ＬＤＳ添加剤を含む熱硬化性樹脂組成物において、特定構造のシランカップリング剤を用いることで、ＬＤＳ添加剤と熱硬化性樹脂の界面の結合を高めることができることを見出し、本発明を完成させた。

すなわち、本発明は、下記熱硬化性樹脂組成物と該組成物の硬化物、及び該硬化物を有する半導体装置を提供するものである。

[0031] 以下、本発明について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0032] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、（Ａ）熱硬化性樹脂、（Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤、（Ｃ）無機充填材、及び（Ｄ）カップリング剤を含む熱硬化性樹脂組成物であって、前記（Ｄ）カップリング剤が、トリアジン官能基型シランカップリング剤、イソシアネート官能基型シランカップリング剤、イソシアヌル酸官能基型シランカップリング剤、ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤、酸無水物官能基型シランカップリング剤、アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤、イミ

ダゾール官能基型シランカップリング剤及び不飽和基含有シランカップリング剤からなる群から選択される一種以上を含み、かつ、前記（Ｄ）カップリング剤が、メルカプトシランカップリング剤、アミノシランカップリング剤及びエポキシシランカップリング剤以外のものであることを特徴とする。必要に応じて上記（Ａ）～（Ｄ）成分以外の成分を更に含むことができる。

以下、各成分について説明する。

[0033] ［（Ａ）熱硬化性樹脂］

本発明の熱硬化性樹脂組成物は、（Ａ）熱硬化性樹脂を含有するものである。

上記熱硬化性樹脂としては、例えば、たとえばエポキシ樹脂、フェノール樹脂、１分子中に、少なくとも１つのダイマー酸骨格、少なくとも１つの炭素数６以上の直鎖アルキレン基、及び少なくとも２つの環状イミド基を含有する環状イミド化合物、１分子中に２個以上のシアナト基を有するシアネートエステル化合物、シクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマー、オキセタン樹脂、（メタ）アクリレート樹脂、末端（メタ）アクリル基変性ポリフェニレンエーテル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、およびマレイミド樹脂等から選択される一種類または二種類以上を含む樹脂とすることができる。

[0034] これらの中でも、（ｉ）エポキシ樹脂、（ｉｉ）１分子中に、１つ以上のダイマー酸骨格、１つ以上の炭素数６以上の直鎖アルキレン基、及び２つ以上の環状イミド基を含有する環状イミド化合物、（ｉｉｉ）１分子中に２個以上のシアナト基を有するシアネートエステル化合物、（ｉｖ）シクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーを含むものであることが好ましい。

[0035] エポキシ樹脂としては、特に限定されないが、半導体封止用エポキシ樹脂組成物の技術分野で従来使用されるエポキシ樹脂が挙げられる。このような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、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、

ビフェニル型エポキシ樹脂、ビスフェノール型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂、ジヒドロアントラセンジオール型エポキシ樹脂等の結晶性エポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、アルキル変性トリフェノールメタン型エポキシ樹脂等の多官能エポキシ樹脂、フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニレン骨格を有するビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、フェニレン骨格を有するナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニレン骨格を有するナフトールビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂等のアラルキル型エポキシ樹脂、ジヒドロキシナフタレン型エポキシ樹脂、ジヒドロキシナフタレンの二量体をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂等のナフトール型エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート等のトリアジン核含有エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂等の環状炭化水素化合物変性フェノール型エポキシ樹脂等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。これらのうち、組成物の粘度を低く抑えるため、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂等のアラルキル型エポキシ樹脂及びビフェニル型エポキシ樹脂が好ましい。

[0036] エポキシ樹脂は硬化剤を併用することができる。硬化剤としては、フェノール樹脂、酸無水物、アミン、活性エステル等を使用することができる。この中でも耐熱性、耐湿性からフェノール樹脂が好ましい。フェノール樹脂としては、ノボラック型フェノール樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂、アラルキル型ビフェニル樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、トリフェノールアルカ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、複素環型フェノール樹脂、ナフタレン環含有フェノール樹脂、ビスフェノールＡ型フェノール樹脂、ビスフェノールＦ型フェノール樹脂等のビスフェノール型フェノール樹脂が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。これらのうち、好ましくはノボラック型フェノール樹脂、アラルキル型ビフェニル樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、ビ

フェニルアラルキル型フェノール樹脂であり、特に好ましくはアラルキル型フェノール樹脂である。

[0037] エポキシ樹脂と硬化剤との配合割合（エポキシ基／フェノール性水酸基）は、当量比で、０．５以上１．５以下が好ましく、０．８以上１．２以下がより好ましい。この配合割合の範囲であれば、硬化剤が適切で経済的に有利となり、硬化不足にならない。

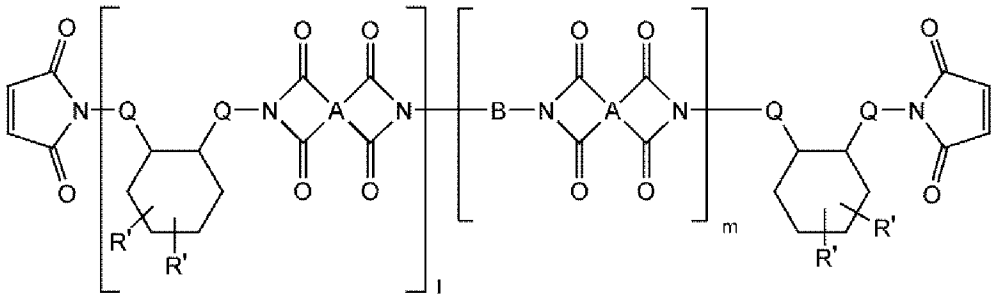
[0038] エポキシ樹脂とフェノール樹脂の硬化促進剤としては、２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－メチル－４－エチルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、２－メチル－４－メチルイミダゾール等のイミダゾール類；１，８－ジアザビシクロ［５．４．０］ウンデセン－７、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン等の三級アミン類；トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、テトラフェニルホスホニウム・テトラフェニルボレート等の有機ホスフィン類等及び、これらをマイクロカプセル化したもの、Ｎ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’－テトラメチルウレア、Ｎ’－フェニル－Ｎ，Ｎ－ジメチルウレア、Ｎ，Ｎ－ジエチルウレア、Ｎ’－［３－［［［（ジメチルアミノ）カルボニル］アミノ］メチル］－３，５，５－トリメチルシクロヘキシル］－Ｎ，Ｎ－ジメチルウレア、Ｎ，Ｎ”－（４－メチル－１，３－フェニレン）ビス（Ｎ’，Ｎ’－ジメチルウレア）等ウレア構造を有する化合物が挙げられ、これらは１種単独で用いても、２種以上を併用してもよい。

[0039] 中でも、一定の温度に達してはじめて硬化反応を起こす潜在性を有することから、Ｎ，Ｎ－ジエチルウレア、Ｎ’－［３－［［［（ジメチルアミノ）カルボニル］アミノ］メチル］－３，５，５－トリメチルシクロヘキシル］－Ｎ，Ｎ－ジメチルウレアが好ましい。

[0040] 硬化促進剤の添加量としては、（Ａ）エポキシ樹脂とフェノール樹脂成分の合計１００質量部に対して、０．５～１０．０質量部が好ましく、１．５～６．０質量部がより好ましい。この範囲内であれば、エポキシ基とフェノール性水酸基が速やかに反応し、容易に硬化物を得ることができる。

[0041] 環状イミド化合物としては、特に限定されないが、１分子中に、１つ以上のダイマー酸骨格、１つ以上の炭素数６以上の直鎖アルキレン基、及び２つ以上の環状イミド基を含有する環状イミド化合物が挙げられる。また、環状イミド化合物としてはマレイミド化合物が好ましく、中でも下記一般式（３）で表されるマレイミド化合物がより好ましい。なお、下記式中のＡ、Ｂはこの式においてのみ適用されるものとする。

[化2]



(3)

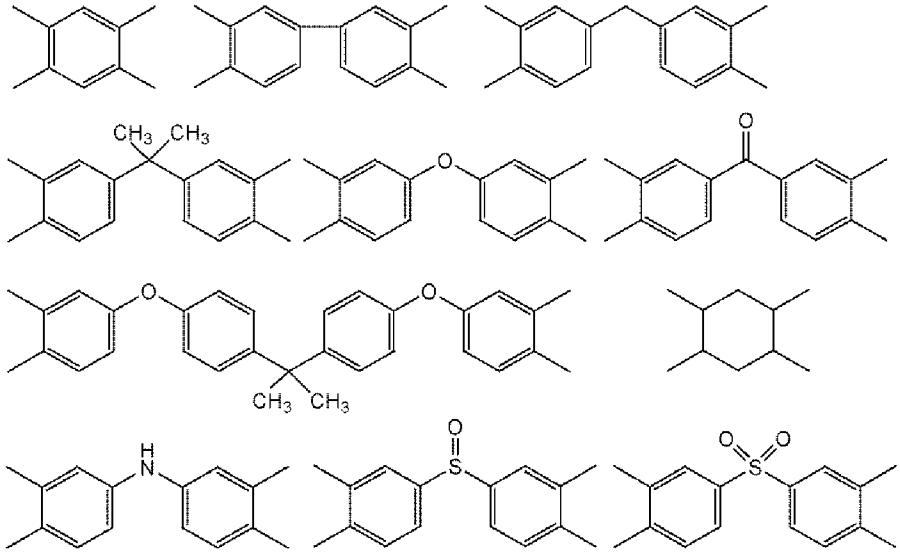
（一般式（３）中、Ａは独立して芳香族環又は脂肪族環を含む４価の有機基を示す。Ｂは２価のヘテロ原子を含んでもよい脂肪族環を有する炭素数６から１８のアルキレン基である。Ｑは独立して炭素数６以上の直鎖アルキレン基を示す。Ｒ’は夫々独立に炭素数６以上の直鎖又は分岐鎖のアルキル基を示す。Ｉは１～１０の数を表す。ｍは０～１０の数を表す。）

[0042] 一般式（３）のＱは直鎖のアルキレン基であり、これらの炭素数は６以上であるが、好ましくは６以上２０以下であり、より好ましくは７以上１５以下である。

また、一般式（３）中のＲ’はアルキル基であり、直鎖のアルキル基でも分岐のアルキル基でもよく、これらの炭素数は６以上であるが、好ましくは６以上１２以下である。

[0043] 一般式（３）中のＡは芳香族環又は脂肪族環を含む４価の有機基を示し、特に、下記構造式で示される４価の有機基のいずれかであることが好ましい。

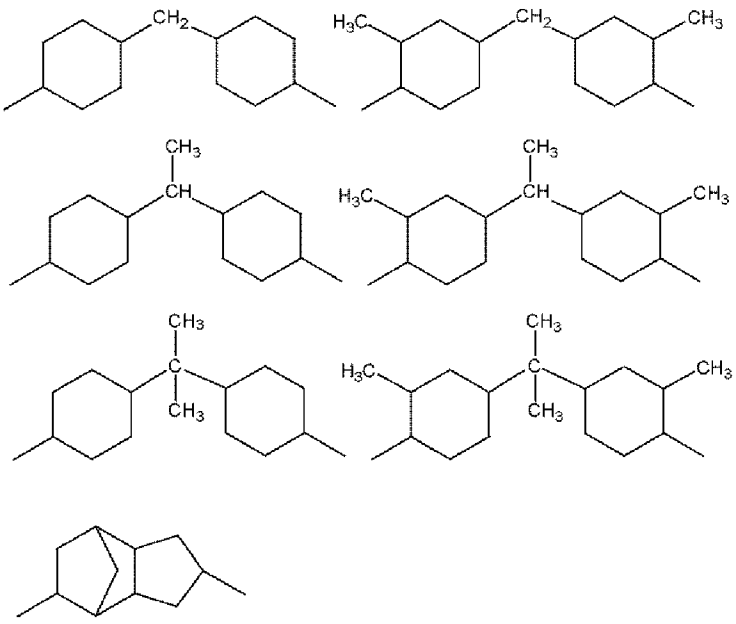
[化3]



（なお、上記構造式中の置換基が結合していない結合手は、一般式（３）において環状イミド構造を形成するカルボニル炭素と結合するものである。）

[0044] また、一般式（３）中のＢは２価のヘテロ原子を含んでもよい脂肪族環を有する炭素数６から１８のアルキレン基であり、該アルキレン基の炭素数は好ましくは炭素数８以上１５以下である。一般式（３）中のＢは下記構造式で示される脂肪族環を有するアルキレン基のいずれかであることが好ましい。

[化4]



（なお、上記構造式中の置換基が結合していない結合手は、一般式（３）において環状イミド構造を形成する窒素原子と結合するものである。）

[0045] 一般式（３）中のｌは１～１０の数であり、好ましくは２～７の数である。一般式（３）中のｍは０～１０の数であり、好ましくは０～７の数である。

[0046] 環状イミド化合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は、室温（２５℃）での性状を含めて特に制限はないが、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）測定によるポリスチレン標準で換算した重量平均分子量が７０，０００以下であることが好ましく、より好ましくは１，０００以上５０，０００以下である。該分子量が７０，０００以下であれば、得られる組成物は粘度が高くなりすぎて流動性が低下するおそれがなく、ラミネート成形などの成形性が良好となる。

[0047] なお、本発明中で言及する重量平均分子量（Ｍｗ）とは、下記条件で測定したＧＰＣによるポリスチレンを標準物質とした重量平均分子量を指すこととする。

［測定条件］

展開溶媒：テトラヒドロフラン

流量：０．３５ｍＬ／ｍｉｎ

検出器：ＲＩ

カラム：ＴＳＫ－ＧＥＬ　Ｈタイプ（東ソー株式会社製）

カラム温度：４０℃

試料注入量：５μＬ

[0048] 環状イミド化合物としては、相当する酸無水物とジアミンとの重合反応により合成してもよいし、ＢＭＩ－１５００、ＢＭＩ－３０００、ＢＭＩ－５０００（以上、Ｄｅｓｉｇｎｅｒ　Ｍｏｌｅｃｕｌｅｓ　Ｉｎｃ．製）、ＳＬＫ－１５００、ＳＬＫ－３０００、ＳＬＫ－２６００（以上、信越化学工業（株）製）等の市販品を用いてもよい。また、環状イミド化合物は１種単独で使用しても、２種類以上を併用しても構わない。

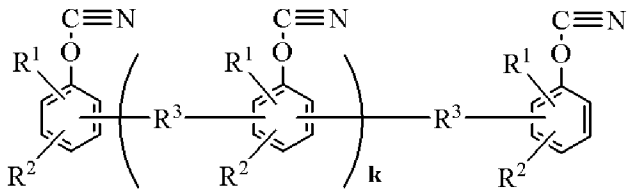
[0049] 環状イミド化合物には、必要に応じて重合開始剤を添加することができる。

重合開始剤としては、ジクミルパーオキシド、ジイソブチルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ジ（２－ｔ－ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0050] 重合開始剤（硬化剤）の添加量は特に制限されないが、（Ａ）成分１００質量部に対し、０．２～５質量部、好ましくは０．５～３質量部である。

[0051] シアネートエステル化合物は、特に限定されないが、１分子中に２個以上のシアナト基を有するものであればよく、一般に公知のものが使用できる。該シアネートエステル化合物は、例えば下記一般式（４）で表すことができる。

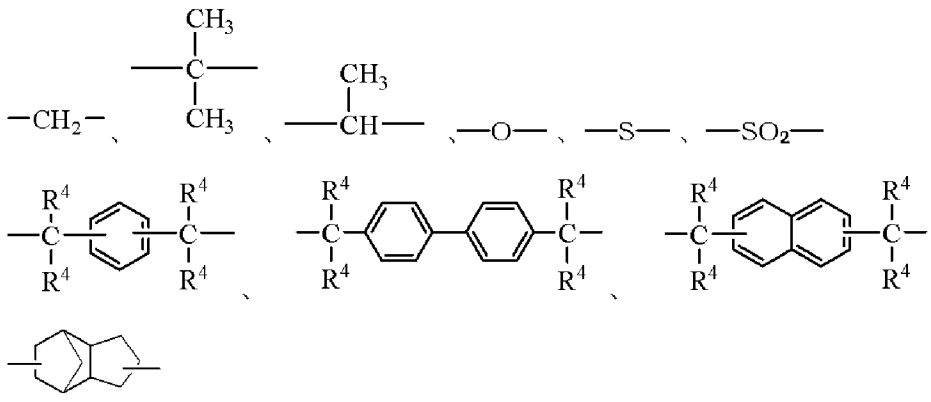
[化5]



(4)

（式中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、互いに独立に、水素原子または炭素数１～４のアルキル基であり、Ｒ[3]は、互いに独立に、下記のいずれかである。

[化6]



（式中、R^4は水素原子またはメチル基である。ｋは０～１０の整数である。）

[0052] シアネートエステル化合物としては、例えば、ビス（４－シアナトフェニル）メタン、ビス（３－メチル－４－シアナトフェニル）メタン、ビス（３－エチル－４－シアナトフェニル）メタン、ビス（３，５－ジメチル－４－シアナトフェニル）メタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）エタン、２，２－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）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン、１，３－および１，４－ジシアナトベンゼン、２－ｔｅｒｔ－ブチル－１，４－ジシアナトベンゼン、２，４－ジメチル－１，３－ジシアナトベンゼン、２，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－１，４－ジシアナトベンゼン、テトラメチル－１，４－ジシアナトベンゼン、１，３，５－トリシアナトベンゼン、２，２’－または４，４’－ジシアナトビフェニル、３，３’，５，５’－テトラメチル－４，４’－ジシアナトビフェニル、１，３－、１，４－、１，５－、１，６－、１，８－、２，６－、または２，７－ジシアナトナフタレン、１，３，６－トリシアナトナフタレン、１，１，１－トリス（４－シアナトフェニル）エタン、ビス（４－シアナトフェニル）エーテル、４，４’－（１，３－フェニレンジイソプロピリデン）ジフェニルシアネート、ビス（４－シアナトフェニル）チオエーテル、ビス（４－シアナトフェニル）スルホン、トリス（４－シアナト－フェニル）ホスフィン、トリス（４－シアナトフェニル）ホスフェート、フェノールノボラック型シアネート、クレゾールノボラック型シアネート、ジシクロペンタジエンノボラック型シアネート、フェニルアラルキル型シアネートエステル、ビフェニルアラルキル型シアネートエステル、ナフタレンアラルキル型シアネートエステルなどが挙げられる。これらのシアネートエステル化合物は１種または２種以上混合して用いることができる。

[0053] また、シアネート基の当量が小さいもの、即ち官能基間分子量が小さいものは硬化収縮が小さく、低熱膨張、高Ｔｇの硬化物を得ることができる。シ

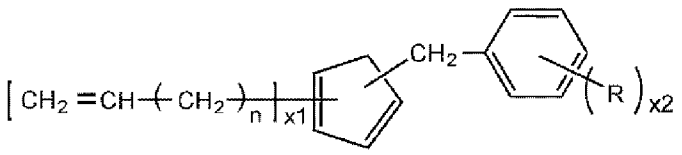
アネート基当量が大きいものは若干Ｔｇが低下するが、トリアジン架橋間隔がフレキシブルになり、低弾性化、高強靭化、低吸水化が期待できる。シアネートエステル化合物中に結合あるいは残存している塩素は５０ｐｐｍ以下、より好ましくは２０ｐｐｍ以下であることが好適である。塩素の量が５０ｐｐｍ以下であれば高温下に長期間置いたときに熱分解により遊離した塩素あるいは塩素イオンが、酸化されたＣｕフレームやＣｕワイヤー、Ａｇメッキを腐食し、硬化物の剥離や電気的不良を引き起こすことがなく、また樹脂の絶縁性も低下しない。

[0054] シアネートエステル化合物には必要に応じて硬化剤を添加することができる。

硬化剤としては前述のフェノール樹脂を用いることができる。

[0055] シクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーとしては、特に限定されないが、シクロペンタジエン化合物としては下記式（２）で示されるシクロペンタジエン化合物を挙げることができる。

[化7]



(2)

（式（２）中、Ｒは炭素数１～６のアルキル基、炭素数２～６のアルケニル基、及び炭素数６～１０のアリール基から選ばれる基を示し、ｎは１～４の整数であり、ｘ１及びｘ２は独立して０、１又は２であり、ただし、Ｒがアルキル基又はアリール基を示す場合は、ｘ１は１又は２であり、かつ、１≦ｘ１＋ｘ２≦４である。）

[0056] 前記式（２）において、ｎは１～４の整数であり、好ましくは１～２であり、特に好ましくは１である。ｘ１は０、１又は２であり、好ましくは０又は１である。ｘ２は０、１又は２であり、好ましくは１又は２である。

[0057] また、Ｒは炭素数１～６のアルキル基、炭素数２～６のアルケニル基、及び炭素数６～１０のアリール基から選ばれる基を示す。アルキル基の例とし

ては、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、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、ｔ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、イソヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

[0058] また、アルケニル基の例としては、ビニル基、アリル基、イソプロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基等が挙げられる。

[0059] さらに、アリール基の例としては、フェニル基、トリル基、キシリル基、メシチル基、ベンジル基、ビフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

[0060] 中でも、Ｒはアルケニル基であることが好ましく、ビニル基、アリル基が特に好ましい。

なお、Ｒがアルキル基又はアリール基を示す場合は、ｘ１は１又は２であり、好ましくは１であり、かつ、１≦ｘ１＋ｘ２≦４であり、好ましくは１≦ｘ１＋ｘ２≦２である。

[0061] 前記式（２）で示される化合物のシクロペンタジエン環は反応性に富むため、前記式（２）で示される化合物は、Ｄｉｅｌｓ－Ａｌｄｅｒ反応により、容易に二量化及び／又は三量化し、二量体及び／又は三量体を生成する。なお、前記二量化や三量化の反応は、同じ構造のシクロペンタジエン化合物の反応であっても、互いに異なった構造のシクロペンタジエン化合物の反応であってもよい。

なお、式（２）で示される化合物の二量体割合及びオリゴマー割合は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）測定によるピークの面積比から算出したものである。

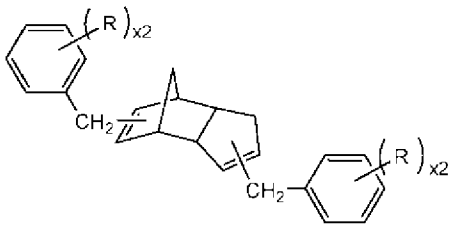
[0062] また、式（２）で示される化合物のオリゴマーは、ジシクロペンタジエン環構造を有するものが好ましい。

[0063] 前記式（２）の化合物のシクロペンタジエン環が反応してジシクロペンタジエン環を形成する反応、すなわち、２分子の式（２）の化合物中のシクロペンタジエン環同士のＤｉｅｌｓ－Ａｌｄｅｒ反応は、シクロペンタジエン環と他のＤｉｅｌｓ－Ａｌｄｅｒ反応可能な炭素－炭素二重結合との反応よ

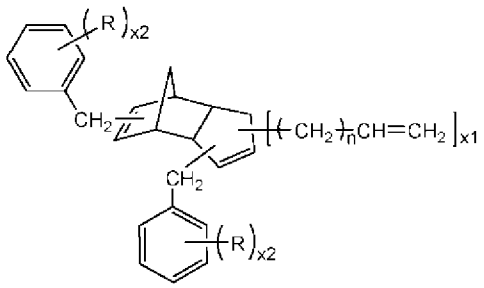
りも起こりやすいため、前記ジシクロペンタジエン環を有する化合物は、成分中に多く含まれていると考えられる。

[0064] 前記オリゴマーの構造としては、下記式のようなものが例示できる。

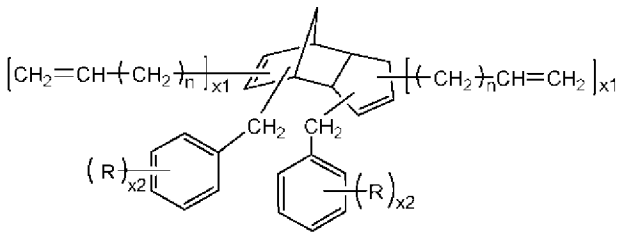
[化8]



(2-1)



(2-2)

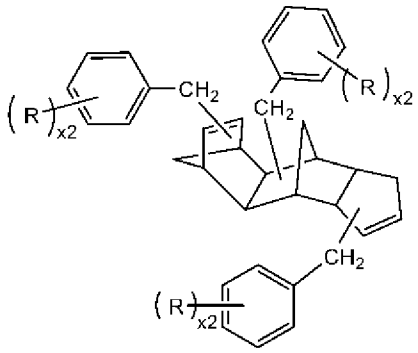


(2-3)

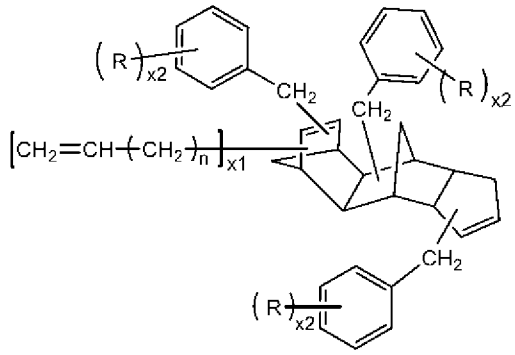
（式中、Ｒ、ｎ、ｘ１、及びｘ２はそれぞれ前記と同じである。）

[0065]

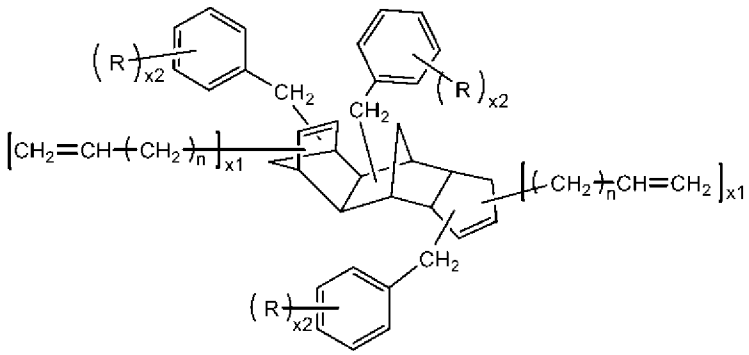
[化9]



(2-4)



(2-5)

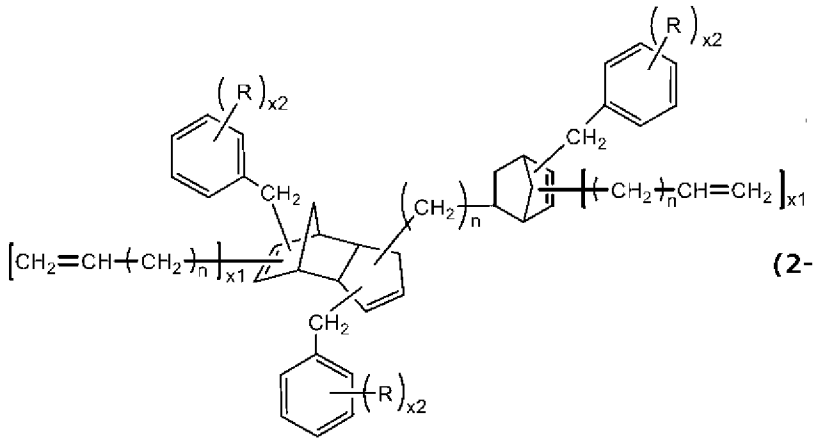


(2-6)

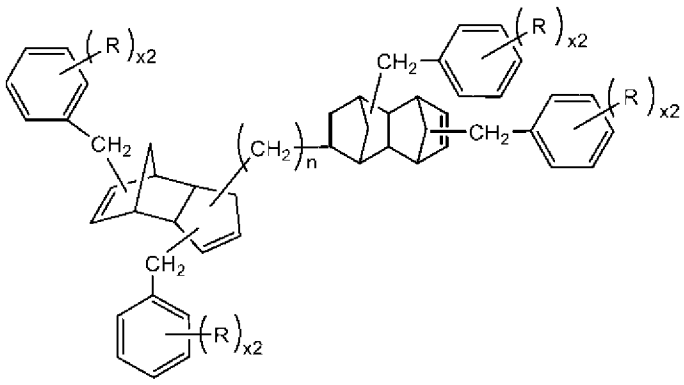
（式中、Ｒ、ｎ、ｘ１、及びｘ２はそれぞれ前記と同じである。）

[0066]

[化10]



(2-7)



(2-8)

（式中、Ｒ、ｎ、ｘ１、及びｘ２はそれぞれ前記と同じである。）

[0067] 前記オリゴマーは、式（２）で示される化合物を、５０～２００℃、好ましくは６０～１８０℃、より好ましくは７０～１６０℃で、２０分～１８０分間、好ましくは４０分～１５０分間、より好ましくは６０分～１２０分間加熱することにより得られる。この反応は、真空下で行なうことが好ましい。

[0068] また、式（２）で示される化合物の加熱は、無溶媒でよく、必要であればトルエン、キシレン、アニソールなどの高沸点溶媒中で行うことができる。

[0069] 成分中、式（２）で示されるシクロペンタジエン化合物の二量体を３質量％以上とするためには、式（２）で示される化合物を、７０～１６０℃で、

１時間～２時間、真空下で加熱することが好ましい。

[0070] シクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーは１種単独で使用しても２種類以上を併用しても構わない。

[0071] シクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーには、必要に応じて重合開始剤を添加することができる。

重合開始剤としては、ジクミルパーオキシド、ジイソブチルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ジ（２－ｔ－ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0072] 重合開始剤（硬化剤）の添加量は特に制限されないが、（Ａ）成分１００質量部に対し、０．２～５質量部、好ましくは０．５～３質量部である。

[0073] （Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤（ＬＤＳ添加剤）

（Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤（ＬＤＳ添加剤）は、熱硬化性樹脂に添加し、その硬化物をレーザー等の活性エネルギー線にて活性化することで、照射した部分のみにメッキ層（金属層）を形成可能とするものである。ＬＤＳ添加剤は、吸収可能な波長領域を有するＹＡＧレーザー等の活性エネルギー線が照射されると、金属核が活性化して（例えば、還元されて）、金属めっきが可能な金属核が生成されると考えられている。そして、ＬＤＳ添加剤が分散された熱硬化性樹脂組成物の硬化物の表面に対して上記活性エネルギー線を照射すると、その照射面に、金属メッキを可能とする金属核を有するシード領域が形成される。得られたシード領域を利用することにより、熱硬化性樹脂組成物の硬化物の表面に、回路などのめっきパターンを形成することが可能になる。

[0074] （Ｂ）ＬＤＳ添加剤は、活性エネルギー線の照射により金属核を形成できるものであれば特に限定されないが、例えば、特許文献２～４に記載のものを用いることができる。好ましくは下記式（１）

$$AB_2O_4 \qquad (1)$$

（式中、Ａは鉄、銅、ニッケル、コバルト、亜鉛、マグネシウム及びマンガンから選ばれる１種もしくは２種以上の金属元素であり、Ｂは鉄、クロム又はタングステンであり、ただしＡ及びＢは同時に鉄ではない）
の平均組成式で示され、スピネル構造を有する金属酸化物である。

[0075] 具体的には、$FeCr_2O_4$、$CuCr_2O_4$、$NiCr_2O_4$、$CoCr_2O_4$、$ZnCr_2O_4$、$MgCr_2O_4$、$MnCr_2O_4$、$CuFe_2O_4$、$NiFe_2O_4$、$CoFe_2O_4$、$ZnFe_2O_4$、$MgFe_2O_4$、$MnFe_2O_4$、CuW_2O_4などが挙げられる。

[0076] これらＬＤＳ添加剤である金属酸化物の製造方法は限定されず、金属酸化物混合粉の焼成、金属粉混合物の酸化、化学合成等で製造されたものを使用すればよい。

[0077] ＬＤＳ添加剤の形状は、微粒子であることが好ましく、その平均粒径（メジアン径（Ｄ５０））は、レーザー回折式粒度分布計で測定した体積粒度分布測定値において、０．０１～５μｍのものが好ましく、特に０．０５～３．０μｍの範囲に入るものが好ましい。ＬＤＳ添加剤の平均粒径が０．０１～５μｍであれば、ＬＤＳ添加剤が樹脂全体に均一に分布し、パッケージ表面にレーザーを照射した際のメッキ触媒となる金属種の発生が促され、メッキ性が向上する。

[0078] ＬＤＳ添加剤の配合量は（Ａ）成分１００質量部に対して２０～１００質量部が好ましく、３０～８０質量部がより好ましい。２０質量部以上であれば、レーザーを照射した際のメッキ触媒となる金属核の発生が十分となり、メッキ性が好ましいものとなる。１００質量部以下であれば、レーザー照射以外の箇所もメッキされる恐れがない。また粒径の小さな金属酸化物粒子の割合が適切になり、組成物の流動性及び成型性が好ましいものとなる。

[0079] また、電気電子機器業界では、近年、世界的にグリーン調達・グリーン設計の流れが強く、より安全な材料が望まれており、例えば、欧州においては、電子電気機器における特定有害物質の使用制限についての欧州連合（ＥＵ）による指令（ＲｏＨＳ指令）が施行されている。このため、前記AB_2O_4

において特にＢがクロムの場合、含有される６価クロムの量はＲｏＨＳ指令に適合して、廃電気・電子機器のリサイクルを容易にするため、また、最終的に埋立てや焼却処分されるときに、ヒトや環境に影響を与えないように９００ｐｐｍ未満とすることが望ましく、更に好ましくは１００ｐｐｍ未満である。６価クロム量は少ないほど好ましいので下限は特に限定されないが、例えば０ｐｐｍを挙げることができる。なお、６価クロムの分析方法は以下のとおりである。

[0080] ＜６価クロム分析方法＞

２０ｇの水酸化ナトリウムと３０ｇの炭酸ナトリウムをイオン交換水に溶かし、１リットルのアルカリ水溶液を調製する。ｐＨは１１．５以上とする。

ＬＤＳ添加剤２．５ｇを清浄な容器に秤量し、１ｍＬの４０％塩化マグネシウム水溶液、１Ｍのリン酸緩衝液、５０ｍＬのアルカリ水溶液を加え、５～１０分撹拌する。

９０～９５℃のウオーターバス内で１時間振盪し、室温で２０～４０分静置する。

３０ｍＬのシリンジに１２ｍＬ以上の溶液を吸い取り、０．４５μｍのフィルターでろ過。ろ液を５０ｍＬの使い捨てビーカーに入れる。

ろ過した抽出液をピペットで１０ｍＬはかり、５０ｍＬのメスフラスコに入れる。１．５～２．０ｍＬの濃硝酸を加えた後、イオン交換水を加え５０ｍＬにする。

調製した液を蛍光Ｘ線にて測定し、事前に準備してある６価クロムの検量線により定量する。

[0081] ＬＤＳ添加剤は、分散性を向上させるため、無機系材料で表面処理してあるグレードもあるが、表面処理品を用いると、メッキ層の剥離、機械強度の低下を引き起こす場合がある。従って、表面処理していないグレードが望ましい。

[0082] （Ｃ）無機充填材

（Ｃ）無機充填材は溶融シリカ、結晶シリカ、クリストバライト、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、酸化チタン、ガラス繊維、アルミナ繊維、酸化亜鉛、タルク、炭化カルシウム等の材料（但し、上述した（Ｂ）成分を除く）を使用することができる。これらを２種以上併用してもよい。（Ｃ）無機充填材のトップカット径は湿式篩法において５～２５μｍが好ましく、より好ましくは１０～２０μｍであり、平均粒径Ｄ５０はレーザー回折式粒度分布計で測定した体積粒度分布測定値において１～１０μｍが好ましく、より好ましくは３～７μｍである。

[0083] ここでいうトップカット径とは、製造された無機充填材が湿式篩法による分級で用いられた篩の目開きを表し、該目開きよりも大きい粒子の割合がレーザー回折法により測定した体積粒度分布測定値において２体積％以下となる値をいう。トップカット径が２５μｍ以下であればレーザー等を照射した際に無機充填材表面が露出した部分がメッキされない、もしくはメッキされた金属層と無機充填剤の結合が不十分で剥離しやすくなる等の問題が生じず、配線層やビア作製の障害となるおそれがない。

[0084] （Ｃ）無機充填材の添加量は、（Ａ）成分１００質量部に対して５０～１，５００質量部が好ましく、１５０～１，２００質量部がより好ましい。

[0085] （Ｄ）カップリング剤

（Ｄ）成分のカップリング剤は、トリアジン官能基型シランカップリング剤、イソシアネート官能基型シランカップリング剤、イソシアヌル酸官能基型シランカップリング剤、ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤、酸無水物官能基型シランカップリング剤、アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤、イミダゾール官能基型シランカップリング剤及び不飽和基含有シランカップリング剤からなる群から選択される一種以上を含み、かつ、前記（Ｄ）カップリング剤が、メルカプトシランカップリング剤、アミノシランカップリング剤及びエポキシシランカップリング剤以外のものである。

[0086] これらの官能基を持つカップリング剤は銅などＬＤＳ添加剤に含まれる金

属原子やメッキ液中の析出させたい金属イオンと配位しやすく、かつ熱硬化性樹脂と架橋するため、ＬＤＳ添加剤と熱硬化性樹脂の結合を強固にするために有用である。また珪素原子に結合したアルコキシ基は無機充填材と縮合反応や水素結合することが出来るため、無機充填材の表面とも結合することが出来る。そのため、メッキ金属層は硬化物と強固な結合を有しており容易に脱離しない。また機械的応力、熱応力によってクラックが発生しない。

[0087] なお、イソシアネート官能基型シランカップリング剤におけるイソシアネート官能基は、保護されたもの（いわゆるブロックイソシアネート基）でも、されていないものでも良い。また、不飽和基含有シランカップリング剤における不飽和基としては、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、スチリル基、（メタ）アクリル基、（メタ）アクリルオキシ基を挙げることができる。

[0088] （Ｄ）カップリング剤の一例を以下に示すがこれらに限定されるものではない。

Ｎ－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］－［１，３，５］トリアジン－２，４，６－トリアミン、Ｎ－［３－（トリエトキシシリル）プロピル］－［１，３，５］トリアジン－２，４，６－トリアミン、（１－｛２－［４，６－ジアミノ－（１，３，５）トリアジン－２－イル］－エチル｝－３－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］ウレア、１－｛２－［４，６－ジアミノ－（１，３，５）トリアジン－２－イル］－エチル｝－３－［３－（トリエトキシシリル）プロピル］ウレア、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、３－ウレイドプロピルトリエトキシシラン、トリス－（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート、トリス－（トリエチルシリルプロピル）イソシアヌレート、１－（３－（トリメトキシシリル）プロピル）－３，５－ジ－２－プロペニル－１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン、１，３，５－トリス（３－（トリメトキシシリル）プロピル）１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン、Ｎ－［５－（トリメトキシシリル）－２－アザ－１－

オキソペンチル］カプロラクタム、Ｎ－［５－（トリエトキシシリル）－２－アザ－１－オキソペンチル］カプロラクタム、Ｎ－［３－（トリエトキシシリル）プロピル］－カルバミン酸エチルエステル、Ｎ－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］－カルバミン酸エチルエステル、３，５－ジメチル－Ｎ－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］－１Ｈ－ピラゾール－１－カルボキシアミド、３，５－ジメチル－Ｎ－［３－（トリエトキシシリル）プロピル］－１Ｈ－ピラゾール－１－カルボキシアミド、２－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］コハク酸無水物、２－［３－（トリエトキシシリル）プロピル］コハク酸無水物、Ｎ－（トリメトキシシリル－プロピル）－１Ｈ－ベンゾトリアゾール－１－カルボジアミド、ジヒドロ－３－（トリメトキシシリル－プロピル）－２，５－フランジオン、２，２－ジメトキシ－１－フェニル－１－アザ－２－シラシクロペンタン、Ｎ－２－ピリジニル－Ｎ－（トリエトキシシリル－プロピル）－ウレア、３－［（トリメトキシシリル）プロピル］－１Ｈ－イミダゾール、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ｐ－スチリルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランが挙げられる。

[0089] 特に、Ｎ－［３－トリエトキシシリル）プロピル］－［１，３，５］トリアジン－２，４，６－トリアミン、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、１－（３－（トリメトキシシリル）プロピル）３，５－ジ－２－プロペニル－１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン、Ｎ－［５－（トリメトキシシリル）－２－アザ－１－オキソペンチル］カプロラクタム、２－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］コハク酸無水物、Ｎ－（トリメトキシシリル－プロピル）－１Ｈ－ベンゾトリアゾール－１－カルボジアミド、２、２－ジメトキシ－１－フェニル－１－ア

ザー２－シラシクロペンタン、３－［（トリメトキシシリル）プロピル］－１Ｈ－イミダゾール、のシランカップリング剤が好ましい。

[0090] これらは１種単独で用いても、２種以上を併用してもよい。また一部のカップリング剤は事前に（Ｃ）無機成分と混合し、予め無機充填材の表面を処理しても良い。

[0091] （Ｄ）成分の添加量としては（Ａ）成分１００質量部に対し、０．３質量部以上、例えば０．５～８．０質量部とすることができる。好ましくは１．０～６．０質量部、更に好ましくは１．５～５．０質量部である。添加量が０．３質量部以上であれば、ＬＤＳ添加剤中の金属やメッキ液中の金属イオンとの結合形成が十分になる。８．０質量部以下であれば、アルコキシ基から発生するアルコール量が多くないため、ボイド多発、電気特性の低下などが起こらない。

[0092] ・その他の添加剤

本発明の樹脂組成物には、更に、必要に応じて、離型剤、難燃剤、イオントラップ剤、可撓性付与剤、着色剤その他の添加剤を含有してもよい。

[0093] 離型剤としては、カルナバワックス、ライスワックス、ポリエチレン、酸化ポリエチレン、モンタン酸、モンタン酸と飽和アルコール、２－（２－ヒドロキシエチルアミノ）－エタノール、エチレングリコール、グリセリン等とのエステル化合物等のワックス；ステアリン酸、ステアリン酸エステル、ステアリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンと酢酸ビニルとの共重合体等が挙げられ、１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0094] 難燃剤としては、ハロゲン化エポキシ樹脂、ホスファゼン化合物、シリコーン化合物、モリブデン酸亜鉛担持タルク、モリブデン酸亜鉛担持酸化亜鉛、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化モリブデン、三酸化アンチモン等が挙げられる。これらの難燃剤は単独で用いても２種以上を組み合わせて用いてもよいが、環境負荷や流動性確保の観点からホスファゼン化合物、モリブデン酸亜鉛担持酸化亜鉛、酸化モリブデンが好適に用いられる。

[0095] イオントラップ剤としては、ハイドロタルサイト化合物、ビスマス化合物、ジルコニウム化合物等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0096] 可撓性付与剤としては、シリコーンオイル、シリコーンレジン、シリコーン変性エポキシ樹脂、シリコーン変性フェノール樹脂等のシリコーン化合物や、スチレン樹脂、アクリル樹脂等の熱可塑性エラストマー等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0097] 着色剤としてはカーボンブラック、チタンブラック、酸化チタン等が挙げられ、これらは１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0098] これらのその他の添加剤の樹脂組成物中の含有量は、各添加剤の機能を良好に発揮させる範囲内で適宜決定すればよいが、例えば（Ａ）成分１００質量部に対して０．１質量部以上２０質量部以下の範囲である。

[0099] ・熱硬化性樹脂組成物の製造方法

本発明の熱硬化性樹脂組成物は例えば次のようにして製造される。すなわち、熱硬化性樹脂、ＬＤＳ添加剤、無機充填材、カップリング剤及びその他の材料をそれぞれ所定の量ずつ配合し、ミキサー等によって十分均一に混合した後、熱ロール、ニーダー、エクストルーダー等による溶融混合処理を行い、次いで冷却固化させ、適当な大きさに粉砕すればよく、得られた組成物は成形材料として使用できる。また、さらに打錠しタブレット形状としても使用できる。

無機充填材とカップリング剤の全量または一部を予め混合処理を行っておいても良い。

[0100] ・熱硬化性樹脂組成物の用途

本発明の熱硬化性樹脂組成物はトランジスタ型、モジュール型、ＤＩＰ型、ＳＯ型、フラットパック型、ボールグリッドアレイ型、チップサイズパッケージ、ウエハーレベルパッケージ、ファンアウトパッケージ等の半導体装置の封止樹脂として有効である。本発明の熱硬化性樹脂組成物による半導体装置の封止方法は特に制限されるものでなく、従来の成形法、例えばトラン

スファー成形、インジェクション成形、コンプレッション成形、注型法等を利用すればよい。

[0101] ・熱硬化性樹脂組成物の硬化物

本発明の熱硬化性樹脂組成物の成形（硬化）条件は特に規制されるものでないが、１２０～１９０℃で９０～３００秒間が好ましい。さらに、ポストキュアを１７０～２５０℃で２～１６時間行うことが好ましい。

[0102] 本発明の熱硬化性樹脂組成物の硬化物の表面又は内部に容易かつ選択的にレーザーダイレクトストラクチャリングによる無電解メッキにより金属層を設けることができることから、電磁波シールド性を必要とする通信用デバイス、アンテナ回路を必要とするデバイス、有機基板の代わりに封止樹脂層に回線回路を持つデバイス等に好適に使用できる。

[0103] ・半導体装置

本発明の半導体装置は、本発明の熱硬化性樹脂組成物の硬化物を有するものであり、前記硬化物の一部または全部がメッキ処理されていることが好ましい。メッキ処理を施す方法としては、特に限定されないが、一例を以下に記す。

硬化物の表面に、例えば波長１８５ｎｍ，２４８ｎｍ、２５４ｎｍ、３０８ｎｍ、３５５ｎｍ、５３２ｎｍ、１，０６４ｎｍ又は１０，６００ｎｍから選ばれるレーザー光を、所望の配線、深さになるように照射する。表面からの深さは０～３０μｍ、好ましくは０～２０μｍである。

[0104] 硬化物の切断面、および硬化物の開口部にメッキする場合も同様に、波長１８５ｎｍ，２４８ｎｍ、２５４ｎｍ、３０８ｎｍ、３５５ｎｍ、５３２ｎｍ、１，０６４ｎｍ又は１０，６００ｎｍから選ばれるレーザー光を、所望の深さ、孔径になるように照射する。レーザー照射後、Ｃｕ、Ｎｉ、Ａｇなど目的とする金属成分を含むメッキ液に浸漬する方法が挙げられる。レーザーの出力は０．０１～１５Ｗ、レーザーの走査速度は１～１，０００ｍｍ／ｓの範囲が好ましい。メッキ液は目的とする金属成分の他、錯化剤、ｐＨ調整剤、電導度塩、還元剤などを含む溶液で、一般的に市販しているものを用

いることができる。メッキ液の温度は５０～８０℃、浸漬時間は２０～１２０分である。

[0105] このような本発明の半導体装置は、接着層や、レジスト等の追加的材料を用いずに硬化物の表面、断面、または開口部に金属層の形成が選択的かつ効率的になされるとともに、メッキの剥がれや、硬化物にクラックが生じることもないため、信頼性の高いものとなる。

[0106] ・半導体装置の製造方法

本発明の半導体装置は、本発明の熱硬化性樹脂組成物を用い、公知のＬＤＳ技術により製造することができる。ＬＤＳ技術としては、例えば、特許文献２～４や、特許第６４２３４１８号公報に記載のものを採用することができる。

[0107] 上記硬化物の一部または全部がメッキ処理されている半導体装置は、硬化物の一部または全部をメッキ処理する工程を含み、前記メッキ処理がレーザー照射箇所に施されることで製造することができる。メッキ処理は上記のように行えばよい。

このような半導体装置の製造方法であれば、連続生産がより効果的に行えるため、生産性に優れている。

実施例

[0108] 以下に実施例及び比較例を示し、本発明をより詳細に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

実施例及び比較例に使用した材料を以下に示す。なお、６価クロム含有量、平均粒径、トップカット径は上述の方法により求めた値である。

[0109] （Ａ）熱硬化性樹脂

・エポキシ樹脂１：オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂：ＤＩＣ社製「エピクロンＮ６５５ＥＸＰ－Ｓ」（エポキシ当量２１０）

・エポキシ樹脂２：ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂：日本化薬社製「ＮＣ－３０００」（エポキシ当量２７３）

・環状イミド化合物：ビスマレイミド樹脂：信越化学社製「ＳＬＫ－３００

０」

・シアネートエステル化合物：ノボラック型シアネートエステル化合物：ロンザ製「プリマセットＰＴ－６０」

・シクロペンタジエン化合物：信越化学社製「ＳＬＫ－２５０」

[0110] また、必要に応じて以下の成分を添加した。

・フェノール樹脂１：ノボラック型フェノール樹脂：ＤＩＣ社製「ＴＤ－２０９３Ｙ」（フェノール当量１１０）

・フェノール樹脂２：アラルキル型フェノール樹脂：明和化成社製「ＭＥＨＣ－７８５１ＳＳ」（フェノール当量１７５）

・硬化促進剤：Ｎ’－［３－［［［（ジメチルアミノ）カルボニル］アミノ］メチル］－３，５，５－トリメチルシクロヘキシル］－Ｎ，Ｎ－ジメチルウレア：サンアプロ社製「Ｕ－ｃａｔ　３５１３Ｎ」

・重合開始剤：ジクミルパーオキサイド：日油社製「パークミルＤ」

[0111]（Ｂ）ＬＤＳ添加剤

・ＬＤＳ添加剤１：シェファードカラージャパンインク社製［ＬＤ３８Ｓ：（$CuCr_2O_4$：６価クロム含有量８８ｐｐｍ）：平均粒径１．０μｍ、表面処理なし］

・ＬＤＳ添加剤２：シェファードカラージャパンインク社製［ＥＸ－１８１５：（CuW_2O_4：６価クロム含有量１０ｐｐｍ未満）：平均粒径０．７μｍ、表面処理なし］

・ＬＤＳ添加剤３：シェファードカラージャパンインク社製［Ｂｌａｃｋ３０Ｃ９６５：（$CuCr_2O_4$：６価クロム含有量２６３ｐｐｍ）：平均粒径０．９μｍ、表面処理あり］

[0112]（Ｃ）無機充填材

・シリカ粒子１：龍森社製「ＭＵＦ－４」（平均粒径４μｍ、トップカット径１０μｍ）

・アルミナ粒子１：アドマテックス社製「ＡＣ９１０４－ＳＸＥ」（平均粒径４μｍ、トップカット径１０μｍ）

[0113] （Ｄ）カップリング剤

・トリアジン官能基型シランカップリング剤：Ｎ－［３－トリエトキシシリル）プロピル］－［１，３，５］トリアジン－２，４，６－トリアミン；四国化成社製「ＶＤ－５」

・イソシアネート官能基型シランカップリング剤：３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン：信越化学社製　［ＫＢＥ９００７Ｎ］

・イソシアヌル酸官能基型シランカップリング剤：１－（３－（トリメトキシシリル）プロピル）３，５－ジ－２－プロペニル－１，３，５－トリアジン－２，４，６（１Ｈ，３Ｈ，５Ｈ）－トリオン：信越化学社製［Ｘ－１２－１２９０］

・ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤：Ｎ－（トリメトキシシリル－プロピル）－１Ｈ－ベンゾトリアゾール－１－カルボジアミド：信越化学社製［Ｘ－１２－１２１４Ａ］

・酸無水物官能基型シランカップリング剤：信越化学社製：２－［３－（トリメトキシシリル）プロピル］コハク酸無水物：［Ｘ－１２－１６７Ｃ］

・アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤：２，２－ジメトキシ－１－フェニル－１－アザ－２－シラシクロペンタン：［信越化学社製、Ｘ－８８－３９８］

・イミダゾール官能基型シランカップリング剤：３－［（トリメトキシシリル）プロピル］－１Ｈ－イミダゾール：［日鉱金属社製、ＩＳ－１０００］

・メルカプト官能基型シランカップリング剤：３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン［信越化学社製、ＫＢＭ－８０３］

・アミノ官能基型シランカップリング剤：Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン［信越化学社製、ＫＢＭ－５７３］

・エポキシ官能基型シランカップリング剤：３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン［信越化学社製、ＫＢＭ－４０３］

・不飽和基含有シランカップリング剤：ｐ－ビニルフェニルトリメトキシシラン［信越化学社製、ＫＢＭ－１４０３］

[0114] ［離型剤］

・ポリエチレンワックス：「クラリアント社製、リコワックスＰＥ－５２０」

[0115] ［着色剤］

・アセチレンブラック：「デンカ社製、デンカブラック」

[0116] ［実施例１～１２、比較例１～８］

上記成分を表１～２に記載の組成（質量部）に従い配合し、実施例１～１０、比較例１～７に関して各成分を溶融混合し、冷却、粉砕して組成物を得た。実施例１１、１２、比較例８に関しては各成分をシンキーミキサーで混合後、３本ロールで混練したところ、粘稠な液体が得られた。各組成物を以下に示す方法に従い評価し、その結果を表１、２に示した。

[0117] ［硬化物のメッキ性評価］

（表面メッキ性評価）

３２ｍｍ×３２ｍｍ、厚み１．６ｍｍ厚のガラスエポキシプリント配線基板に１０ｍｍ×１０ｍｍ、厚み０．７５ｍｍのシリコンチップを搭載したもの準備した。

実施例１～１０、比較例１～７に関しては、１７５℃、６．９Ｎ／ｍｍ^2、キュア時間２分間のトランスファー条件で成形し、その後１７５℃で２時間、ポストキュアを行って、熱硬化性樹脂の成形サイズが２８ｍｍ×２８ｍｍ、成形厚さが１．２ｍｍの半導体装置を作製した。

実施例１１、１２、比較例８に関しては、模擬半導体装置上に２８ｍｍ×２８ｍｍのテフロン（登録商標）製枠を設置した中に注型し、窒素雰囲気下、昇温１℃／分で３００℃まで昇温し熱硬化性樹脂のサイズが２８ｍｍ×２８ｍｍで厚さが１．２ｍｍの半導体装置を作製した。

YVO_4レーザーマーカー（ＫＥＹＥＮＣＥ社製、１０６４ｎｍ）を用いて、速度１，０００ｍｍ／ｓ、出力１３Ｗ、の条件で、硬化物表面に線幅５０μｍ、長さ１０ｍｍの線を１ｍｍ間隔で１０本マーキングした。半導体装置を、６５℃に加温した無電解Ｃｕメッキ液：ＭＩＤ　Ｃｏｐｐｅｒ　１００

ＸＢ（マクダーミッド社製）に撹拌しながら２０分間浸漬した。水洗、乾燥後、硬化物表面に形成された線幅５０μｍ、長さ１０ｍｍのメッキ配線の両端の抵抗値を測定し、１０本の平均値を記録した。

またレーザー照射部以外にもメッキされ、配線間がショートしているかどうかも観察した。

[0118]（メッキ層と硬化物の密着性評価）

メッキ配線された硬化物表面に３Ｍスコッチテープ（スリーエムジャパン製）によるピール試験を実施した。引きはがしたスコッチテープに１０本のメッキ配線中、配線、または配線の一部が付着した（メッキがはがれた）本数を記録した。

[0119]（温度サイクル試験）

半導体装置の温度サイクル試験を実施した。設定条件：下限温度－４０℃／３０分、上限温度１５０℃／３０分とした。１，０００サイクル後、半導体装置にクラックが発生しているか目視で観察した。

[0120]（内部メッキ性評価）

レーザー基板切断機ＭｉｃｒｏＬｉｎｅ５８２０Ｐ（ＬＰＫＦ製）を用いて厚さ０．２０ｍｍの硬化物に２００μｍφの貫通孔を１０個形成した。

この成形物を前記メッキ液に６５℃で３０分浸漬し貫通孔にメッキした。内部メッキ性の確認は、貫通孔を断面研磨し、顕微鏡にてメッキ性を確認した。

[0121]

[表1]

		実施例											
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
(A)	エポキシ樹脂1	65.0	65.0	65.0	65.0								
	エポキシ樹脂2					60.0	60.0	60.0					
	環状イミド化合物								100.0	100.0			
	シアネートエステル化合物										80.0		
	シクロペンタジエン化合物											100.0	100.0
	フェノール樹脂1	35.0	35.0	35.0	35.0								
	フェノール樹脂2					40.0	40.0	40.0			20.0		
	硬化促進剤	2.0											
	重合開始剤								2.0	2.0		1.0	1.0
(B)	LDS添加剤1	20.0	100.0	50.0		70.0			25.0	25.0	50.0	20.0	20.0
	LDS添加剤2						70.0	70.0					
	LDS添加剤3				50.0								
(C)	シリカ粒子1	200.0		600.0	600.0	650.0	650.0	650.0	250.0	250.0	500.0	180.0	180.0
	アルミナ粒子1		1000.0										
(D)	トリアジン官能基型シランカップリング剤		2.0										
	イソシアネート官能基型シランカップ剤			2.0	2.0						2.0		
	イソシアヌル酸官能基型シランカップ剤									1.0		2.0	
	ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤					2.0							
	酸無水物官能基型シランカップリング剤						2.0	3.3	1.0				
	アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤	3.4	5.0	3.0	3.0	3.3	3.3		1.3	1.3	2.5	0.9	
	イミダゾール官能基型シランカップリング剤							1.0					
	不飽和基官能型シランカップリング剤												2.0
	離型剤	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
	着色剤	0.5	0.5	0.5		0.5			0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
評価結果	LDS添加剤中の6価クロム含有量（ppm）	88	88	88	263	88	<10	<10	88	88	88	88	88
	メッキ配線抵抗値(Ω)	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
	配線間（ショート 有無）	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無
	密着性評価 (メッキがはがれた本数(10本中))	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	温度サイクル試験（クラック有無）	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無
	内部メッキ性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好

[0122] [表2]

		比較例							
		1	2	3	4	5	6	7	8
(A)	エポキシ樹脂1	65.0	65.0	65.0	65.0				
	エポキシ樹脂2								
	環状イミド化合物					100.0	100.0		
	シアネートエステル化合物							80.0	
	シクロペンタジエン化合物								100.0
	フェノール樹脂1	35.0	35.0	35.0	35.0				
	フェノール樹脂2							20.0	
	硬化促進剤								
	重合開始剤					2.0	2.0		1.0
(B)	LDS添加剤1		50.0						
	LDS添加剤2								
	LDS添加剤3	50.0		50.0	50.0	25.0	25.0	50.0	20.0
(C)	シリカ粒子1	600.0	600.0	600.0	600.0	250.0	250.0	500.0	180.0
	アルミナ粒子1								
(D)	トリアジン官能基型シランカップリング剤								
	イソシアネート官能基型シランカップ剤								
	イソシアヌル酸官能基型シランカップ剤								
	ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤								
	酸無水物官能基型シランカップリング剤								
	アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤								
	イミダゾール官能基型シランカップリング剤								
	メルカプト官能基型シランカップリング剤	3.0				3.0			3.0
	アミノ官能基型シランカップリング剤		3.0	3.0					
	エポキシ官能基型シランンカップリング剤				3.0		3.0	3.0	3.0
	離型剤	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0		1.0	1.0
	着色剤		0.5						
評価結果	LDS添加剤中の6価クロム含有量（ppm）	263	88	263	263	263	263	263	263
	メッキ配線抵抗値(Ω)	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
	配線間（ショート 有無）	無	無	無	無	無	無	無	無
	密着性評価 (メッキがはがれた本数(10本中))	5	5	3	3	10	10	2	8
	温度サイクル試験（クラック有無）	有	有	無	有	無	無	有	有
	内部メッキ性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好

[0123] 本発明の熱硬化性樹脂組成物の硬化物は、特定の（D）カップリング剤を含むため、メッキ配線の導通性に優れ、配線間のショートもなく（表面メッ

キ性に優れ）、メッキがはがれることなく（メッキ層と硬化物の密着性に優れ）、温度サイクル試験において半導体装置にクラックが発生せず、貫通孔内部のメッキ性も良好であった。このように、特定の官能基を持つ（Ｄ）成分は、ＬＤＳ添加剤と熱硬化性樹脂の結合が強固になるとともに、珪素原子に結合したアルコキシ基が配合された無機充填材の表面とも結合するため、メッキ金属層は硬化物と強固な結合を形成して容易に脱離しない。特に、ＬＤＳ添加剤の表面処理をしていても、メッキ層と硬化物の密着性に優れ、機械的応力、熱応力によってクラックが発生しない（実施例４）。このため、採用できるＬＤＳ添加剤の選択範囲が広がる。一方、上記（Ｄ）成分と異なるカップリング剤を含む組成物を硬化した比較例１～８では、メッキ層と硬化物の密着性が劣るうえ、温度サイクル試験において半導体装置にクラックが発生する場合があり（比較例１，２，４，７，８）、密着性と耐クラック性とを両立できない。

[0124] 以上の結果から、本発明の組成物は硬化物表面に無電解メッキ処理により密着性良好な金属層を形成でき、耐クラック性と両立できることから、電磁波シールド性を必要とする通信デバイスや、アンテナを備える半導体装置、配線層を形成する必要がある半導体装置に好適である。

[0125] なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）熱硬化性樹脂、

（Ｂ）レーザーダイレクトストラクチャリング添加剤、

（Ｃ）無機充填材、及び

（Ｄ）カップリング剤

を含む熱硬化性樹脂組成物であって、

前記（Ｄ）カップリング剤が、トリアジン官能基型シランカップリング剤、イソシアネート官能基型シランカップリング剤、イソシアヌル酸官能基型シランカップリング剤、ベンゾトリアゾール官能基型シランカップリング剤、酸無水物官能基型シランカップリング剤、アザシラシクロペンタン官能基型シランカップリング剤、イミダゾール官能基型シランカップリング剤及び不飽和基含有シランカップリング剤からなる群から選択される一種以上を含み、かつ、前記（Ｄ）カップリング剤が、メルカプトシランカップリング剤、アミノシランカップリング剤及びエポキシシランカップリング剤以外のものであることを特徴とする熱硬化性樹脂組成物。

[請求項2] 前記（Ｂ）成分が、下記式（１）

$$AB_2O_4 \qquad (1)$$

（式中、Ａは鉄、銅、ニッケル、コバルト、亜鉛、マグネシウム及びマンガンから選ばれる１種もしくは２種以上の金属元素であり、Ｂは鉄、クロム又はタングステンであり、ただしＡ及びＢは同時に鉄ではない）

の平均組成式で示され、スピネル構造を有する金属酸化物であることを特徴とする請求項１に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項3] 前記（Ｂ）成分中の６価クロムの含有量が１００ｐｐｍ未満であることを特徴とする請求項１または請求項２に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項4] 前記（Ｂ）成分が表面処理されていないレーザーダイレクトストラ

クチャリング添加剤であることを特徴とする請求項１から請求項３のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

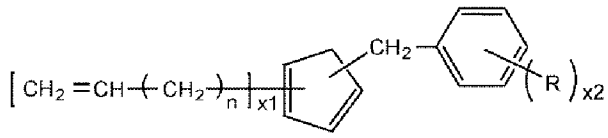
[請求項5] 前記（Ａ）熱硬化性樹脂がエポキシ樹脂を含むものであることを特徴とする請求項１から請求項４のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項6] 前記（Ａ）熱硬化性樹脂が１分子中に、１つ以上のダイマー酸骨格、１つ以上の炭素数６以上の直鎖アルキレン基、及び２つ以上の環状イミド基を含有する環状イミド化合物を含むものであることを特徴とする請求項１から請求項５のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項7] 前記（Ａ）熱硬化性樹脂が１分子中に２個以上のシアナト基を有するシアネートエステル化合物を含むものであることを特徴とする請求項１から請求項６のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項8] 前記（Ａ）熱硬化性樹脂が下記式（２）

[化1]



(2)

（式（２）中、Ｒは炭素数１～６のアルキル基、炭素数２～６のアルケニル基、及び炭素数６～１０のアリール基から選ばれる基を示し、ｎは１～４の整数であり、ｘ１及びｘ２は独立して０、１又は２であり、ただし、Ｒがアルキル基又はアリール基を示す場合は、ｘ１は１又は２であり、かつ、１≦ｘ１＋ｘ２≦４である）

で示されるシクロペンタジエン化合物及び／又はそのオリゴマーを含むものであることを特徴とする請求項１から請求項７のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項9] 請求項１から請求項８のいずれか１項に記載の熱硬化性樹脂組成物が硬化してなるものであることを特徴とする硬化物。

[請求項10] 請求項９に記載の硬化物を有するものであることを特徴とする半導体装置。

[請求項11] 前記硬化物の一部または全部がメッキ処理されているものであることを特徴とする請求項１０に記載の半導体装置。

[請求項12] 請求項１１に記載の半導体装置の製造方法であって、前記硬化物の一部または全部をメッキ処理する工程を含み、前記メッキ処理がレーザー照射箇所に施されることを特徴とする半導体装置の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/028227

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L 23/28(2006.01)i; ***H01L 23/29***(2006.01)i; ***H01L 23/31***(2006.01)i; ***C08K 5/54***(2006.01)i; ***C08L 45/00***(2006.01)i; ***C08L 101/00***(2006.01)i; ***C08L 63/00***(2006.01)i; ***C08L 79/00***(2006.01)i; ***C08K 3/013***(2018.01)i; ***C08K 3/22***(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K3/013; C08K5/54; C08K3/22; C08L63/00 C; C08L79/00 Z; C08L45/00; H01L23/28 F; H01L23/30 R

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)

H01L23/28; H01L23/29; H01L23/31; C08K5/54; C08L45/00; C08L101/00; C08L63/00; C08L79/00; C08K3/013; C08K3/22

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 1971-2021
Registered utility model specifications of Japan 1996-2021
Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CN 105504686 A (SHENGYI TECHNOLOGY CO., LTD.) 20 April 2016 (2016-04-20) claims, paragraphs [0015]-[0026], examples	1-7, 9-12
A		8
A	JP 6265308 B1 (SUMITOMO BAKELITE CO.) 24 January 2018 (2018-01-24) entire text	1-12
P, A	JP 6907393 B1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 21 July 2021 (2021-07-21) entire text	1-12

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☑ 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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"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)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"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
"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
"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
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
21 September 2021	**05 October 2021**
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/JP2021/028227

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
CN 105504686 A	20 April 2016	(Family: none)	
JP 6265308 B1	24 January 2018	US 2019/0292386 A1 entire text WO 2017/199639 A1 EP 3460005 A1 TW 201819497 A CN 109153858 A KR 10-2018-0135077 A	
JP 6907393 B1	21 July 2021	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/028227

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

H01L 23/28(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08K 5/54(2006.01)i; C08L 45/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 79/00(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/22(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K3/013; C08K5/54; C08K3/22; C08L63/00 C; C08L79/00 Z; C08L45/00; H01L23/28 F; H01L23/30 R

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））

H01L23/28; H01L23/29; H01L23/31; C08K5/54; C08L45/00; C08L101/00; C08L63/00; C08L79/00; C08K3/013; C08K3/22

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	１９７１－２０２１年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２１年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２１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）

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
X A	CN 105504686 A (SHENGYI TECHNOLOGY CO., LTD.) 20.04.2016 (2016-04-20) 請求の範囲, [0015]-[0026], 実施例	1-7,9-12 8
A	JP 6265308 B1 (住友ベークライト株式会社) 24.01.2018 (2018-01-24) 全文	1-12
P, A	JP 6907393 B1 (信越化学工業株式会社) 21.07.2021 (2021-07-21) 全文	1-12

☐ 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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
21.09.2021	05.10.2021

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）
櫛引　智子 4J 3235
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2021/028227

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
CN 105504686 A	20.04.2016	（ファミリーなし）	
JP 6265308 B1	24.01.2018	US 2019/0292386 A1 全文 WO 2017/199639 A1 EP 3460005 A1 TW 201819497 A CN 109153858 A KR 10-2018-0135077 A	
JP 6907393 B1	21.07.2021	（ファミリーなし）	