

(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
2020年12月30日(30.12.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/262585 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 14/12 (2006.01) C08L 35/00 (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
H01L 23/31 (2006.01) C08K 3/36 (2006.01)
C08F 222/40 (2006.01)

三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 木田 剛(KIDA, Tsuyoshi); 〒1258601 東京都葛飾区新宿 6 丁目 1 番 1 号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/025148

(22) 国際出願日: 2020年6月26日(26.06.2020)

(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 2019-122395 2019年6月28日(28.06.2019) JP

(74) 代理人: 稲葉 良幸, 外(INABA, Yoshiyuki et al.); 〒1066123 東京都港区六本木 6 - 1 0 - 1 六本木ヒルズ森タワー 2 3 階 T M I 総合法律事務所 Tokyo (JP).

(71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo (JP).

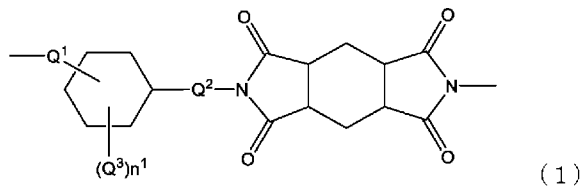
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(72) 発明者: 岡庭 正志 (OKANIWA, Masashi); 〒1258601 東京都葛飾区新宿 6 丁目 1 番 1 号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 高野 健太郎 (TAKANO, Kentaro); 〒1258601 東京都葛飾区新宿 6 丁目 1 番 1 号

(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,

(54) Title: RESIN COMPOSITION, RESIN SHEET, LAYERED PRODUCT, SEMICONDUCTOR WAFER WITH RESIN COMPOSITION LAYER, SUBSTRATE WITH RESIN COMPOSITION LAYER FOR SEMICONDUCTOR MOUNTING, AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: 樹脂組成物、樹脂シート、積層体、樹脂組成物層付き半導体ウェハ、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板、及び半導体装置



(57) Abstract: A resin composition which comprises a bismaleimide compound (A) comprising a constituent unit represented by formula (1) and maleimide groups at both ends of the molecular chain, a radical-polymerizable resin or compound (B) that is not the bismaleimide compound (A), and a hardening accelerator (C), wherein the radical-polymerizable resin or compound (B) includes at least one group selected from among citraconimide, vinyl, maleimide, (meth)acryloyl, and allyl groups.

(57) 要約: 下記式(1)で表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基と、を含む、ビスマレイミド化合物(A)と、前記ビスマレイミド化合物(A)以外の、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)と、硬化促進剤(C)と、を含み、前記ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)が、シトラコンイミド基、ビニル基、マレイミド基、(メタ)アクリロイル基、及びアリル基から選ばれる少なくとも1種を含む、樹脂組成物。



WO 2020/262585 A1

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：

樹脂組成物、樹脂シート、積層体、樹脂組成物層付き半導体ウェハ、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板、及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、樹脂シート、樹脂組成物を用いた積層体、樹脂組成物層付き半導体ウェハ、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板、及び半導体装置に関する。詳しくは、本発明は、アンダーフィル材として有用な樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、半導体装置の小型化、及び高性能化に伴い、半導体チップ（以下、「チップ」と略す場合がある。）を半導体搭載用基板（以下、「基板」と略す場合がある。）に搭載する方法として、フリップチップ実装が注目されている。フリップチップ実装においては、チップと基板を接合した後、チップと基板の間隙にアンダーフィル材を充填し、硬化させる工法が一般的である。しかし、半導体装置の小型化や高性能化に伴い、チップに配列される電極の狭ピッチ化や電極間の狭ギャップ化が進み、アンダーフィル材の充填の長時間化による作業性の悪化や未充填等の充填不良の発生が問題となっている。これに対し、チップ又は基板にプリアプライドアンダーフィル材を供給した後、チップと基板との接合と、アンダーフィル材の充填とを同時に行う工法が検討されている。

[0003] アンダーフィル材は、チップ、及び基板と直接接触する部材であることから、アンダーフィル材に求められる重要な特性として、半導体装置を製造、及び使用される環境において、チップ、及び基板とアンダーフィル材との間のアンダーフィル未充填部分が抑制されること（以下、「低ボイド性」と称す場合がある。）や、チップ、及び基板とアンダーフィル材との良好な接着性（以下、「チップ接着性」と略す場合がある。）が挙げられる。また、プ

リアプライドアンダーフィル材を使用する場合には、アンダーフィル材のハンドリング性の観点より、タック性が低いことが必要とされる。更に、チップと基板との接着箇所の位置精度も求められることから、チップ、及び基板におけるアライメントメークの視認性として、アンダーフィル材の透過性も必要とされる。

[0004] 特許文献1には、主樹脂にラジカル重合性モノマーを使用したリアプライドアンダーフィル材が記載されている。この特許文献1には、チップとの接着性向上を目的にしたシランカップリング剤の配合についての記載がある。

[0005] 特許文献2には、エポキシ樹脂、イミダゾール化合物、及びマレイミド化合物を含むアンダーフィル材が記載されている。

[0006] 特許文献3には、エポキシ化合物、カルボキシル基含有フラックス成分を使用するリアプライドアンダーフィル材が記載されており、接着について言及されている。

[0007] 特許文献4には、マレイミド化合物、エポキシ樹脂、及びエポキシ樹脂硬化剤を必須成分とする樹脂組成物が記載されており、熱硬化後の樹脂組成物において高い密着性が得られたと記載されている。

[0008] 特許文献5には、プリント配線基板における絶縁層を形成するために用いられる熱硬化性樹脂組成物であって、特定の構造を有するマレイミド化合物、ベンゾオキサジン化合物、及び無機充填材を含有するプリント配線基板用樹脂組成物についての記載がある。

[0009] 特許文献6には、脂肪族エポキシ化合物、及びベンゾオキサジン化合物を硬化主剤として含有し、かつ、フェノール系硬化剤を含有する電子部品用接着剤についての記載がある。

[0010] 特許文献7には、熱硬化性化合物、前記熱硬化性化合物と反応可能な官能基を有するポリマー、及び熱硬化剤とを含有し、ボンディング温度での熔融粘度が $10\text{ Pa}\cdot\text{s} \sim 15000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ であり、ボンディング温度でのゲルタイムが10秒以上であり、かつ、 240°C でのゲルタイムが1秒 \sim 10

秒である接着剤組成物についての記載がある。

- [0011] 特許文献 8 には、シート状熱硬化性樹脂組成物を用いた半導体装置の製造方法の記載がある。
- [0012] 特許文献 9 には、フェノキシ樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリアミド樹脂、及びアクリル樹脂から選ばれる少なくとも 1 種の樹脂成分、エポキシ樹脂、熱ラジカル重合性物質、及び熱ラジカル発生剤を特定量で含むアンダーフィル絶縁フィルムの記載がある。
- [0013] 特許文献 10 には、動的粘弾性測定装置を用いた測定において、60℃から10℃/分で昇温させた際の、120℃での溶融粘度 η^*_1 が $2 \times 10^2 \text{ Pa} \cdot \text{s} \sim 2 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であり、140℃での溶融粘度 η^*_2 が $3 \times 10^2 \text{ Pa} \cdot \text{s} \sim 3 \times 10^5 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である、ギャングボンディングプロセス用アンダーフィル絶縁フィルムの記載がある。
- [0014] 特許文献 11 には、半導体チップと回路基板との間に配置され、硬化すると前記半導体チップを前記回路基板に固定する未硬化のアンダーフィル材であり、特定量のアクリルポリマーと、アクリルモノマーと、特定量のマレイミド化合物とを含む、アンダーフィル材の記載がある。
- [0015] 特許文献 12 には、数平均分子量が600以下のエポキシ樹脂と、数平均分子量が500を超えるフェノール樹脂、及びエラストマーを含む樹脂成分を含み、樹脂成分中のエポキシ樹脂及びフェノール樹脂の含有量がそれぞれ特定量で含む、アンダーフィル用接着フィルムの記載がある。
- [0016] また、チップと基板とを、酸化されやすい金属、例えば、はんだや銅を介して接合する場合、接合の阻害要因となる金属酸化膜を接合部から除去し、良好な金属接合を得ることを目的として、プリアプライドアンダーフィル材にカルボン酸などに由来するフラックス成分を添加することがある。

先行技術文献

特許文献

- [0017] 特許文献1：特表2015-503220号公報
特許文献2：特表2014-521754号公報

特許文献3：特開2013-112730号公報

特許文献4：特開2003-221443号公報

特許文献5：特開2016-196548号公報

特許文献6：特開2013-008800号公報

特許文献7：特開2011-157529号公報

特許文献8：特開2006-245242号公報

特許文献9：特開2019-029599号公報

特許文献10：特開2018-160566号公報

特許文献11：特開2018-195823号公報

特許文献12：特開2014-203964号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0018] しかし、一般的にラジカル重合性モノマーは硬化が速く、配合したシランカップリング剤の接着部位の運動性がチップ表面のシラノール基と、十分な数の結合を形成する前に重合が進んだ主樹脂により律速されてしまう。その結果、特許文献1に記載のプリアプライドアンダーフィル材では、チップ、及びプリント配線板などの基板とアンダーフィル材との間において、十分な低ボイド性、及び良好なチップ接着性が得られない。また、ラジカル重合性モノマーは硬化が速いため、樹脂組成物がチップ表面に存在する凹凸に埋まる前に硬化するので、特許文献1に記載のプリアプライドアンダーフィル材では、接着性向上の上で有用となるアンカー効果が十分に得られないという問題もある。

[0019] 特許文献2に記載の材料は、ポリイミドパッシベーション膜にしか作用しないことから、適用範囲が狭いという問題がある。

[0020] 特許文献3に記載の技術において、室温であってもカルボキシル基含有化合物は、エポキシ化合物とわずかに反応が進行し、保管中にフラックス活性が経時的に低下する。そのため、特許文献3に記載のプリアプライドアンダーフィル材は、接合安定性が低く、量産性に乏しいという問題がある。

- [0021] 特許文献4に記載の技術においては、マレイミド樹脂の吸水率が高いため、吸湿処理後のチップ接着性が大幅に低下するという問題がある。接着性が不十分であると、剥離界面から水が浸入し、絶縁信頼性が大きく低下する。また、マレイミド樹脂のみでも、低ボイド性、とチップ接着性との両立は困難である。
- [0022] 特許文献5では、フラックス活性に関する記載はなく、また、フラックス成分についても記載がない。そのため、特許文献5に記載の樹脂組成物では、良好な金属接合は得られないとの問題がある。
- [0023] 特許文献6では、エポキシ化合物の接着性は高いが、エポキシ化合物はフラックス成分とも反応してしまい、良好な金属接合を得るために十分なフラックス活性が得られないという問題がある。
- [0024] 特許文献7の接着剤組成物では、フラックス性を有する熱硬化剤を含むが、実施例において、エポキシ化合物、及びエポキシ基を含有するポリマーが使用されており、ボンディング温度より低温で両者が反応してしまうため十分なフラックス活性を得ることが難しい。
- [0025] 特許文献8においても、熱硬化性樹脂組成物中に含まれる熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂が好適であることが記載されているが、前記のとおり、エポキシ化合物はフラックス成分とも反応してしまい、良好な金属接合を得るために十分なフラックス活性が得られないという問題もある。
- [0026] 更に、従来のアンダーフィル材では、例えば、特許文献9の段落〔0002〕、及び特許文献10の段落〔0002〕に記載のとおり、良好な透過性が得られないとの課題を有する。また、従来のアンダーフィル材では、例えば、特許文献11の段落〔0016〕、及び特許文献12の段落〔0026〕に記載のとおり、ハンドリング性を確保するために、タック性の制御が必要であるという課題を有する。
- [0027] 本発明は、このような課題に鑑みてなされたものであり、低ボイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れる、樹脂組成物、樹脂シート、積層体、樹脂組成物層付き半導体ウェハ、樹脂組

成物層付き半導体搭載用基板、及び半導体装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

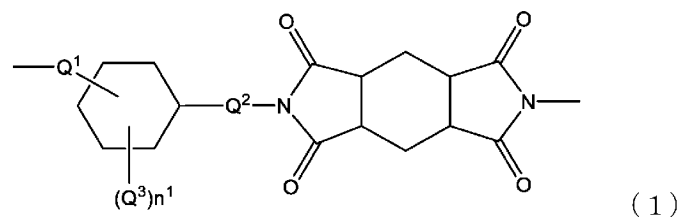
[0028] 本発明者らは、前記問題点を解決のため鋭意検討した結果、特定のビスマレイミド化合物（A）と、特定のラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と、硬化促進剤（C）とを含む樹脂組成物が、前記課題を解決できることを見出し、本発明に到達した。

[0029] すなわち、本発明は以下の内容を含む。

[0030] [1]

下記式（1）で表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基と、を含む、ビスマレイミド化合物（A）と、前記ビスマレイミド化合物（A）以外の、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と、硬化促進剤（C）と、を含み、前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）が、シトラコンイミド基、ビニル基、マレイミド基、（メタ）アクリロイル基、及びアリル基から選ばれる少なくとも1種を含む、樹脂組成物。

[0031] [化1]



[0032] （式（1）中、Q¹は、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。Q²は、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。Q³は、各々独立に、水素原子、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基を示す。n¹は、各々独立に、1～10の整数を示す。）。

[0033] [2]

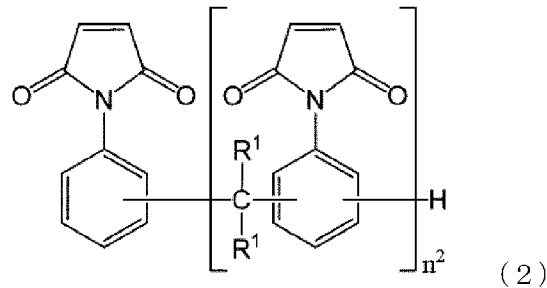
前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）が、マレイミド基を含む、[1]

に記載の樹脂組成物。

[0034] [3]

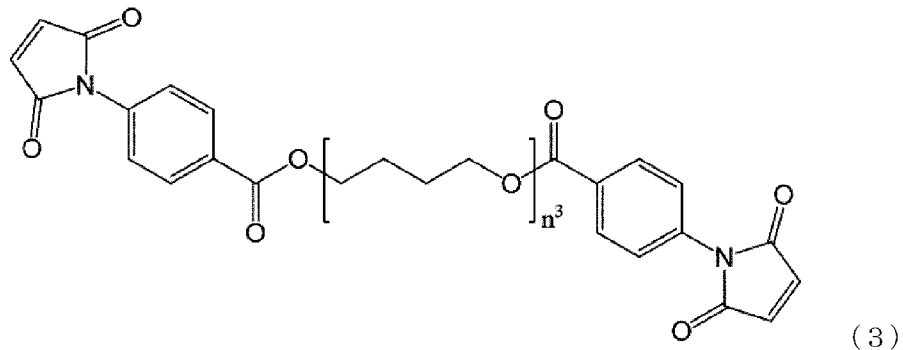
前記ラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) が、2, 2-ビス [4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン、下記式 (2) で表されるマレイミド化合物、下記式 (3) で表されるマレイミド化合物、下記式 (4) で表されるマレイミド化合物、下記式 (5) で表されるマレイミド化合物、下記式 (6) で表される化合物、下記式 (7) で表される化合物、下記式 (10) で表される化合物、下記式 (11) で表される化合物、下記式 (12) で表される化合物、及び下記式 (13) で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、[1] 又は [2] に記載の樹脂組成物。

[0035] [化2]



[0036] (式 (2) 中、 R^1 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n^2 は 1 ~ 10 の整数を示す。)

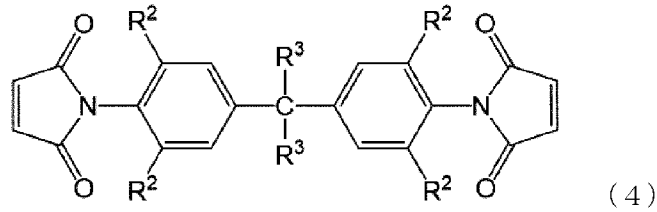
[0037] [化3]



[0038] (式 (3) 中、 n^3 は、1 ~ 30 の整数を示す。)

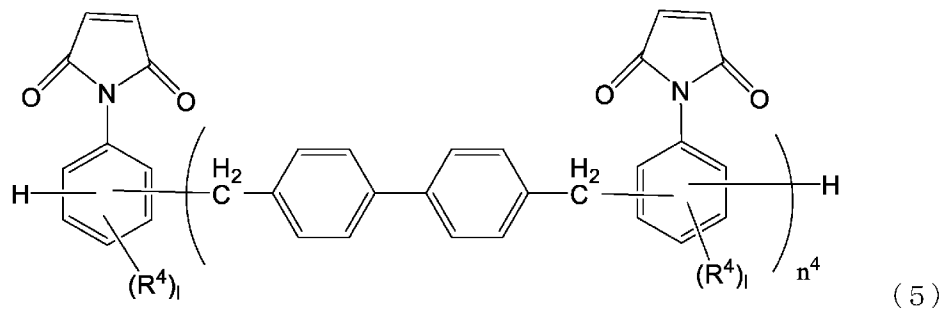
[0039]

[化4]



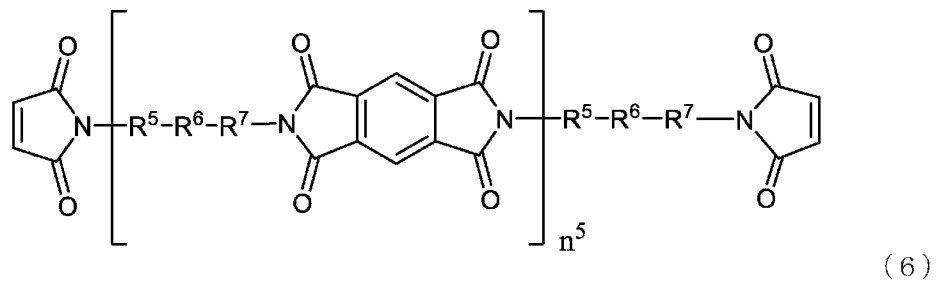
[0040] (式(4)中、 R^2 は、各々独立に、水素原子、メチル基、又はエチル基を示し、 R^3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示す。)

[0041] [化5]



[0042] (式(5)中、 R^4 は、各々独立に、水素原子、炭素数1~5のアルキル基、又はフェニル基を示し、 l は、各々独立に、1~3の整数を示し、 n^4 は、1~10の整数を示す。)

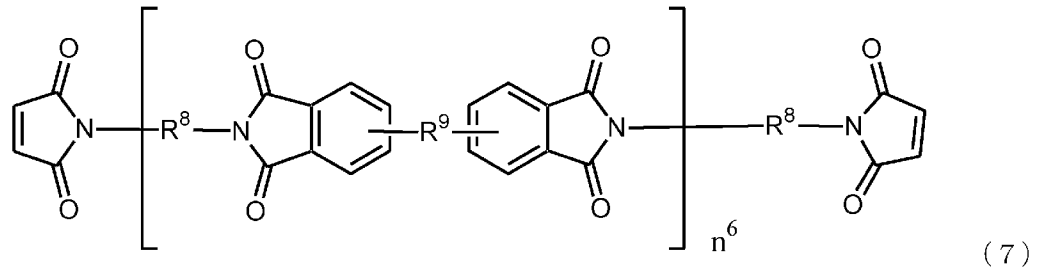
[0043] [化6]



[0044] (式(6)中、 R^5 及び R^7 は、各々独立に、8以上の原子が直鎖状に連結した炭化水素基を示し、 R^6 は、各々独立に、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4~10のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基を示し、 n^5 は、1~10の整数を示す。)

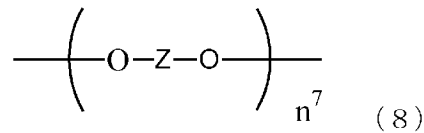
[0045]

[化7]



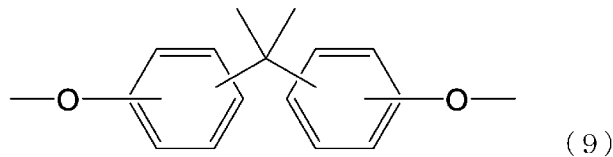
[0046] (式(7)中、 R^8 は、各々独立に、アルキレン基を示し、 R^9 は、各々独立に、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、下記式(9)で表される基、酸素原子、又は単結合を示し、 n^6 は、1~10の整数を示す。)

[0047] [化8]

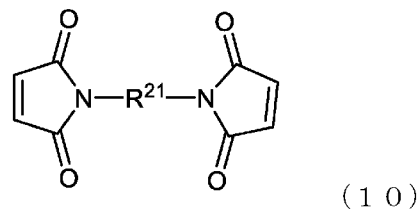


[0048] (式(8)中、Zは、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6~30の炭化水素基であり、 n^7 は、0~5の整数を示す。)

[0049] [化9]



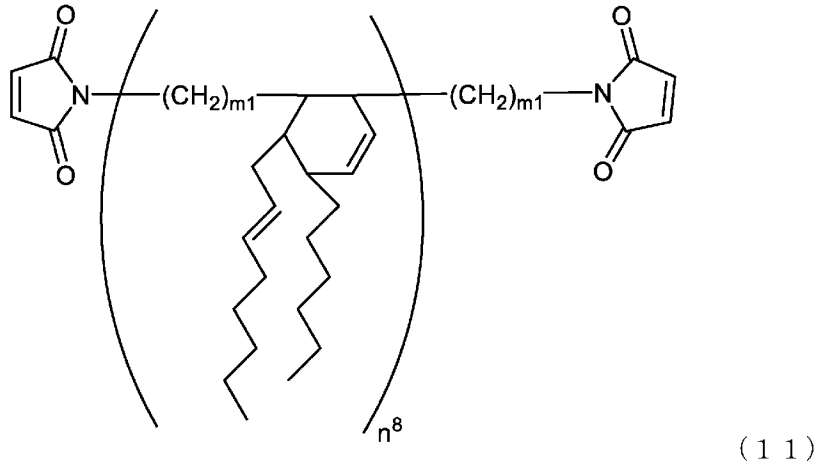
[0050] [化10]



[0051] (式(10)中、 R^{21} は、炭素原子数1~40の直鎖状又は分岐状のアルキレン基、環を構成する炭素数が3~20のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基、酸素原子、式「 $-NH-$ 」で表される基、硫黄原子、及び式「 $-SO_2-$ 」で表される基から選ばれる少なくとも1種を示す。)

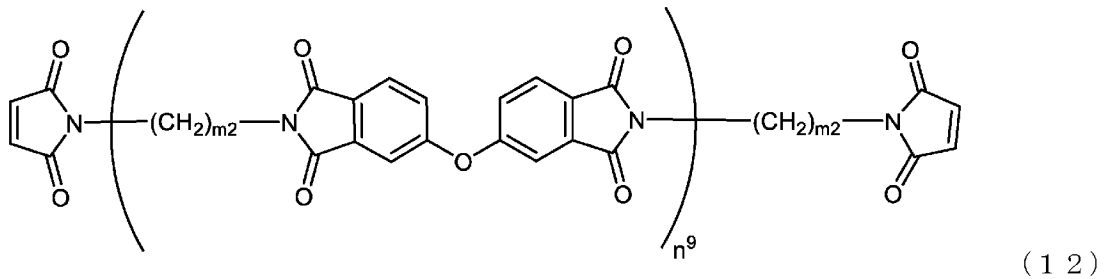
[0052]

[化11]



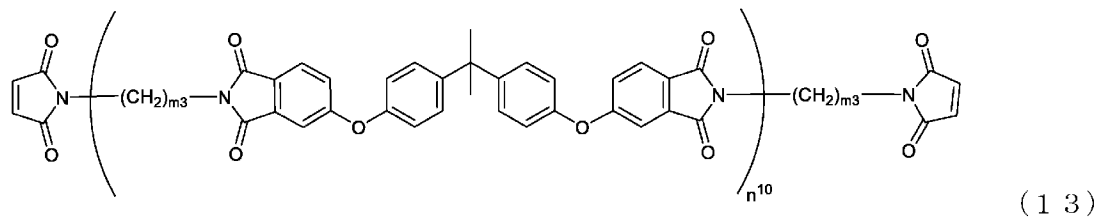
[0053] (式(11)中、 n^8 は、1~10の整数を示し、 m_1 は、8~40の整数を示す。)

[0054] [化12]



[0055] (式(12)中、 n^9 は、1~10の整数を示し、 m_2 は、8~40の整数を示す。)

[0056] [化13]



[0057] (式(13)中、 n^{10} は、1~10の整数を示し、 m_3 は、8~40の整数を示す。)

[0058] [4]

前記硬化促進剤(C)が、熱ラジカル重合開始剤(D)及びイミダゾール化合物(E)から選ばれる少なくとも1種を含む、[1]~[3]のいずれ

かに記載の樹脂組成物。

[5]

前記熱ラジカル重合開始剤 (D) の 10 時間半減期温度が、100℃以上である、[4] に記載の樹脂組成物。

[6]

前記熱ラジカル重合開始剤 (D) が、有機過酸化物を含む、[4] 又は [5] に記載の樹脂組成物。

[7]

前記熱ラジカル重合開始剤 (D) が、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアルキルパーオキサイド、又はヒドロパーオキサイド骨格を有する、[4] ~ [6] のいずれかに記載の樹脂組成物。

[8]

前記熱ラジカル重合開始剤 (D) が、ジクミルパーオキサイド、ジ (2-tert-ブチルペルオキシイソプロピル) ベンゼン、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルヒドロパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ビス (tert-ブチルペルオキシ) ヘキシン-3、及び tert-ブチルヒドロパーオキサイドから選ばれる少なくとも 1 種を含む、[4] ~ [7] のいずれかに記載の樹脂組成物。

[9]

前記ビスマレイミド化合物 (A) の含有量が、前記ビスマレイミド化合物 (A) 及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の合計 100 質量部に対して、1 質量部 ~ 99 質量部である、[1] ~ [8] のいずれかに記載の樹脂組成物。

[10]

前記硬化促進剤 (C) の含有量が、前記ビスマレイミド化合物 (A) 及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の合計 100 質量部に対して、0.05 質量部 ~ 10 質量部である、[1] ~ [9] のいずれかに記載の樹脂組成物。

[0059] [11]

前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）以外の、熱硬化性化合物（F）を更に含む、[1]～[10]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[12]

前記熱硬化性化合物（F）が、400以上の分子量を有する、[11]に記載の樹脂組成物。

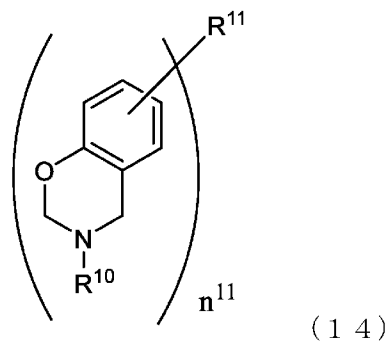
[13]

前記熱硬化性化合物（F）が、ベンゾオキサジン化合物を含む、[11]又は[12]に記載の樹脂組成物。

[14]

前記ベンゾオキサジン化合物が、下記式（14）で表される化合物、下記式（15）で表される化合物、下記式（16）で表される化合物、及び下記式（17）で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、[13]に記載の樹脂組成物。

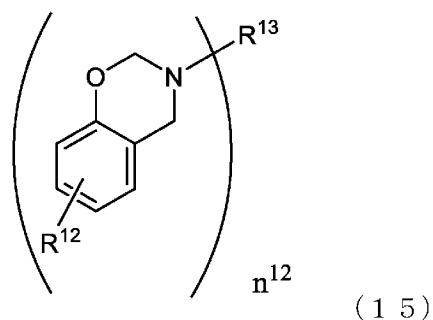
[0060] [化14]



[0061] （式（14）中、 R^{10} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^{11} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は下記一般式（a）～（t）で表される1～4価の有機基を示し、 n^{11} は、1～4の整数を示す。）。

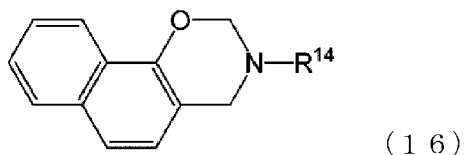
[0062]

[化15]



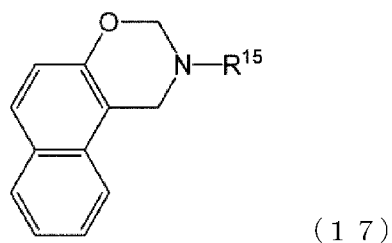
[0063] (式(15)中、 R^{12} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^{13} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は下記一般式(a)～(t)で表される1価～4価の有機基を示し、 n^{12} は、1～4の整数を示す。)

[0064] [化16]



[0065] (式(16)中、 R^{14} は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有してよいフェニル基を表す。)

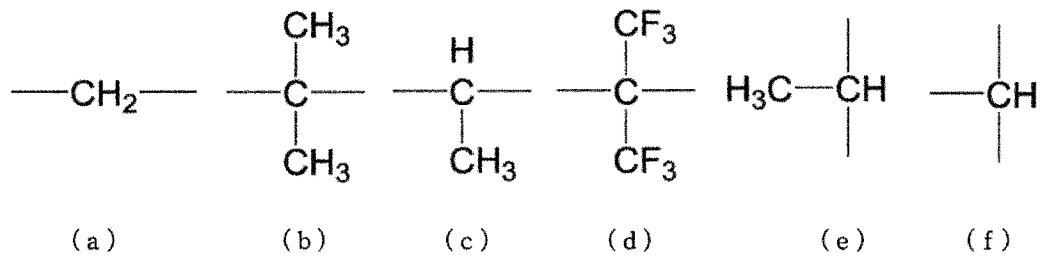
[0066] [化17]



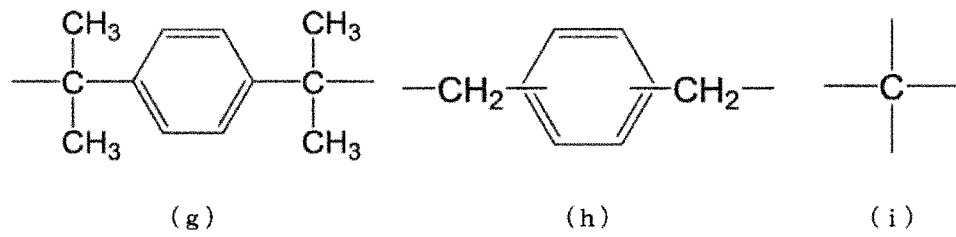
[0067] (式(17)中、 R^{15} は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有してよいフェニル基を表す。)

[0068]

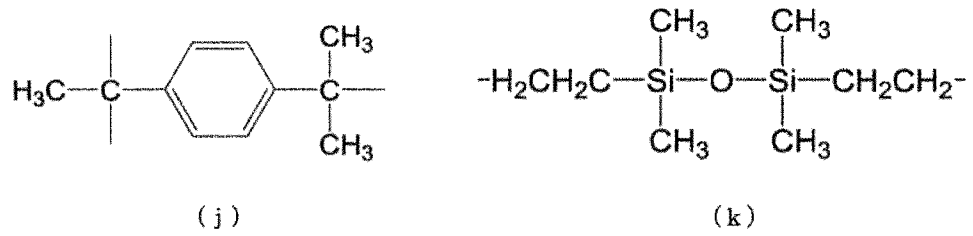
[化18]



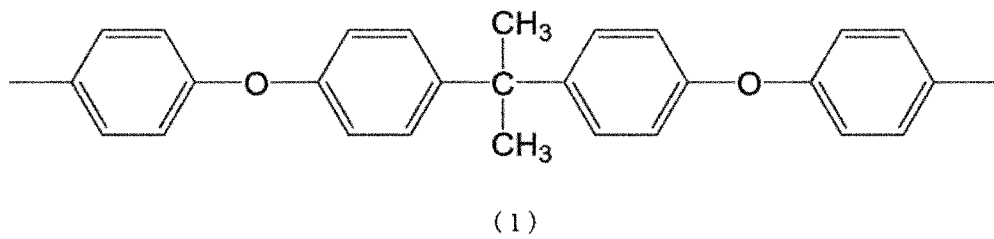
[0069] [化19]



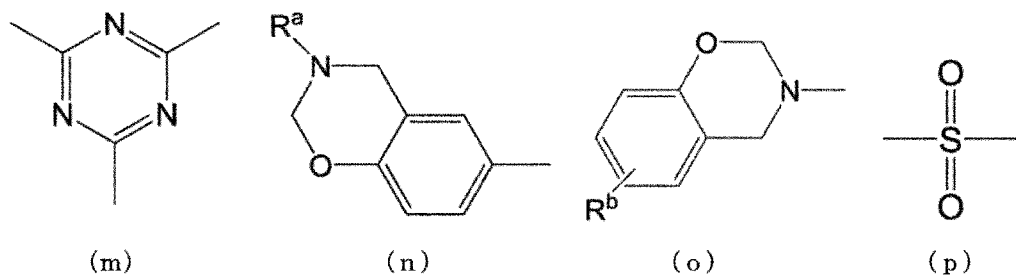
[0070] [化20]



[0071] [化21]

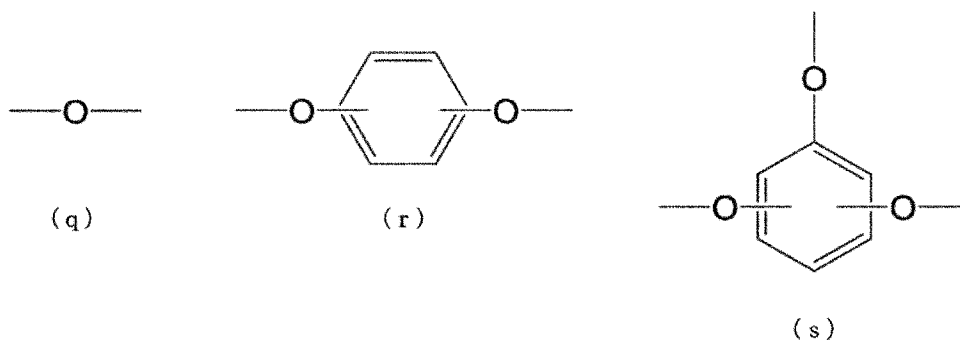


[0072] [化22]

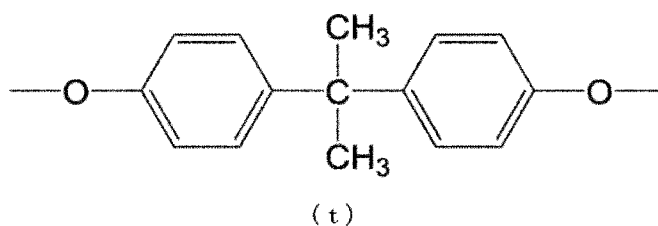


[0073]

[化23]



[0074] [化24]

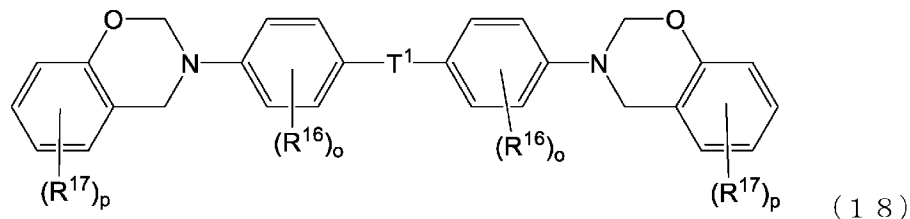


[0075] (式 (a) ~ (t) 中、 R^a は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^b は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。)

[0076] [15]

前記ベンゾオキサジン化合物が、下記式 (18) で表される化合物、下記式 (19) で表される化合物、及び下記式 (20) で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、[13] 又は [14] に記載の樹脂組成物。

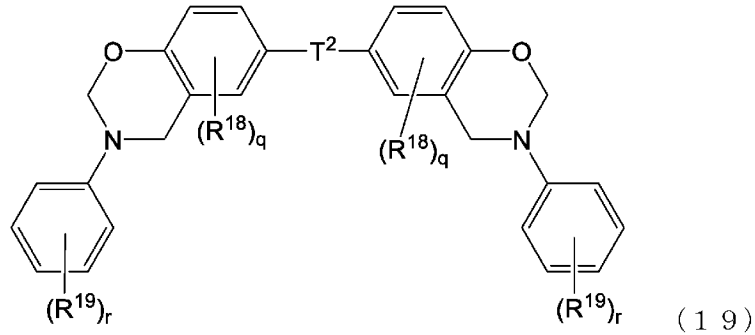
[0077] [化25]



[0078] (式 (18) 中、 R^{16} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 o は、各々独立に、1~4の整数を示し、 R^{17} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アリル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 p は

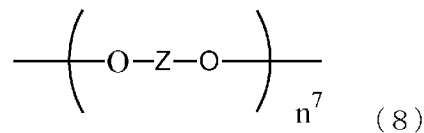
、各々独立に、1～4の整数を示し、T¹は、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「-SO₂-」で表される基、「-CO-」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。)

[0079] [化26]



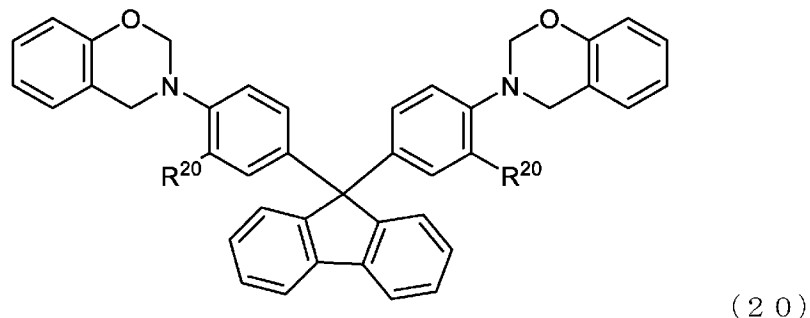
[0080] (式(19)中、R¹⁸は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、qは、各々独立に、1～3の整数を示し、R¹⁹は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、rは、各々独立に、1～5の整数を示し、T²は、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「-SO₂-」で表される基、「-CO-」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。)

[0081] [化27]



[0082] (式(8)中、Zは、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6～30の炭化水素基であり、n⁷は、0～5の整数を示す。)

[0083] [化28]

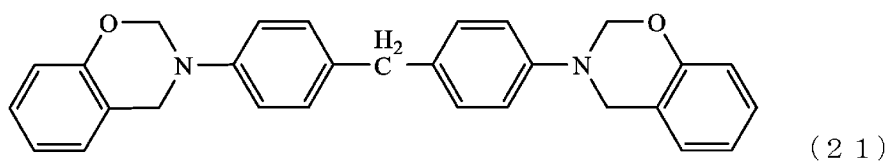


[0084] (式(20)中、R²⁰は、各々独立に、水素原子、又は炭素数1~4の炭化水素基を示す。)

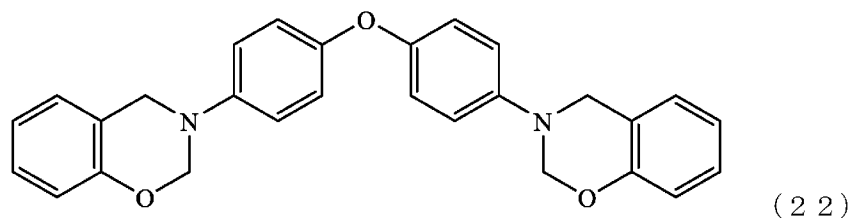
[0085] [16]

前記式(18)で表される化合物が、下記式(21)で表される化合物、及び/又は下記式(22)で表される化合物を含み、前記式(19)で表される化合物が、下記式(23)で表される化合物、下記式(24)で表される化合物、及び下記式(25)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、[15]に記載の樹脂組成物。

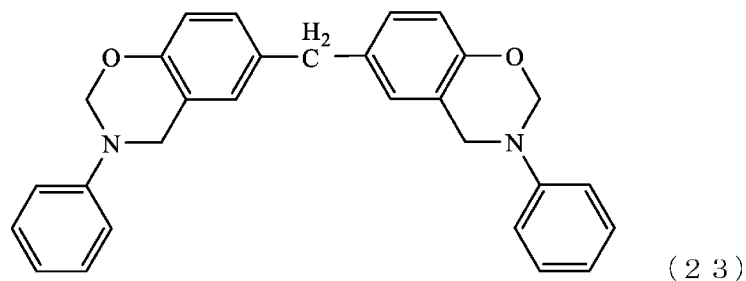
[0086] [化29]



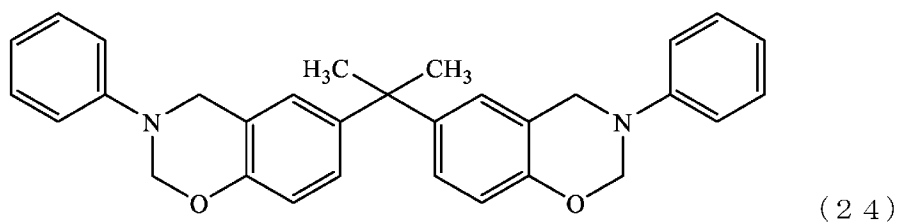
[0087] [化30]



[0088] [化31]

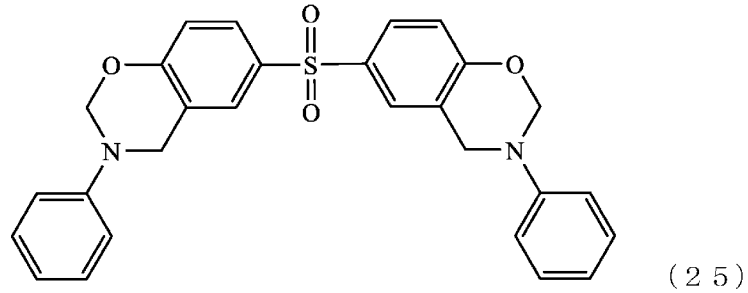


[0089] [化32]



[0090]

[化33]



[0091] [1 7]

前記熱硬化性化合物（F）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～99質量部である、[11]～[16]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[1 8]

無機充填材（G）を更に含む、[1]～[17]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[1 9]

前記無機充填材（G）の平均粒子径が、3 μm以下である、[18]に記載の樹脂組成物。

[2 0]

前記無機充填材（G）が、シリカ、水酸化アルミニウム、アルミナ、ベーマイト、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び水酸化マグネシウムから選ばれる少なくとも1種を含む、[18]又は[19]に記載の樹脂組成物。

[0092] [2 1]

前記無機充填材（G）が、シリカである、[18]～[20]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[2 2]

前記無機充填材（G）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、5

00質量部以下である、[16]～[19]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[23]

フラックス機能を有する有機化合物(H)を更に含む、[1]～[22]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[24]

前記フラックス機能を有する有機化合物(H)の含有量が、前記ビスマレイミド化合物(A)及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)の合計100質量部に対して、1質量部～60質量部である、[23]に記載の樹脂組成物。

[25]

アンダーフィル材用である、[1]～[24]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[0093] [26]

プリアプライドアンダーフィル材用である、[1]～[25]のいずれかに記載の樹脂組成物。

[27]

[1]～[26]のいずれかに記載の樹脂組成物を含む、樹脂シート。

[28]

支持基材と、前記支持基材上に積層された[1]～[26]のいずれかに記載の樹脂組成物を含む層と、を備える積層体。

[29]

半導体ウェハと、前記半導体ウェハに積層された[28]に記載の積層体と、を備え、前記樹脂組成物を含む層が、前記半導体ウェハに積層された、樹脂組成物層付き半導体ウェハ。

[30]

半導体搭載用基板と、前記半導体搭載用基板に積層された請求項28に記載の積層体と、を備え、前記樹脂組成物を含む層が、前記半導体搭載用基板

に積層された、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板。

[0094] [31]

[29]に記載の樹脂組成物層付き半導体ウェハ、及び／又は[30]に記載の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板を備える、半導体装置。

発明の効果

[0095] 本発明によれば、低ポイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れる、樹脂組成物、樹脂シート、積層体、樹脂組成物層付き半導体ウェハ、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板、及び半導体装置を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0096] 以下、本発明を実施するための形態（以下、単に「本実施形態」という。）について説明する。なお、以下の本実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明は本実施形態のみに限定されない。

[0097] 本実施形態の一態様によれば、樹脂組成物は、特定のビスマレイミド化合物（A）と、特定のラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と、硬化促進剤（C）とを含む。樹脂組成物は、本発明による作用効果をより有効かつ確実に奏する観点から、アンダーフィル材用であることが好ましく、プリアプライドアンダーフィル材用であることがより好ましい。

[0098] 本実施形態の別の態様は、熱硬化性化合物（F）を更に含有する樹脂組成物である。

[0099] 本実施形態の別の態様は、無機充填材（G）を更に含有する樹脂組成物である。

[0100] 本実施形態の別の態様は、フラックス機能を有する有機化合物（H）を更に含有する樹脂組成物である。

[0101] なお、本実施形態において、「（メタ）アクリロイル」とは「アクリロイル」及びそれに対応する「メタクリロイル」の両方を意味し、「（メタ）アクリル」とは「アクリル」及びそれに対応する「メタクリル」の両方を意味し、「（メタ）アクリレート」とは「アクリレート」及びそれに対応する「

メタクリレート」の両方を意味し、「(メタ)アリル」とは「アリル」及びそれに対応する「メタアリル」の両方を意味する。

[0102] [樹脂組成物]

本実施形態の樹脂組成物は、式(1)で表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基と、を含む、ビスマレイミド化合物(A)と、ビスマレイミド化合物(A)以外の、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)と、硬化促進剤(C)と、を含み、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)が、シトラコンイミド基、ビニル基、マレイミド基、(メタ)アクリロイル基、及びアリル基から選ばれる少なくとも1種を含む。本実施形態の樹脂組成物は、チップのフリップチップ実装に使用されるアンダーフィル材に好適であり、チップのフリップチップ実装に使用されるプリアプライドアンダーフィル材により好適である。

本実施形態の樹脂組成物は、熱硬化性化合物(F)、無機充填材(G)、及びフラックス機能を有する有機化合物(H)の少なくともいずれか一つを含んでいてもよい。

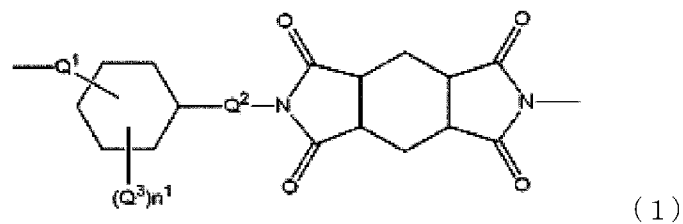
[0103] 本実施形態において、低ボイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れる、樹脂組成物が得られる理由について定かではないが、本発明者らは次のように推定している。式(1)で表されるビスマレイミド化合物(A)は、柔軟な骨格を有しており、低粘度であり、かつ、後述のラジカル重合性樹脂又は化合物(B)と、後述の硬化促進剤(C)と共に、良好にラジカル重合するマレイミド基を有している。そのため、好適にラジカル重合でき、重合後においても、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)と共に、柔軟性を有する構造を形成することができる。また、ビスマレイミド化合物(A)は、脂肪族系の骨格を多く有するため、光線透過性に優れる。また、樹脂組成物が低粘度であると、例えば、樹脂組成物をアンダーフィル材に適用した場合に、チップ、及び基板とアンダーフィル材との接着性に寄与する極性官能基の運動性が向上し、チップ表面に存在する凹凸にアンダーフィル材が追従しやすくなり、アンダーフィル材の埋め込み

性が改善される。その結果、アンダーフィル材に含まれる極性官能基とチップのシラノール基との間において、良好な化学結合を生じるため、低ボイド性を有し、タック性が低く、チップの凹凸へのアンダーフィル材の埋め込みによるアンカー効果により十分なチップ接着性を得ることができる。また、マレイミド化合物は、エポキシ化合物と比較して、保管時や加熱処理によるフラックス成分との反応が著しく進行しにくく、フラックスの失活が発生しないと推定される。更に、式（１）で表されるビスマレイミド化合物（Ａ）を用いることで、ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）との重合においても、良好な透過性を得ることができると推定している。

[0104] [ビスマレイミド化合物（Ａ）]

本実施形態の樹脂組成物は、式（１）で表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基と、を含む、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（Ａ）（成分（Ａ）とも称す）を含む。

[0105] [化34]



[0106] 式（１）中、 Q^1 は、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。 Q^2 は、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。 Q^3 は、各々独立に、水素原子、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基を示す。 n^1 は、各々独立に、１～１０の整数を示す。

[0107] 本実施形態に係るビスマレイミド化合物（Ａ）は、式（１）で表される構成単位を含むので、透過性、及びフラックス活性に非常に優れる。また、末端にラジカル重合反応性のマレイミド基を有するため、硬化過程において、

マレイミド基と、後述のラジカル重合性樹脂又は化合物（B）における重合性官能基、すなわち、シトラコンイミド基、ビニル基、マレイミド基、（メタ）アクリロイル基、及びアリル基との反応が進行しやすい。そのため、得られる硬化物の架橋密度が上がるが、主骨格が柔軟な骨格であるため、タック性に優れ、更に耐熱性（ガラス転移温度）が向上する。そして、本実施形態の樹脂組成物は、後述のラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と、後述の硬化促進剤（C）と共に、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）を含むことで、前記のとおり、低ポイド性を有し、チップ接着性に優れる。

このように本実施形態の樹脂組成物は、低ポイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れるため、アンダーフィル材用に好適であり、プライドアンダーフィル材用により好適に用いることができる。また、例えば、エポキシ基を有する樹脂では反応後に吸水性を有する極性基を生じるが、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）であれば、吸水性を有する極性基が発生しない。そのため、吸水（湿）性が低く、絶縁信頼性の高い硬化物が得られる。

[0108] ビスマレイミド化合物（A）は、本発明の効果を奏する限り特に限定されないが、好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇が抑制できる点から、質量平均分子量が、100～5000であることが好ましく、300～4500であることがより好ましい。なお、本実施形態において、「質量平均分子量」とは、ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）法による、ポリスチレンスタンダード換算の質量平均分子量を意味する。

[0109] 次いで、ビスマレイミド化合物（A）の構造について説明する。

ビスマレイミド化合物（A）の式（1）中、Q¹は、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。Q¹としては、好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇が制御できる点から、直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基であることが好ましく、直鎖状のアルキレン基であることがより好ましい。

アルキレン基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度

上昇をより制御できる点から、2～14であることが好ましく、4～12であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、2,2-ジメチルプロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、ドデシレン基、ウンデシレン基、トリデシレン基、テトラデシレン基、ペンタデシレン基、ヘキサデシレン基、オクタデシレン基、ネオペンチレン基、ジメチルブチレン基、メチルヘキシレン基、エチルヘキシレン基、ジメチルヘキシレン基、トリメチルヘキシレン基、メチルヘプチレン基、ジメチルヘプチレン基、トリメチルヘプチレン基、テトラメチルヘプチレン基、エチルヘプチレン基、メチルオクチレン基、メチルノニレン基、メチルデシレン基、メチルドデシレン基、メチルウンデシレン基、メチルトリデシレン基、メチルテトラデシレン基、メチルペンタデシレン基、及びメチルヘキサデシレン基が挙げられる。

アルケニレン基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇をより制御できる点から、2～14であることが好ましく、4～12であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基としては、例えば、ビニレン基、1-メチルビニレン基、アリレン基、プロペニレン基、イソプロペニレン基、1-ブテニレン基、2-ブテニレン基、1-ペンテニレン基、2-ペンテニレン基、イソペンチレン基、シクロペンテニレン基、シクロヘキセニレン基、及びジシクロペンタジエニレン基等が挙げられる。

[0110] 式(1)中、 Q^2 は、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。 Q^2 としては、好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇が制御できる点から、直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基であることが好ましく、直鎖状のアルキレン基であることがより好ましい。

アルキレン基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度

上昇をより制御できる点から、2～14であることが好ましく、4～12であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基としては、前記の Q^2 が参照できる。

アルケニレン基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇をより制御できる点から、2～14であることが好ましく、4～12であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基としては、前記の Q^2 が参照できる。

[0111] 式(1)において、 Q^1 と、 Q^2 とは、同一であっても異なってもよいが、ビスマレイミド化合物(A)をより容易に合成できる点から、同一であることが好ましい。

[0112] 式(1)中、 Q^3 は、各々独立に、水素原子、炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基、又は炭素数2～16の直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基を示す。 Q^3 は、好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇が制御できる点から、各々独立に、水素原子、又は炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基であることが好ましく、 Q^3 のうち、1～5の基(Q^3)が炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基であり、残りの基(Q^3)が水素原子であることがより好ましく、 Q^3 のうち、1～3の基(Q^3)が炭素数1～16の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基であり、残りの基(Q^3)が水素原子であることが更に好ましい。

アルキル基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇がより制御できる点から、2～14であることが好ましく、4～12であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、2-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、2-ペンチル基、*tert*-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2,2-ジメチルプロピル基、*n*-ヘキシル基、2-ヘキシル基、3-ヘキシル基、2-

メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、4-メチルペンチル基、及び2-メチルペンタン-3-イル基が挙げられる。

アルケニル基の炭素数としては、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇がより制御できる点から、2~14であることが好ましく、4~12であることがより好ましい。

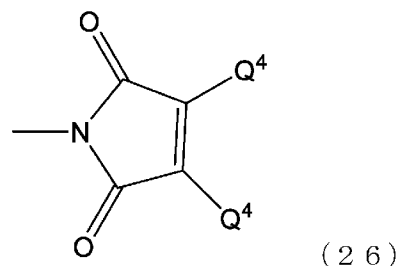
直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、4-ペンテニル基、イソプロペニル基、及びイソペンチル基が挙げられる。

[0113] 式(1)中、 n^1 は、各々独立に、1~10の整数を示す。

[0114] ビスマレイミド化合物(A)は、分子鎖の両末端にマレイミド基を有する。本実施形態において、両末端とは、ビスマレイミド化合物(A)の分子鎖において両方の末端を意味し、例えば、式(1)で表される構造単位が、ビスマレイミド化合物(A)の分子鎖の末端にある場合には、マレイミド基は、 Q^1 の分子鎖の末端に有するか、マレイミド環のN原子における分子鎖の末端に有するか、又は両方の末端に有することを意味する。ビスマレイミド化合物(A)は、分子鎖の両末端以外に、マレイミド基を有していてもよい。

本実施形態において、マレイミド基は、式(26)で表され、N原子がビスマレイミド化合物(A)の分子鎖に結合している。また、ビスマレイミド化合物(A)に結合されるマレイミド基は、全て同一であっても異なってもよいが、分子鎖の両末端のマレイミド基は同一であることが好ましい。

[0115] [化35]



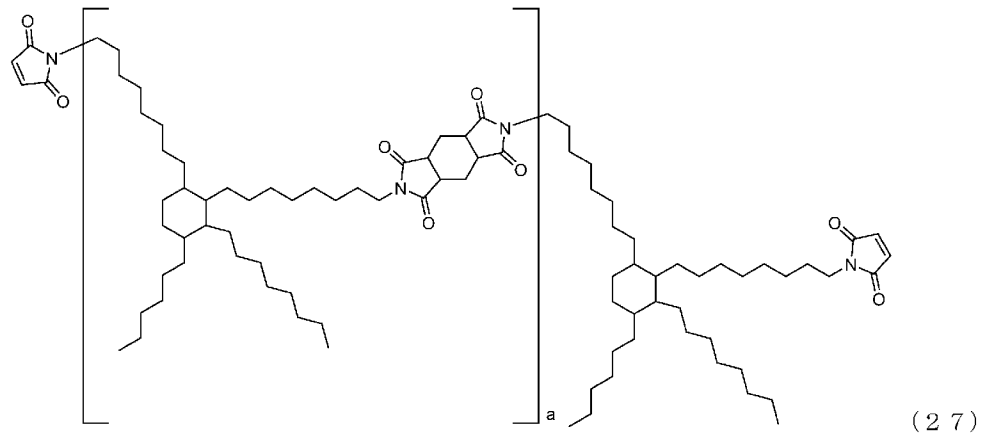
[0116] 式(26)中、 Q^4 は、各々独立に、水素原子、又は炭素数1~4の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基を示す。 Q^4 は、好適に硬化する点から、両方ともに水素原子であることが好ましい。

アルキル基の炭素数としては、好適に硬化する点から、1～3であることが好ましく、1～2であることがより好ましい。

直鎖状若しくは分岐状のアルキル基としては、前記のQ³が参照できる。

[0117] このようなビスマレイミド化合物（A）としては、例えば、式（27）で表されるマレイミド化合物が挙げられる。

[化36]



[0118] 式（27）中、 a は、1～10の整数を示す。 a は、より好適な粘度が得られ、ワニスの粘度上昇がより制御できる点から、1～6の整数であることが好ましい。

[0119] ビスマレイミド化合物（A）は、市販品を利用することもできる。市販品としては、例えば、日本化薬（株）製MIZ-001（商品名、式（27）で表されるマレイミド化合物であり、式（27）中の a が1～6（整数）の混合物である）が挙げられる

[0120] 本実施形態の樹脂組成物において、ビスマレイミド化合物（A）の含有量は、特に限定されないが、ビスマレイミド化合物を主成分とした硬化物を得ることが可能となり、硬化性をより向上させ、かつ、より一層の低ボイド性が得られるという観点から、ビスマレイミド化合物（A）、及び後述のラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～99質量部であることが好ましく、3質量部～95質量部であることがより好ましく、5質量部～90質量部であることが更に好ましく、10質量部～85質量部であることが更に好ましく、15質量部～80質量部である

ことがより更により好ましい。

[0121] ビスマレイミド化合物 (A) は、1 種単独又は 2 種以上を適宜混合して使用することも可能である。

[0122] (ビスマレイミド化合物 (A) の製造方法)

本実施形態に係るビスマレイミド化合物 (A) は、公知の方法により製造することができる。例えば、1, 2, 4, 5-シクロヘキサントラカルボン酸二無水物と、ダイマージアミン等を含むジアミンを含むモノマーと、マレイミド化合物とを、通常 80℃~250℃、好ましくは 100℃~200℃の温度において、通常 0.5 時間~50 時間、好ましくは 1 時間~20 時間、重付加反応させて重付加物を得る、その後、通常 60℃~120℃、好ましくは 80℃~100℃の温度において、通常 0.1 時間~2 時間、好ましくは 0.1 時間~0.5 時間、重付加物をイミド化反応、すなわち、脱水閉環反応させることで、ビスマレイミド化合物 (A) を得ることができる。

[0123] ダイマージアミンは、例えば、ダイマー酸の還元的アミノ化反応によって得られ、アミン化反応は、例えば、アンモニア及び触媒を使用する還元法等、公知の方法 (例えば、特開平 9-12712 号公報に記載の方法) によって行うことができる。ダイマー酸とは、不飽和脂肪酸が分子間重合反応等によって二量化して得られる二塩基酸である。合成条件及び精製条件にもよるが、通常はダイマー酸の他、モノマー酸やトリマー酸等も少量含まれる。反応後には得られた分子内に二重結合が残存するが、本実施形態では、水素添加反応により、分子内に存在する二重結合が還元されて飽和二塩基酸となったものもダイマー酸に含める。ダイマー酸は、例えば、ルイス酸及びブレンステッド酸を触媒として用いて、不飽和脂肪酸の重合を行うことによって得られる。ダイマー酸は、公知の方法 (例えば、特開平 9-12712 号公報に記載の方法) によって製造することができる。不飽和脂肪酸としては、例えば、クロトン酸、ミリストレイン酸、パルミトレイン酸、オレイン酸、エライジン酸、バクセン酸、ガドレイン酸、エイコセン酸、エルカ酸、ネルボン酸、リノール酸、ピノレン酸、エレオステアリン酸、ミード酸、ジホモ-

γ-リノレン酸、エイコサトリエン酸、ステアリドン酸、アラキドン酸、エイコサテトラエン酸、アドレン酸、ボセオペンタエン酸、オズボンド酸、イワシ酸、テトラコサペンタエン酸、ドコサヘキサエン酸、ニシン酸が挙げられる。不飽和脂肪酸の炭素数は、通常4～24であり、好ましくは14～20である。

[0124] ビスマレイミド化合物(A)の製造において、ジアミンを含むモノマーは、予め、例えば、アルゴン、窒素等の不活性雰囲気中において、有機溶媒中に溶解又はスラリー状に分散させて、ジアミンを含むモノマー溶液とすることが好ましい。そして、1,2,4,5-シクロヘキサントトラカルボン酸二無水物は、有機溶媒に溶解又はスラリー状に分散させた後、あるいは固体の状態で、上記ジアミンを含むモノマー溶液中に添加することが好ましい。

1,2,4,5-シクロヘキサントトラカルボン酸二無水物のモル数と、ジアミンを含むモノマー及びマレイミド化合物との全量のモル数とを調製することで、任意のビスマレイミド化合物(A)を得ることができる。

[0125] 重付加反応及びイミド化反応に際しては、種々公知の溶媒を使用することができる。溶媒としては、特に限定されないが、例えば、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、及びN-メチル-2-ピロリドン等のアミド類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、及びイソホロン等のケトン類；γ-ブチロラクトン、γ-バレロラクトン、δ-バレロラクトン、γ-カプロラクトン、ε-カプロラクトン、α-メチル-γ-ブチロラクトン、乳酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、及び酢酸ブチル等のエステル類；メタノール、エタノール、及びプロパノール等の炭素数1～10の脂肪族アルコール類；フェノール、及びクレゾール等の芳香族基含有フェノール類；ベンジルアルコール等の芳香族基含有アルコール類；エチレングリコール、及びプロピレングリコール等のグリコール類、又はそれらのグリコール類と、メタノール、エタノール、ブタノール、ヘキサノール、オクタノール、ベンジルアルコール、フェノール、及びクレゾール等とのモノエーテルもしくはジエーテル、又はこれ

らのモノエーテルのエステル類等のグリコールエーテル類；ジオキサン、及びテトラヒドロフラン等の環状エーテル類；エチレンカーボネート、及びプロピレンカーボネート等の環状カーボネート類；脂肪族及びトルエン、及びキシレン等の芳香族炭化水素類；ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒が挙げられる。これらの溶媒は、必要に応じて、1種類を単独で又は2種類以上を組み合わせて用いることができる。

[0126] また、イミド化反応においては、触媒を用いることが好ましい。触媒としては、特に限定されないが、例えば、3級アミン、及び脱水触媒を用いることができる。3級アミンとしては、複素環式の3級アミンが好ましく、例えば、ピリジン、ピコリン、キノリン、イソキノリンなどを挙げられる。脱水触媒としては、特に限定されないが、例えば、無水酢酸、プロピオン酸無水物、*n*-酪酸無水物、安息香酸無水物、トリフルオロ酢酸無水物等が挙げられる。

触媒の添加量は、特に限定されないが、例えば、イミド化剤を、アミド基に対して、0.5倍モル～5.0倍モル当量、脱水触媒を、アミド基に対して、0.5倍モル～10.0倍モル当量とすることが好ましい。

[0127] イミド化反応が完結した後、この溶液をビスマレイミド化合物（A）溶液として使用してもよいし、反応溶媒中に、貧溶媒を投入し、ビスマレイミド化合物（A）を固形物としてもよい。貧溶媒としては、特に限定されないが、例えば、水、メチルアルコール、エチルアルコール、2-プロピルアルコール、エチレングリコール、トリエチレングリコール、2-ブチルアルコール、2-ペンチルアルコール、2-ヘキシルアルコール、シクロペンチルアルコール、シクロヘキシルアルコール、フェノール、及び*t*-ブチルアルコールが挙げられる。

[0128] [ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）]

本実施形態の樹脂組成物は、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）以外の、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）（成分（B）とも称す）を含む。本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）は、シトラコ

ンイミド基、ビニル基、マレイミド基、（メタ）アクリロイル基、及びアリアル基から選ばれる少なくとも1種を含む。本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）は、後述の硬化促進剤と共に、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）と反応性を示せば特に限定されない。ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）としては、後述のフラックス機能を有する有機化合物（H）と反応性を示さないことが好ましい。これらラジカル重合性樹脂又は化合物（B）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0129] 重合性官能基としてシトラコンイミド基を有する、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）としては、分子中に1個以上のシトラコンイミド基を有し、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）以外の樹脂又は化合物であれば、特に限定されない。例えば、*o*-フェニレンビスシトラコンイミド、*m*-フェニレンビスシトラコンイミド、*p*-フェニレンビスシトラコンイミド、4,4-ジフェニルメタンビスシトラコンイミド、2,2-ビス[4-(4-シトラコンイミドフェノキシ)フェニル]プロパン、ビス(3,5-ジメチル-4-シトラコンイミドフェニル)メタン、ビス(3-エチル-5-メチル-4-シトラコンイミドフェニル)メタン、ビス(3,5-ジエチル-4-シトラコンイミドフェニル)メタン、1,3-キシリレンビス(シトラコンイミド、N-[3-ビス(トリメチルシリル)アミノ-1-プロピル]シトラコンイミド、N-[3-ビス(トリエチルシリル)アミノ-1-プロピル]シトラコンイミド、N-[3-ビス(トリフェニルシリル)アミノ-1-プロピル]シトラコンイミド、N,N'-(*m*-フェニレンジメチレン)ジシトラコンイミド、及びN-[3-(メチリデンスクシンイミドメチル)ベンジル]シトラコンイミドが挙げられる。シトラコンイミド基を有する樹脂又は化合物（B）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0130] 重合性官能基としてビニル基を有する、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）としては、分子中に1個以上のビニル基を有し、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）以外の樹脂又は化合物であれば、特に限定されない。例えば、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル、ヒドロキシエ

チルビニルエーテル、エチレングリコールジビニルエーテル、及びビニル基を有する2官能性フェニレンエーテルオリゴマーのビニルエーテル類が挙げられる。ビニル基を有する樹脂又は化合物（B）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0131] 本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）としては、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）と優れた反応性が得られることから、低ボイド性、チップ接着性、及びタック性をより一層有し、更に、良好な絶縁性信頼性及び耐熱性を有する観点から、分子内に、マレイミド基を含むことがより好ましい。

[0132] マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）が好ましい理由は定かではないが、本発明者らは、次のように推定している。すなわち、マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と、ビスマレイミド化合物（A）との付加反応は、ビスマレイミド化合物（A）同士の重合反応より、高い反応性を示す。この付加反応が進行することにより、ビスマレイミド化合物（A）のマレイミド基は、他のビスマレイミド化合物（A）と重合する機能を一部消失する。また、マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）も、マレイミド基と反応できる官能基が主として第2級アミノ基となるため、マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）においても、他のマレイミド化合物（A）と付加反応を起こす機能を失う。その結果、マレイミド化合物（A）同士が重合してできる高分子量体の割合を低く抑えることができるため、樹脂組成物の溶融粘度を低くでき、かつ樹脂組成物が低粘度である時間を、長時間有することができる。なお、第2級アミノ基を2つ以上有するアミノ化合物など2官能以上のアミノ化合物では、ビスマレイミド化合物（A）との付加反応を起こすサイトが多くなるため、重合が過剰に進む。そのため、樹脂組成物の粘度が上昇し、例えば、樹脂組成物をアンダーフィル材に適用した場合に、アンダーフィル材に求められる最低溶融粘度に達することができない。樹脂組成物の低粘度化は、チップ、及び基板とアンダーフィル材との接着性に寄与する極性官能基の運動性

が向上し、チップ表面に存在する凹凸にアンダーフィル材が追従しやすくなり、アンダーフィル材の埋め込み性が改善される。その結果、アンダーフィル材に含まれる極性官能基とチップのシラノール基との間において、良好な化学結合を生じるため、低ボイド性を有し、タック性が低く、チップの凹凸へのアンダーフィル材の埋め込みによるアンカー効果により十分なチップ接着性を得ることになる。また、マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）を用いることで、吸水性を有する極性基ではないマレイミド基を有し、剛直なネットワークを形成することが可能であるため、優れた絶縁性信頼性及び耐熱性を得ることができる。

[0133] マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）としては、分子中に1個以上のマレイミド基を有する樹脂又は化合物であれば、特に限定されない。マレイミド基を含むラジカル重合性樹脂又は化合物（B）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

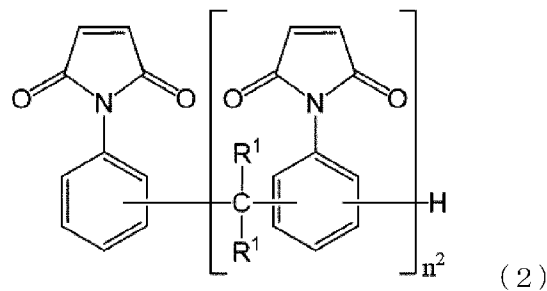
例えば、N-フェニルマレイミド、N-ヒドロキシフェニルマレイミド、ビス（4-マレイミドフェニル）メタン、4,4-ジフェニルメタンビスマレイミド、ビス（3,5-ジメチル-4-マレイミドフェニル）メタン、ビス（3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル）メタン、ビス（3,5-ジエチル-4-マレイミドフェニル）メタン、フェニルメタンマレイミド、o-フェニレンビスマレイミド、m-フェニレンビスマレイミド、p-フェニレンビスマレイミド、p-フェニレンビスシトラコンイミド、2,2-ビス（4-（4-マレイミドフェノキシ）-フェニル）プロパン、3,3-ジメチル-5,5-ジエチル-4,4-ジフェニルメタンビスマレイミド、4-メチル-1,3-フェニレンビスマレイミド、1,6-ビスマレイミド-（2,2,4-トリメチル）ヘキサン、4,4-ジフェニルエーテルビスマレイミド、4,4-ジフェニルスルホンビスマレイミド、1,3-ビス（3-マレイミドフェノキシ）ベンゼン、1,3-ビス（4-マレイミドフェノキシ）ベンゼン、ポリフェニルメタンマレイミド、ノボラック型マレイミド化合物、ビフェニルアラルキル型マレイミド化合物、2,2-ビス

(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、1,2-ビス(マレイミド)エタン、1,4-ビス(マレイミド)ブタン、1,6-ビス(マレイミド)ヘキサン、N,N'-1,3-フェニレンジマレイミド、N,N'-1,4-フェニレンジマレイミド、N-フェニルマレイミド、式(2)で表されるマレイミド化合物、式(3)で表されるマレイミド化合物、式(4)で表されるマレイミド化合物、式(5)で表されるマレイミド化合物、式(6)で表されるマレイミド化合物、式(7)で表されるマレイミド化合物、式(10)で表されるマレイミド化合物、式(11)で表されるマレイミド化合物、式(12)で表されるマレイミド化合物、及び式(13)で表されるマレイミド化合物などが挙げられる。マレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物(B)は、マレイミド化合物を重合して得られるプレポリマー、及びマレイミド化合物をアミン化合物等の他の化合物と重合して得られるプレポリマー等の形で、本実施形態に係る樹脂組成物に含有させることもできる。

[0134] これらの中でも、有機溶剤への溶解性の観点から、2,2-ビス[4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン、1,2-ビス(マレイミド)エタン、1,4-ビス(マレイミド)ブタン、1,6-ビス(マレイミド)ヘキサン、N,N'-1,3-フェニレンジマレイミド、N,N'-1,4-フェニレンジマレイミド、N-フェニルマレイミド、式(2)で表されるマレイミド化合物、式(3)で表されるマレイミド化合物、式(4)で表されるマレイミド化合物、式(5)で表されるマレイミド化合物、式(6)で表されるマレイミド化合物、式(7)で表されるマレイミド化合物、式(10)で表されるマレイミド化合物、式(11)で表されるマレイミド化合物、式(12)で表されるマレイミド化合物、及び式(13)で表されるマレイミド化合物が好ましく、2,2-ビス[4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル]プロパン、式(2)で表されるマレイミド化合物、式(3)で表されるマレイミド化合物、式(4)で表されるマレイミド化合物、式(5)で表されるマレイミド化合物、式(6)で表されるマレイミド化合物、

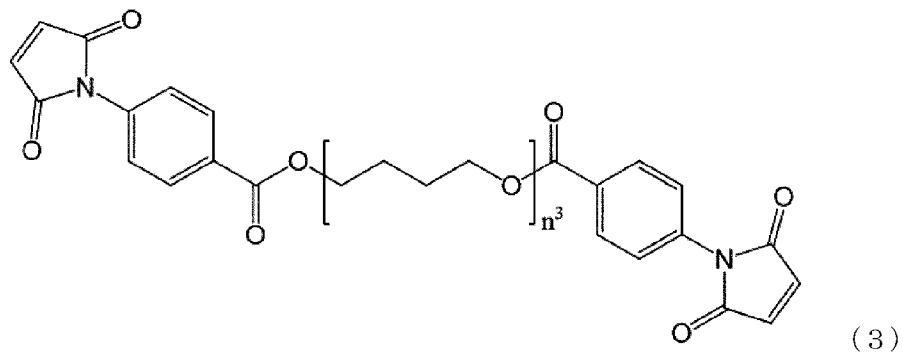
式(7)で表されるマレイミド化合物、式(10)で表されるマレイミド化合物、式(11)で表されるマレイミド化合物、式(12)で表されるマレイミド化合物、及び式(13)で表されるマレイミド化合物がより好ましく、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、式(2)で表されるマレイミド化合物、式(4)で表されるマレイミド化合物、及び式(5)で表されるマレイミド化合物が更に好ましい。式(4)で表されるマレイミド化合物としては、ビス-(3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタンが、好ましい。

[0135] [化37]



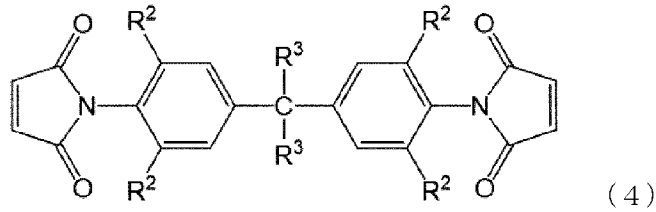
[0136] 式(2)中、R¹は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、本実施形態による作用効果をより有効かつ確実に奏する観点から、水素原子であることが好ましい。また、式(2)中、n²は、1~10の整数を示す。n²の上限値は、有機溶剤への溶解性の観点から、上限値は7であることが好ましい。

[0137] [化38]



[0138] 式(3)中、n³は、1~30の整数を示す。本実施形態による作用効果をより有効かつ確実に奏する観点から、n³は、7~30の整数であることが好ましく、7~18の整数であることがより好ましい。

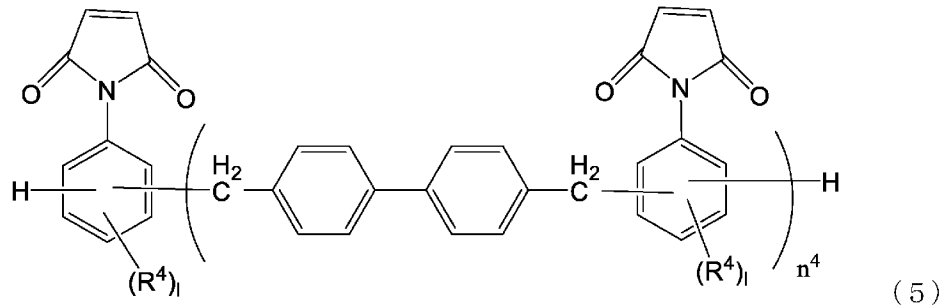
[0139] [化39]



[0140] 式(4)中、 R^2 は、各々独立に、水素原子、メチル基、又はエチル基を示す。

式(4)中、 R^3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示す。

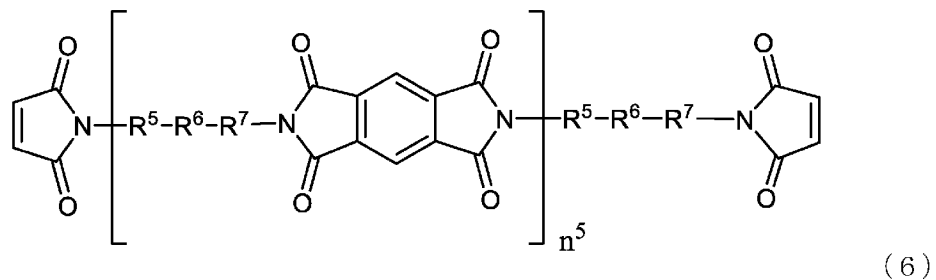
[0141] [化40]



[0142] 式(5)中、 R^4 は、各々独立に、水素原子、炭素数1~5のアルキル基、又はフェニル基を示し、 l は、各々独立に、1~3の整数を示し、 n^4 は、1~10の整数を示す。

炭素数1~5のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 sec -ブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、及びネオペンチル基が挙げられる。

[0143] [化41]



[0144] 式(6)中、 R^5 及び R^7 は、各々独立に、8以上の原子が直鎖状に連結した炭化水素基を示す。 R^6 は、各々独立に、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4~10のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基を示す。 n^5 は、

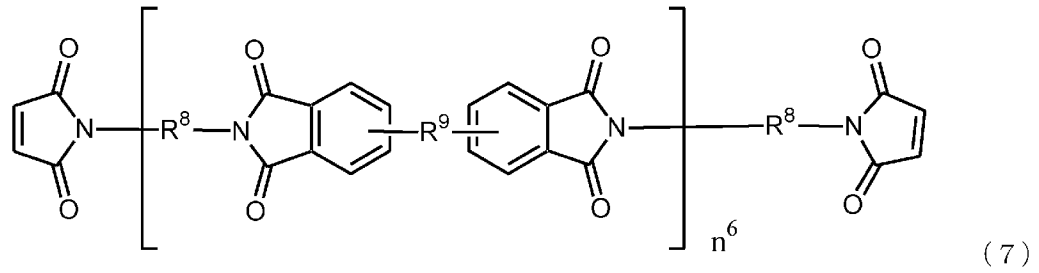
1～10の整数を示す。

R⁵及びR⁷共に、8以上の原子が直鎖状に連結した炭化水素基としては、例えば、8以上の炭素原子を有する、置換又は非置換の2価の炭化水素基が挙げられる。置換又は非置換の2価の炭化水素基としては、特に限定されないが、例えば、置換又は非置換の直鎖状脂肪族炭化水素基、置換又は非置換の分岐状脂肪族炭化水素基、及び置換又は非置換の環状脂肪族炭化水素基が挙げられる。例えば、オクチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基、ドデカメチレン基、ヘキサデカメチレン基、及びオクタデカメチレン基が挙げられる。

R⁶において、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4～10のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基としては、例えば、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4～10である脂環基、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4～10である芳香族基、及び置換又は非置換の、環を構成する原子数が4～10である複素環基が挙げられる。なお、環を構成する原子数とは、環状に連結している原子の数であって、側鎖の置換基等の原子数は含まれない。置換又は非置換の脂環基における脂環部分の基としては、例えば、2価又は2価以上の、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、及びシクロデシル基が挙げられる。また、置換基がアルキル基である場合、アルキル基としては、特に限定されないが、炭素数1～10のアルキル基が好ましく、炭素数3～10のアルキル基がより好ましい。炭素数1～10のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、テキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-エチルヘキシル基、*n*-ノニル基、及び*n*-デシル基が挙げられる。アルキル基置換のアルキル基は、1つでもよく、2以上であってもよい。

[0145]

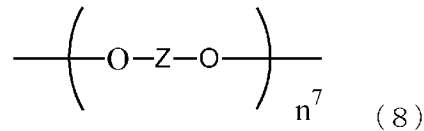
[化42]



[0146] 式(7)中、 R^8 は、各々独立に、アルキレン基を示す。 R^9 は、各々独立に、アルキレン基、式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、式(9)で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。 n^6 は1~10の整数を示す。

R^8 及び R^9 における、アルキレン基は、共に前記のとおりである。

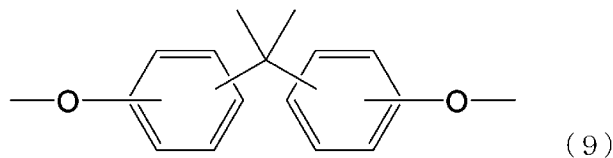
[0147] [化43]



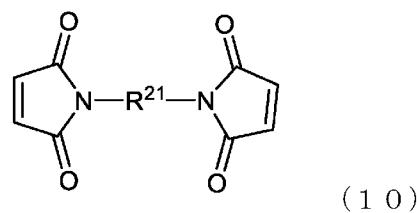
[0148] 式(8)中、Zは、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6~30の炭化水素基である。 n^7 は、0~5の整数を示す。 n^7 は、1~3の整数であることが好ましく、1又は2であることがより好ましい。

Zにおいて、アルキレン基及び芳香族環を有する炭素数6~30の炭化水素基については、前記のとおりである。

[0149] [化44]



[0150] [化45]



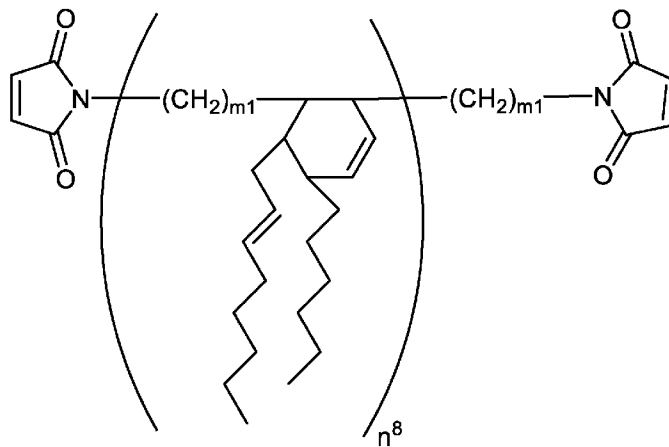
[0151] 式(10)中、 R^{21} は、炭素原子数1~40の直鎖状又は分岐状のアルキレ

ン基、環を構成する炭素数が3～20のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基、酸素原子、式「-NH-」で表される基、硫黄原子、及び式「-S O₂-」で表される基から選ばれる少なくとも1種を示す。

炭素原子数1～40の直鎖状又は分岐状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、2,2-ジメチルプロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、ドデシレン基、ウンデシレン基、トリデシレン基、テトラデシレン基、ペンタデシレン基、ヘキサデシレン基、オクタデシレン基、ネオペンチレン基、ジメチルブチレン基、メチルヘキシレン基、エチルヘキシレン基、ジメチルヘキシレン基、トリメチルヘキシレン基、メチルヘプチレン基、ジメチルヘプチレン基、トリメチルヘプチレン基、テトラメチルヘプチレン基、エチルヘプチレン基、メチルオクチレン基、メチルノニレン基、メチルデシレン基、メチルドデシレン基、メチルウンデシレン基、メチルトリデシレン基、メチルテトラデシレン基、メチルペンタデシレン基、メチルヘキサデシレン基、エイコシレン基、及びトリアコンレン基が挙げられる。

環を構成する炭素数が3～20のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基としては、前記のとおりである。

[0152] [化46]

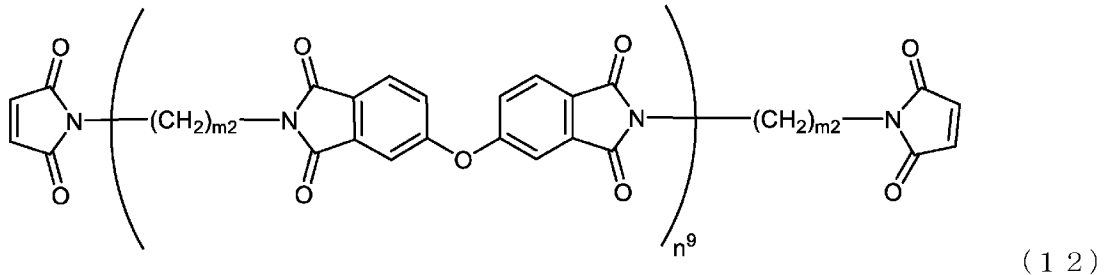


(11)

[0153] 式(11)中、 n^8 は、1～10の整数を示し、 $m1$ は、8～40の整数を

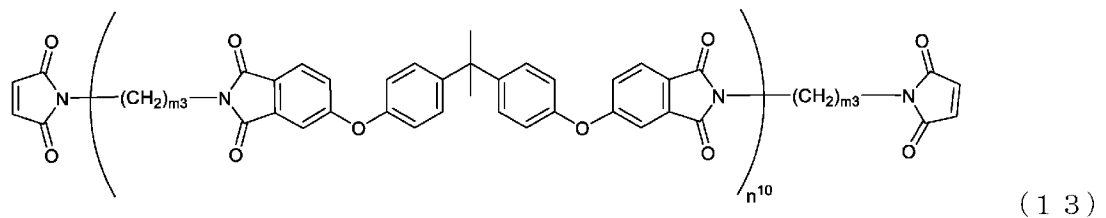
示す。n⁸は、1～8の整数であることが好ましい。m₁は、8～32の整数であることが好ましい。

[0154] [化47]



[0155] 式(12)中、n⁹は、1～10の整数を示し、m₂は、8～40の整数を示す。n⁹は、1～9の整数であることが好ましい。m₂は、8～32の整数であることが好ましい。

[0156] [化48]



[0157] 式(13)中、n¹⁰は、1～10の整数を示し、m₃は、8～40の整数を示す。n¹⁰は、1～9の整数であることが好ましい。m₃は、8～32の整数であることが好ましい。

[0158] マレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物(B)としては、有機溶剤に対して良好な溶解性が得られることからボイドが低減でき、また良好な可撓性が得られる点から、式(5)で表されるマレイミド化合物が好ましく、式(5)で表されるマレイミド化合物と共に、更に2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、式(2)で表されるマレイミド化合物、及び式(4)で表されるマレイミド化合物から選ばれる少なくとも1種のマレイミド化合物を含有することがより好ましく、(5)で表されるマレイミド化合物、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、式(2)で表されるマレイミド化合物、及び式(4)で表されるマレイミド化合物の全てを含むことが更に好ましい。

[0159] マレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) は、市販品を用いてもよく、2, 2-ビス (4- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) プロパンとしては、例えば、ケイ・アイ化成 (株) 製BMI-80 (商品名) が挙げられる。式 (2) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、大和化成工業 (株) 社製BMI-2300 (商品名、式 (2) 中のR¹が全て水素原子であり、n²が1~3の混合物である) が挙げられる。式 (3) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、ケイ・アイ化成 (株) 製BMI-1000P (商品名、式 (3) 中のn³=14 (平均))、ケイ・アイ化成 (株) 社製BMI-650P (商品名、式 (3) 中のn³=9 (平均))、ケイ・アイ化成 (株) 社製BMI-250P (商品名、式 (3) 中のn³=3~8 (平均))、ケイ・アイ化成 (株) 社製CUA-4 (商品名、式 (3) 中のn³=1) 等が挙げられる。式 (4) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、ケイ・アイ化成 (株) 製BMI-70 (商品名) が挙げられる。式 (5) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、日本化薬 (株) 社製MIR-3000-70MT (商品名、式 (5) 中のR⁴が全て水素原子であり、n⁴が1~10の混合物である) が挙げられる。式 (6) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、Designer Molecules inc. 製BMI-3000 (商品名)、及びBMI-5000 (商品名) が挙げられる。式 (7) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、Designer Molecules inc. 製BMI-6000 (商品名) が挙げられる。式 (10) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、大和化成工業 (株) 社製BMI-TMH (商品名)、Evonik 社製MAHD (商品名) が挙げられる。式 (11) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、Designer Molecules inc. 製BMI-689 (商品名) が挙げられる。式 (12) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、Designer Molecules inc. 製BMI-1500 (商品名) が挙げられる。式 (13) で表されるマレイミド化合物としては、例えば、Designer Molecules

inc. 製BMI-1700 (商品名) が挙げられる。

[0160] 本実施形態の樹脂組成物において、ラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の含有量は、特に限定されないが、ビスマレイミド化合物 (A) を主成分とした硬化物を得ることが可能となり、硬化性をより向上させ、かつ、より一層の低ポイド性が得られるという観点から、ビスマレイミド化合物 (A) 及びラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の合計 100 質量部に対して、1 質量部～99 質量部であることが好ましく、5 質量部～97 質量部であることがより好ましく、10 質量部～95 質量部であることが更に好ましく、15 質量部～90 質量部であることが更により好ましく、20 質量部～85 質量部であることがより更に好ましい。

[0161] 本実施形態の樹脂組成物において、マレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) として式 (5) で表されるマレイミド化合物を含む場合には、特に限定されないが、有機溶剤への良好な溶解性及び良好な可撓性が得られる点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物 (A) 及びマレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の合計 100 質量部に対して、式 (5) で表されるマレイミド化合物を 5 質量部以上 70 質量部以下で含むことが好ましく、10 質量部～60 質量部で含むことがより好ましい。

本実施形態の樹脂組成物において、マレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) が、式 (5) で表されるマレイミド化合物、2, 2-ビス (4- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) プロパン、式 (2) で表されるマレイミド化合物、及び式 (4) で表されるマレイミド化合物を含む場合には、特に限定されないが、優れたタック性及び透過性を有しながら、より良好な可撓性、より一層の低ポイド性、及びより一層優れたチップ接着性が得られる点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物 (A) 及びマレイミド基を有するラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) の合計 100 質量部に対して、ビスマレイミド化合物 (A) を 15 質量部～65 質量部、式 (5) で表されるマレイミド化合物を 5 質量部～82 質量部、2, 2-ビス

(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパンを1質量部~10質量部、式(2)で表されるマレイミド化合物を1質量部~10質量部、及び式(4)で表されるマレイミド化合物を1質量部~10質量部でそれぞれ含むことが好ましく、ビスマレイミド化合物(A)を22質量部~65質量部、式(5)で表されるマレイミド化合物を5質量部~75質量部、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパンを1質量部~15質量部、式(2)で表されるマレイミド化合物を1質量部~5質量部、及び式(4)で表されるマレイミド化合物を1質量部~10質量部でそれぞれ含むことがより好ましい。

[0162] 重合性官能基として(メタ)アクリロイル基を有する、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)としては、分子中に1個以上の(メタ)アクリロイル基を有する化合物であれば、特に限定されない。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、イソプロピル(メタ)アクリレート、イソブチル(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、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシ-1,3-ジ(メタ)アクリロキシプロパン、2,2-ビス[4-(メタ)アクリロキシメトキシ]フェニル]プロパン、2,2-ビス[4-(メタ)アクリロキシポリエトキシ]フェニル]プロパン、ジシクロペンテニル(メタ)アクリレート、トリシクロデカニル(メタ)アクリレート、トリス((メタ)アクリロイロキシエチル)イソシアヌレート、及びウレタン(メタ)アクリレートが挙げられる。(メタ)アクリロイル基を有する樹脂又は化合物(B)は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0163] 重合性官能基としてアリル基を有する、ラジカル重合性樹脂又は化合物(B)としては、分子中に1個以上のアリル基を有する樹脂又は化合物であれば、特に限定されない。例えば、トリ(メタ)アリルシアヌレート、トリ(メタ)アリルイソシアヌレート、トリ(メタ)アリルトリメリテート、テト

ラ（メタ）アリルピロメリテート、及びペンタエリスリトールトリ（メタ）アリルエーテルが挙げられる。アリル基を有する樹脂又は化合物（B）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0164] 〔硬化促進剤（C）〕

本実施形態の樹脂組成物は、硬化促進剤を含む。樹脂組成物が硬化促進剤を含むと、硬化速度を調整でき、また、適度な成形性を有する樹脂組成物が得られる。本実施形態の硬化促進剤は、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及びラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の硬化を促進できる化合物であれば、特に限定されない。硬化促進剤（C）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0165] 本実施形態の硬化促進剤としては、特に限定されないが、例えば、熱ラジカル重合開始剤（D）、イミダゾール化合物（E）、並びにトリエチルアミン及びトリブチルアミン等の第3級アミンが挙げられる。これらの中でも、良好な硬化速度が得られる点から、熱ラジカル重合開始剤（D）及びイミダゾール化合物（E）から選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましく、熱ラジカル重合開始剤（D）及びイミダゾール化合物（E）の両方を含むことがより好ましい。

[0166] 本実施形態において、硬化促進剤（C）の含有量は、特に限定されないが、良好な硬化速度が得られる点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、0.05質量部～10質量部で含むことが好ましく、0.05質量部～8質量部で含むことがより好ましい。

[0167] （熱ラジカル重合開始剤（D））

本実施形態に係る熱ラジカル重合開始剤（D）は、熱により、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）におけるマレイミド基、及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の重合性官能基を重合させることができる活性物質（ラジカル）を放出する化合物であれば特に限定されず、公知の熱ラジカル開始剤を用いることができる。熱ラジカル重合開始剤（

D) は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0168] 本実施形態において、熱ラジカル重合開始剤 (D) の10時間半減期温度は、特に限定されないが、100℃以上であることが好ましく、製造性の観点から、110℃以上であることがより好ましい。本実施形態において、製造時の溶剤除去工程の高温化を図ることができるため、熱ラジカル重合開始剤 (D) は、前記の範囲の10時間半減期温度を満たすことが好ましい。

[0169] 熱ラジカル重合開始剤としては、例えば、ジクミルパーオキシド、ジ(2-tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、1,1,3,3-テトラメチルブチルヒドロパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ビス(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3、ベンゾイルパーオキシド、ジ-tert-ブチルパーオキシド、メチルエチルケトンパーオキシド、及びシクロヘキサノンパーオキシドのケトンパーオキシド; 1,1-ジ(tert-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、及び2,2-ジ(4,4-ジ(tert-ブチルパーオキシ)シクロヘキシル)プロパンのパーオキシケタール; tert-ブチルヒドロパーオキシド、p-メンタンヒドロパーオキシド、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシド、クメンヒドロパーオキシド、及びtert-ブチルヒドロパーオキシドのヒドロパーオキシド; ジ(2-tert-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルパーオキシ)ヘキサン、tert-ブチルクミルパーオキシド、ジ-tert-ヘキシルパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3、及びジ-tert-ブチルパーオキシドのジアルキルパーオキシド; ジベンゾイルパーオキシド、及びジ(4-メチルベンゾイル)パーオキシドのジアシルパーオキシド; ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、及びジイソプロピルパーオキシジカーボネートのパーオキシジカーボネート; 2,5-ジメチル-2,5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、tert-ヘキシルパーオキシベンゾエート、tert-ブチルパーオキシベンゾエート、及びtert-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエートのパーオキシエステル等の有機過酸化物; 2

、2'-アゾビスブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、及び2, 2'-アゾビス(4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル)等のアゾ化合物などが挙げられる。本実施形態においては、良好な硬化速度が得られる点から、有機過酸化物が好ましく、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアルキルパーオキサイド、及びヒドロパーオキサイド骨格を有する有機過酸化物がより好ましく、ジクミルパーオキサイド、ジ(2-tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルヒドロパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ビス(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3、及びtert-ブチルヒドロパーオキサイドが、製造性の観点から、更に好ましい。

[0170] 本実施形態の樹脂組成物において、熱ラジカル重合開始剤(D)の含有量は、特に限定されないが、良好な硬化速度が得られる点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物(A)及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物(B)の合計100質量部に対して、0.05質量部~10質量部で含むことが好ましく、0.05質量部~8質量部で含むことがより好ましい。

[0171] (イミダゾール化合物(E))

本実施形態に係るイミダゾール化合物(E)は、本実施形態に係るビスマレイミド化合物(A)及びラジカル重合性樹脂又は化合物(B)の硬化を促進できるイミダゾール化合物であれば、特に限定されず、公知のイミダゾール化合物を用いることができる。イミダゾール化合物(E)は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0172] イミダゾール化合物(E)としては、例えば、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール、2, 4, 5-トリフェニルイミダゾール、トリエチルアミン及びトリブチルアミン等の第3級アミン、及びそれらの誘導体が挙げられる。中でも、硬化速度の調整が容易である点から、2-エチル-4-

メチルイミダゾールが好ましい。

[0173] 本実施形態の樹脂組成物において、イミダゾール化合物（E）の含有量は、特に限定されないが、硬化速度の調整が容易である点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、0.05質量部～10質量部で含むことが好ましく、0.05質量部～8質量部で含むことがより好ましい。

[0174] [熱硬化性化合物（F）]

本実施形態の樹脂組成物には、特に限定されないが、硬化速度の調整が容易である点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）以外の熱硬化性化合物（F）を更に含むことが好ましい。本実施形態に係る熱硬化性化合物（F）としては、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及びラジカル重合性樹脂又は化合物（B）と反応性を示す化合物であれば、公知の化合物を用いることができ、特に限定されない。熱硬化性化合物（F）としては、後述のフラックス機能を有する有機化合物（H）と反応性を示さないことが好ましい。

[0175] 熱硬化性化合物（F）の分子量は、特に限定されないが、リップチップ実装中において、熱硬化性化合物（F）の揮発によるボイドを防ぐ観点から、400以上であることが好ましい。一方、より十分なフラックス活性を得る観点から、熱硬化性化合物（F）の分子量は、10,000以下であることが好ましい。

[0176] このような熱硬化性化合物（F）としては、特に限定されないが、アルケニル基を有する化合物、（メタ）アクリロイル基を有する化合物、及びベンゾオキサジン化合物が挙げられる。熱硬化性化合物（F）の中でも、優れた、難燃性、耐熱性、接着性、及び有機溶剤への溶解性が得られる点から、ベンゾオキサジン化合物を含むことが好ましい。これらの熱硬化性化合物（F）は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

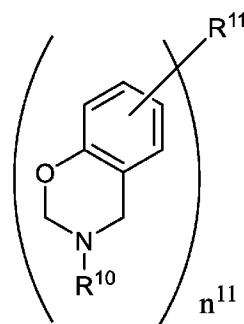
[0177] アルケニル基を有する化合物としては、分子中に1個以上の炭素-炭素二重結合を有する化合物であり、本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物(B)以外であれば、特に限定されず、例えば、ビニル基を有する化合物、及び(メタ)アリル基を有する化合物が挙げられる。

[0178] ビニル基を有する化合物としては、例えば、ジビニルベンゼン、ジビニルナフタレン、スチレン、及びスチレン誘導体が挙げられる。これらのビニル基を有する化合物は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0179] ベンゾオキサジン化合物としては、基本骨格としてオキサジン環を有していれば、特に限定されない。本実施形態において、ベンゾオキサジン化合物には、ナフトオキサジン化合物などの多環オキサジン骨格を有する化合物も含まれる。ベンゾオキサジン化合物は、加熱により揮発性の副生成物を発生することはなく、ベンゾオキサジン環が開環重合して好適に硬化する。硬化物は、耐熱性、耐水性、及び難燃性に優れる。また、ベンゾオキサジン化合物は、開環重合時に極性基であるフェノール性水酸基、及び第3級アミノ基が生成されるため、高いチップ接着性及び基板接着性が期待できる。ベンゾオキサジン化合物は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0180] ベンゾオキサジン化合物としては、式(14)で表される化合物、式(15)で表される化合物、式(16)で表される化合物、及び式(17)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。なお、本実施形態において、ベンゾオキサジン化合物中には、モノマーが重合して生成したオリゴマーなどを含んでいてもよい。

[0181] [化49]

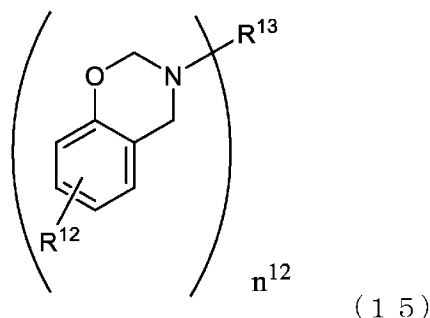


(14)

- [0182] 式(14)中、 R^{10} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。 R^{11} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は一般式(a)～(t)で表される1価～4価の有機基を示す。 n^{11} は、1～4の整数を示す。
- [0183] R^{10} 及び R^{11} 共に、アリール基としては、炭素原子数6～18のアリール基であることが好ましい。このようなアリール基として、例えば、フェニル基、ナフチル基、インデニル基、ビフェニル基、及びアントリル基が挙げられる。中でも、フェニル基がより好ましい。これらのアリール基は、炭素原子数1～4の低級アルキル基を1個以上、好ましくは、1～3個の範囲で有する。そのような低級アルキル基を有するアリール基としては、例えば、トリル基、キシリル基、及びメチルナフチル基などを挙げるができる。
- [0184] R^{10} 及び R^{11} 共に、アラルキル基は、ベンジル基、及びフェネチル基であることが好ましい。これらは、そのフェニル基上に炭素原子数1から4の低級アルキル基を1個以上、好ましくは、1～3個の範囲で有する。
- [0185] R^{10} 及び R^{11} 共に、アルケニル基としては、例えば、ビニル基、(メタ)アリル基、プロペニル基、ブテニル基、及びヘキセニル基が挙げられる。これらの中でも、ビニル基、アリル基、及びプロペニル基が好ましく、アリル基がより好ましい。
- [0186] R^{10} 及び R^{11} 共に、アルキル基としては、炭素原子数1～20のアルキル基が好ましく、より好ましくは炭素原子数1～10のアルキル基である。炭素原子数3以上のアルキル基は、直鎖状でも分岐鎖状でもよい。例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、テキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-エチルヘキシル基、*n*-ノニル基、及び*n*-デシル基が挙げられる。
- [0187] R^{10} 及び R^{11} 共に、シクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、及びシクロヘプチル基が挙げられる。好ましくは、シ

クロヘキシル基である。

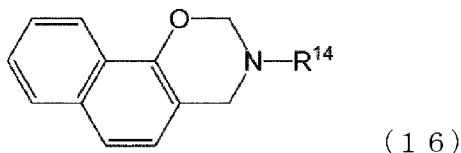
[0188] [化50]



[0189] 式(15)中、 R^{12} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。 R^{13} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は一般式(a)～(t)で表される1価～4価の有機基を示す。 n^{12} は1～4の整数を示す。

[0190] R^{12} 及び R^{13} 共に、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、及びシクロアルキル基については、前記のとおりである。

[0191] [化51]



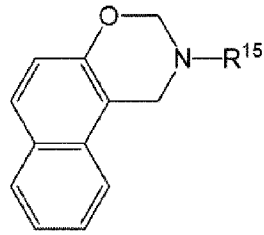
[0192] 式(16)中、 R^{14} は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有していてもよいフェニル基を示す。

[0193] R^{14} における、アルキル基及びシクロアルキル基については、前記のとおりである。

[0194] 置換基を有していてもよいフェニル基としては、例えば、無置換フェニル基；4-メチルフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、及び4-メトキシフェニル基の一置換フェニル基；3,5-ジメチルフェニル基、3,4-ジメチルフェニル基、及び3,5-ジメトキシフェニル基の二置換フェニル基；3,4,5-トリメチルフェニル基の三置換フェニル基；2-ナフチル基、3-メチル-2-ナフチル基、及び4-メチル-2-ナフチル基の置換基を有していてもよい2-ナフチル基が挙げら

れる。

[0195] [化52]

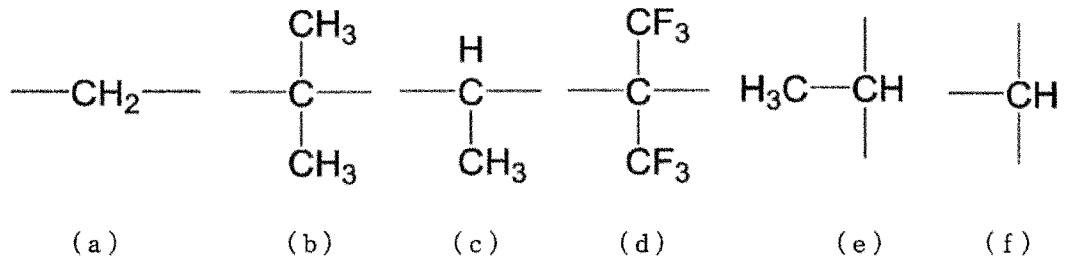


(17)

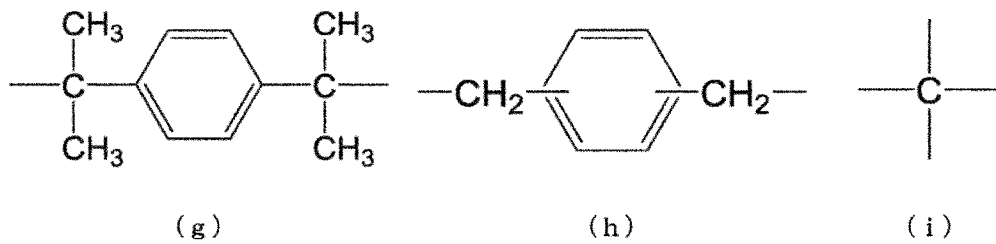
[0196] 式(17)中、R¹⁵は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有していてもよいフェニル基を示す。

[0197] R¹⁵における、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有していてもよいフェニル基については、前記のとおりである。

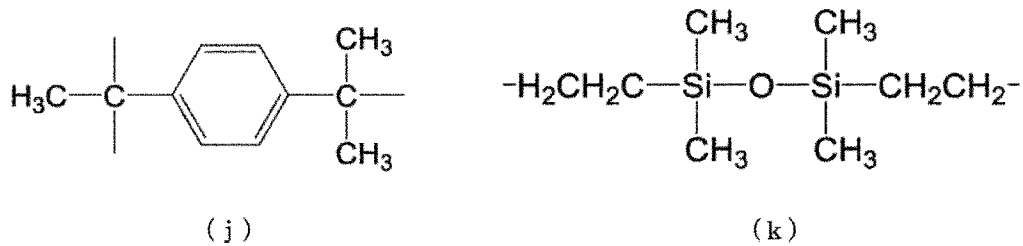
[0198] [化53]



[0199] [化54]

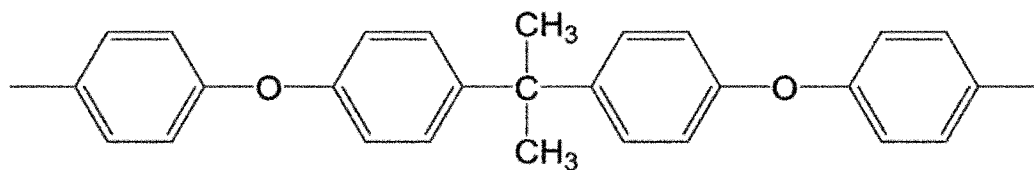


[0200] [化55]

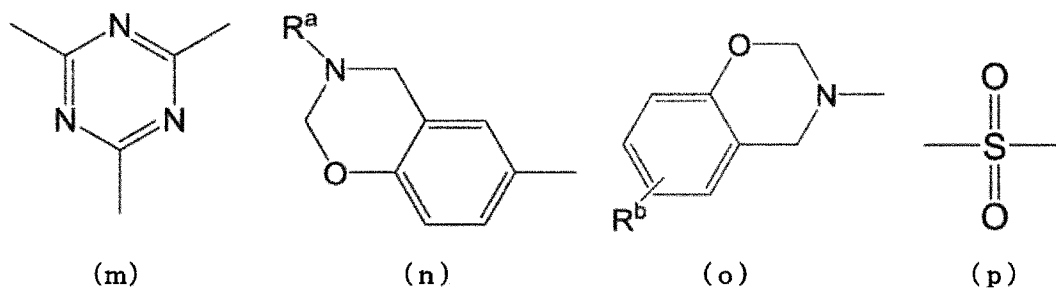


[0201]

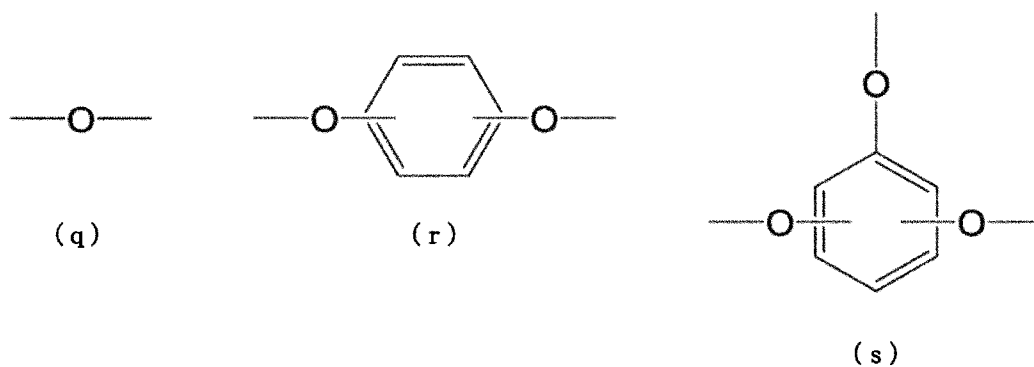
[化56]



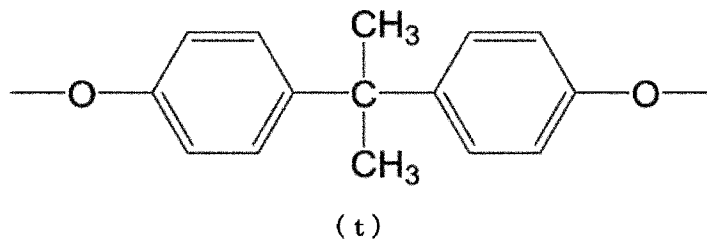
[0202] [化57]



[0203] [化58]



[0204] [化59]



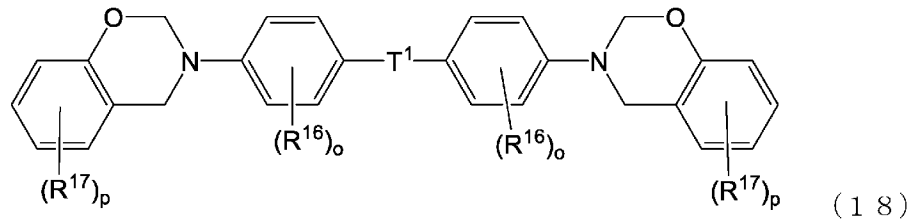
[0205] 一般式 (a) ~ (t) 中、 R^a は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。 R^b は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。

[0206] R^a 及び R^b 共に、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、

及びシクロアルキル基については、前記のとおりである。

[0207] ベンゾオキサジン化合物としては、優れた、難燃性、及び耐熱性が得られる点から、式(18)で表される化合物、式(19)で表される化合物、及び式(20)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含むことが、溶剤溶解性の観点から、好ましい。

[0208] [化60]



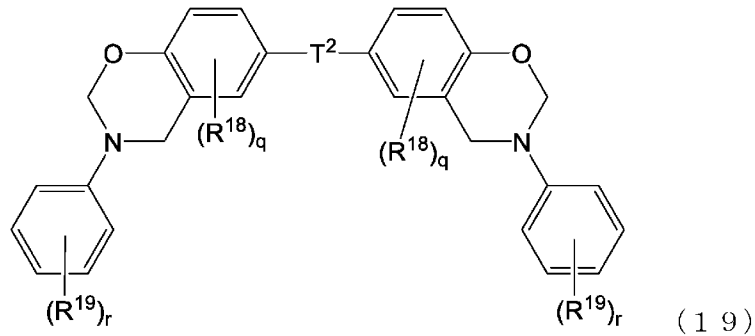
[0209] 式(18)中、 R^{16} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。 o は、各々独立に、1~4の整数を示す。 R^{17} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。 p は、各々独立に、1~4の整数を示す。 T^1 は、アルキレン基、式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。

[0210] R^{16} 及び R^{17} 共に、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、及びシクロアルキル基については、前記のとおりである。

[0211] T^1 におけるアルキレン基としては、直鎖状又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。直鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デカニレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、及びオクタデシレン基が挙げられる。分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-CH(CH_2CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)(CH_2CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)(CH_2CH_2CH_3)-$ 、及び $-C(CH_2CH_3)_2-$ のアルキルメチレン基； $-CH(CH_3)CH_2-$ 、 $-CH(CH_3)CH(CH_3)-$ 、

—C(CH₃)₂CH₂—、—CH(CH₂CH₃)CH₂—、及び—C(CH₂CH₃)₂—のアルキルエチレン基が挙げられる。

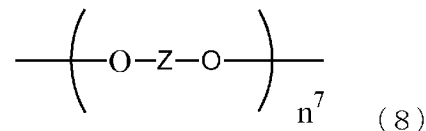
[0212] [化61]



[0213] 式(19)中、R¹⁸は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。qは、各々独立に、1～3の整数を示す。R¹⁹は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。rは、各々独立に、1～5の整数を示す。T²は、アルキレン基、式(8)で表される基、式「—SO₂—」で表される基、「—CO—」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。

[0214] R¹⁸及びR¹⁹共に、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、及びシクロアルキル基については前記のとおりである。T²におけるアルキレン基については、前記のとおりである。

[0215] [化62]



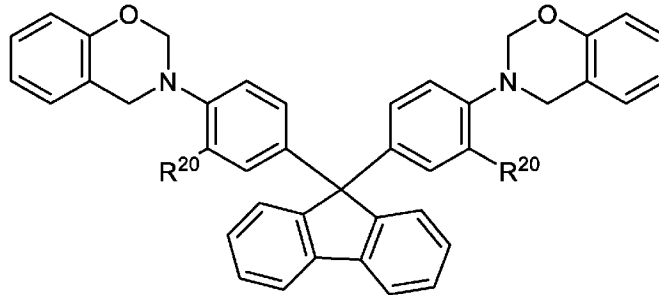
[0216] 式(8)中、Zは、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6～30の炭化水素基です。n⁷は、0～5の整数を示す。n⁷は、1～3の整数であることが好ましく、1又は2であることがより好ましい。

[0217] Zにおけるアルキレン基については、前記のとおりである。

[0218] 芳香族環を有する炭素数6～30の炭化水素基としては、例えば、ベンゼン、ビフェニル、ナフタレン、アントラセン、フルオレン、フェナントレイ

ン、インダセン、ターフェニル、アセナフチレン、及びフェナレンの芳香族性を有する化合物の核から水素原子を2つ除いた2価の基が挙げられる。

[0219] [化63]

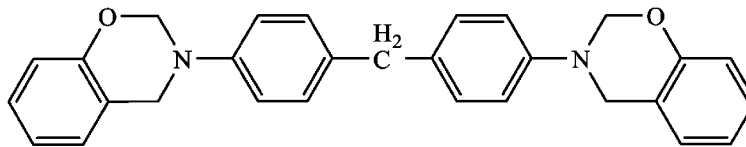


(20)

[0220] 式(20)中、R²⁰は、各々独立に、水素原子、又は炭素数1~4の炭化水素基を示す。

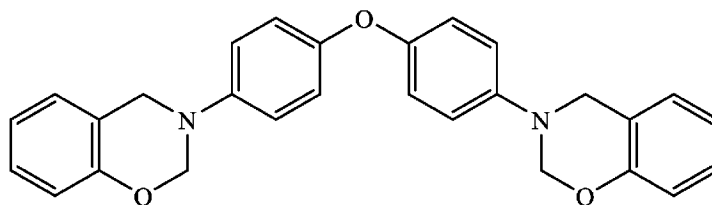
[0221] 本実施形態の樹脂組成物には、優れた、難燃性、及び耐熱性が得られる点から、式(18)で表される化合物が、式(21)で表される化合物、及び/又は式(22)で表される化合物を含むことが好ましい。また、本実施形態の樹脂組成物には、有機溶剤への溶解性が優れる点から、式(19)で表される化合物が、式(23)で表される化合物、式(24)で表される化合物、及び式(25)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。これらの中でも、本実施形態の樹脂組成物には、より優れた、難燃性、耐熱性、及び有機溶剤への溶解性が得られる点から、式(21)で表される化合物を含むことがより好ましい。

[0222] [化64]



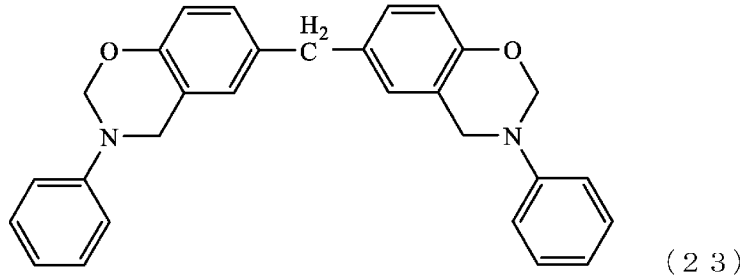
(21)

[0223] [化65]

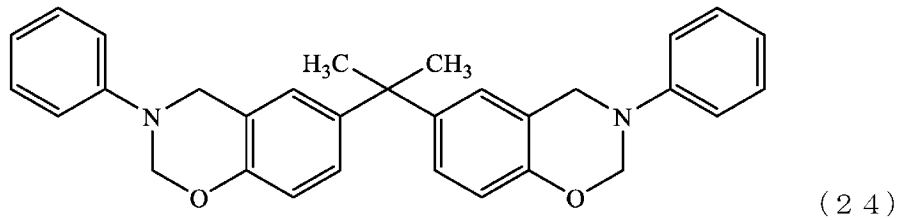


(22)

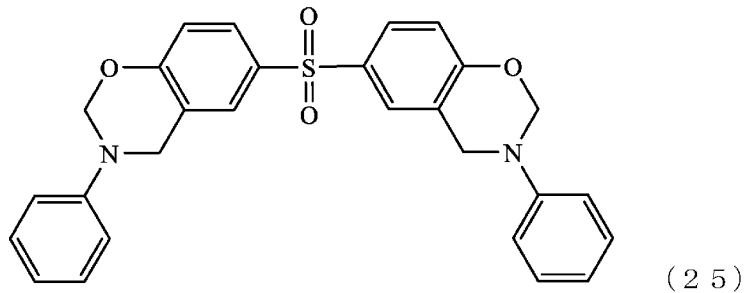
[0224] [化66]



[0225] [化67]



[0226] [化68]



[0227] ベンゾオキサジン化合物としては、市販のものを使用してもよく、例えば、P-d型ベンゾオキサジン（四国化成工業社製、3, 3'-（メチレン-1, 4-ジフェニレン）ビス（3, 4-ジヒドロ-2H-1, 3-ベンゾオキサジン）、水酸基当量：217、分子量：434）、及びF-a型ベンゾオキサジン（四国化成工業社製、2, 2-ビス（3, 4-ジヒドロ-2H-3-フェニル-1, 3-ベンゾオキサジニル）メタン、水酸基当量：217、分子量：434）が挙げられる。

[0228] これらのベンゾオキサジン化合物は、1種又は2種以上を混合して使用することができる。

[0229] 本実施形態の樹脂組成物が、熱硬化性化合物（F）を含む場合、熱硬化性化合物（F）の含有量は、特に限定されないが、良好なチップ接着性、及び可撓性を有する点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び

本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～99質量部であることが好ましく、5質量部～80質量部であることがより好ましく、10質量部～60質量部であることが更に好ましい。

[0230] 〔無機充填材（G）〕

本実施形態の樹脂組成物には、耐燃性の向上、熱伝導率の向上、及び熱膨張率の低減のため、無機充填材（G）を更に含むことが好ましい。無機充填材を使用することにより、樹脂組成物等の耐燃性、及び熱伝導率を向上させ、熱膨張率を低減することができる。

[0231] 無機充填材（G）の平均粒径は、特に限定されないが、本実施形態の樹脂組成物を、アンダーフィル材として、好適にはプライドアンダーフィル材として用いる場合、チップに配列される電極の狭ピッチ化や電極間の狭ギャップ化に対応する観点からは、3 μ m以下が好ましく、1 μ m以下がより好ましい。その平均粒径の下限値は、特に限定されないが、例えば、10nmである。なお、本実施形態において、無機充填材（G）の「平均粒径」とは、無機充填材（G）のメジアン径を意味するものとする。ここでメジアン径とは、ある粒径を基準として粉体の粒度分布を2つに分けた場合に、より粒径が大きい側の粒子の体積と、より粒径が小さい側の粒子の体積とが、全粉体の夫々50%を占めるような粒径を意味する。無機充填材（G）の平均粒径（メジアン径）は、湿式レーザー回折・散乱法により測定される。

[0232] 無機充填材（G）としては、特に限定されないが、例えば、天然シリカ、溶融シリカ、アモルファスシリカ、及び中空シリカ等のシリカ；ペーサイト、水酸化アルミニウム、アルミナ、及び窒化アルミニウム等のアルミニウム化合物；酸化マグネシウム、及び水酸化マグネシウム等のマグネシウム化合物；炭酸カルシウム、及び硫酸カルシウム等のカルシウム化合物；酸化モリブデン、及びモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物；窒化ホウ素；硫酸バリウム；天然タルク、及び焼成タルク等のタルク；マイカ；短繊維状ガラス、球状ガラス、及び微粉末ガラス（例えば、Eガラス、Tガラス、Dガラス

)等のガラスが挙げられる。また、本実施形態の樹脂組成物に導電性又は異方導電性を付与したい場合には、無機充填材(G)として、例えば、金、銀、ニッケル、銅、錫合金、及びパラジウムの金属粒子を使用してもよい。

[0233] これらの中でも、本実施形態の樹脂組成物の耐燃性の向上及び熱膨張率の低減の観点から、無機充填材(G)としては、シリカ、水酸化アルミニウム、アルミナ、ベーマイト、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び水酸化マグネシウムが好ましく、シリカ、アルミナ、窒化ホウ素がより好ましく、その中でもシリカが更に好ましい。シリカとしては、例えば、デンカ(株)製のSFP-120MC(商品名)、及びSFP-130MC(商品名)、(株)アドマテックス製の0.3 μ mSX-CM1(商品名)、0.3 μ mSX-EM1(商品名)、0.3 μ mSV-EM1(商品名)、SC1050-MLQ(商品名)、SC2050-MNU(商品名)、SC2050-MTX(商品名)、2.2 μ mSC6103-SQ(商品名)、SE2053-SQ(商品名)、YA050C-MJE(商品名)、YA050C-MJF(商品名)、及びYA050C-MJA(商品名)が挙げられる。

[0234] これらの無機充填材(G)は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

[0235] 無機充填材(G)は、シランカップリング剤で表面処理されたものを用いてもよい。

シランカップリング剤としては、一般に無機物の表面処理に使用されているシランカップリング剤であれば、特に限定されない。例えば、ビニルトリメトキシシラン、及びγ-メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のビニルシラン系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等のフェニルアミノシラン系シランカップリング剤；トリメトキシフェニルシラン等のフェニルシラン系シランカップリング剤；イミダゾールシラン系シランカップリング剤が挙げられる。これらのシランカップリング剤は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用すること

ができる。

[0236] 本実施形態の樹脂組成物が、無機充填材（G）を含む場合、無機充填材（G）の含有量は、特に限定されないが、樹脂組成物の耐燃性の向上、及び熱膨張率の低減をしつつ、アンダーフィル材、好適にはプリアプライドアンダーフィル材の接合時の流動性を確保する観点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、500質量部以下であることが好ましく、300質量部以下であることがより好ましい。また、その含有量は、10質量部以上とすることが好ましく、20質量部以上とすることがより好ましく、50質量部以上とすることが更に好ましい。

[0237] [フラックス機能を有する有機化合物（H）]

本実施形態の樹脂組成物には、フリップチップ実装中においてフラックス活性を発現させるため、フラックス機能を有する有機化合物（B）を更に含むことが好ましい。フラックス機能を有する有機化合物（H）は、分子中に1個以上の酸性部位を有する有機化合物であれば、特に限定されない。酸性部位としては、例えば、リン酸基、フェノール性水酸基、カルボキシル基、及びスルホン酸基が好ましく、本実施形態の樹脂組成物を、アンダーフィル材として、好適にはプリアプライドアンダーフィル材として用いた半導体装置において、接合部を構成するはんだや銅等の金属のマイグレーション、及び腐食をより有効に防止する観点から、フェノール性水酸基又はカルボキシル基がより好ましい。フラックス機能を有する有機化合物（H）は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

[0238] フラックス機能を有する有機化合物（H）は、特に限定されないが、接合部の酸化膜の除去を十分行うために、酸解離定数 pK_a が、3.8～15.0であることが好ましく、ワニス及び樹脂積層体の保存安定性とフラックス活性の両立の観点から、4.0～14.0であることがより好ましい。

[0239] 本実施形態の樹脂組成物におけるフラックス機能を有する有機化合物（H）は、特に限定されないが、フリップチップ実装中においてフラックス活性

が発現する前に揮発してしまうこと、すなわち接合部の酸化膜を除去する前にフラックス機能を有する有機化合物（H）が揮発してしまうことを防ぐ観点から、分子量が200以上であることが好ましく、250以上であることがより好ましい。酸としての運動性を有し、十分なフラックス活性を得るためには、分子量8000以下であることが好ましく、1000以下であることがより好ましく、500以下であることが更に好ましい。

[0240] フラックス機能を有する有機化合物（H）としては、特に限定されないが、例えば、アビエチン酸、ネオアビエチン酸、デヒドロアビエチン酸、ピマール酸、イソピマール酸、パラストリン酸、ジフェノール酸、ジヒドロアビエチン酸、テトラヒドロアビエチン酸、ロジン変性マレイン酸樹脂等のロジン酸変性樹脂、N，N′-ビス（サリチリデン）-1，2-プロパンジアミン、N，N′-ビス（サリチリデン）-1，3-プロパンジアミン、及びフェノールフタリンが挙げられる。これらのフラックス機能を有する有機化合物（H）は、溶剤溶解性及び保存安定性の観点に優れる点から、好ましい。

[0241] これらの中でも、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）による失活を防ぐ観点からは、デヒドロアビエチン酸、ジフェノール酸、ジヒドロアビエチン酸、テトラヒドロアビエチン酸、ロジン変性マレイン酸樹脂等のロジン酸変性樹脂、N，N′-ビス（サリチリデン）-1，2-プロパンジアミン、及びN，N′-ビス（サリチリデン）-1，3-プロパンジアミンがより好ましい。デヒドロアビエチン酸、ジヒドロアビエチン酸、ロジン変性マレイン酸樹脂等のロジン酸変性樹脂、N，N′-ビス（サリチリデン）-1，2-プロパンジアミン、及びN，N′-ビス（サリチリデン）-1，3-プロパンジアミンは、比較的反応性が低いことから、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化合物（B）との反応がほとんど起こらず、酸化膜の除去に必要な十分なフラックス活性が維持される観点から更に好ましい。

[0242] フラックス機能を有する有機化合物（H）としては、市販のものを使用し

てもよく、例えば、マルキードN○32（荒川化学工業(株)製、（商品名）
、酸価：140以下）、マルキードN○31（荒川化学工業(株)製、（商品
名）酸価：200以下）、及びマルキードN○33（荒川化学工業(株)製、
（商品名）酸価：290～320）が挙げられる。

[0243] 本実施形態の樹脂組成物が、フラックス機能を有する有機化合物（H）を
含む場合、フラックス機能を有する有機化合物（H）の含有量は、特に限定
されないが、樹脂組成物のフラックス活性と、積層体を形成して使用する際
に重要な特性の一つとなる可撓性を両立する観点から、本実施形態に係るビ
スマレイミド化合物（A）及び本実施形態に係るラジカル重合性樹脂又は化
合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～60質量部であること
が好ましく、5質量部～50質量部であることがより好ましく、10質量部
～45質量部であることが更に好ましい。

[0244] 〔その他の成分〕

本実施形態の樹脂組成物では、ビスマレイミド化合物（A）、ラジカル重
合性樹脂又は化合物（B）、熱ラジカル重合開始剤（D）及びイミダゾール
化合物（E）等の硬化促進剤（C）、熱硬化性化合物（F）、無機充填材（
G）、及びフラックス機能を有する有機化合物（H）の他に、その他の成分
を1種又は2種以上含んでいてもよい

[0245] その他の成分としては、特に限定されないが、例えば、可撓性付与成分が
挙げられる。可撓性付与成分は、樹脂組成物を含む層に対して可撓性を付与
できるような成分であれば、特に限定されないが、例えば、本実施形態に係
る、ビスマレイミド化合物（A）、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）、
熱硬化性化合物（F）、及びフラックス機能を有する有機化合物（H）以外
の、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリスチレン、ポリオレフィン、スチ
レンーブタジエンゴム（SBR）、イソプレングム（IR）、ブタジエンゴ
ム（BR）、（メタ）アクリロニトリルブタジエンゴム（NBR）、ポリウ
レタン、ポリプロピレン、（メタ）アクリルオリゴマー、（メタ）アクリル
ポリマー、及びシリコーン樹脂等の熱可塑性の高分子化合物が挙げられる。

これらの可撓性付与成分は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

- [0246] 本実施形態の樹脂組成物には、その他の成分として、樹脂と無機充填材との界面の接着性の向上、及び吸湿耐熱性の向上を目的として、シランカップリング剤を含むこともできる。シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、及びγ-メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のビニルシラン系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等のフェニルアミノシラン系シランカップリング剤；トリメトキシフェニルシラン等のフェニルシラン系シランカップリング剤；イミダゾールシラン系シランカップリング剤が挙げられる。これらのシランカップリング剤は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

シランカップリング剤を使用する場合、その含有量は、特に限定されないが、吸湿耐熱性の向上、及びフリップチップ実装時の揮発量の低減観点から、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及びラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、0.05質量部～20質量部であることが好ましい。

- [0247] 本実施形態の樹脂組成物には、その他の成分として、積層体の製造性向上及び充填材の分散性等の目的として、湿潤分散剤を含むこともできる。湿潤分散剤としては、一般に塗料等に使用されている湿潤分散剤であれば、特に限定されない。例えば、ビッグケミー・ジャパン（株）製のDisperbyk（登録商標）-110（商品名）、同-111（商品名）、同-180（商品名）、同-161（商品名）、BYK-W996（商品名）、同-W9010（商品名）、及び同-W903（商品名）が挙げられる。これらの湿潤分散剤は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

湿潤分散剤を使用する場合、その含有量は、特に限定されないが、積層体の製造性向上の観点からは、本実施形態に係る無機充填材（G）100質量

部に対して、0.1質量部～5質量部とすることが好ましく、0.5質量部～3質量部とすることがより好ましい。なお、2種以上の湿潤分散剤を併用する場合には、これらの合計量が前記比率を満たすことが好ましい。

[0248] その他の成分として、本実施形態の樹脂組成物には、所期の特性が損なわれない範囲において、種々の目的により、各種の添加剤を含有していてもよい。添加剤としては、例えば、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光重合開始剤、蛍光増白剤、光増感剤、染料、顔料、増粘剤、滑剤、消泡剤、レベリング剤、光沢剤、難燃剤、及びイオントラップ剤が挙げられる。光重合開始剤としては、特に限定されないが、例えば、アルキルフェノン系光重合開始剤；アシルホスフィンオキシド系光重合開始剤；チタノセン系光重合開始剤が挙げられる。これらの添加剤は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

本実施形態の樹脂組成物において、その他の添加剤の含有量は、特に限定されないが、通常、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及びラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、それぞれ0.01質量部～10質量部である。

[0249] [樹脂組成物]

本実施形態の樹脂組成物は、低ポイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れる。本実施形態の樹脂組成物を、積層体の形態で使用するアンダーフィル材、好適にはプリアプライドアンダーフィル材として用いた場合、低ポイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れ、加えて、接合性及び絶縁信頼性にも優れる。このように、本実施形態樹脂組成物は、各種の優れた特徴を有することから、アンダーフィル材としてより有用であり、プリアプライドアンダーフィル材として更に有用である。なお、積層体については、後述する。

[0250] 本実施形態の樹脂組成物は、ビスマレイミド化合物（A）、ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）、熱ラジカル重合開始剤（D）及びイミダゾール化

合物（E）等の硬化促進剤（C）と、必要に応じて、熱硬化性化合物（F）と、無機充填材（G）と、フラックス機能を有する有機化合物（H）と、その他の成分とを適宜混合することにより調製される。必要に応じて、これらの成分を有機溶剤に溶解又は分散させたワニスの形態としてもよい。本実施形態の樹脂組成物のワニスは、下記のとおり、本実施形態の積層体を作製する際のワニスとして、好適に使用することができる。有機溶剤は、前記の成分を各々好適に溶解又は分散させることができ、かつ、本実施形態の樹脂組成物の所期の効果を損なわないものであれば特に限定されない。有機溶剤としては、例えば、メタノール、エタノール、及びプロパノール等のアルコール類；アセトン、メチルエチルケトン（以下、「MEK」と略す場合がある。）、及びメチルイソブチルケトン等のケトン類；ジメチルアセトアミド、及びジメチルホルムアミド等のアミド類；トルエン、及びキシレン等の芳香族炭化水素類が挙げられる。これらの有機溶剤は、1種を単独で又は2種以上を適宜混合して使用することができる。

[0251] [樹脂シート]

本実施形態の樹脂シートは、本実施形態の樹脂組成物を含む。具体的には、本実施形態の樹脂シートは、支持基材と、支持基材の片面又は両面に配された樹脂層と、を有し、樹脂層が、本実施形態の樹脂組成物を含む。この樹脂シートを積層樹脂シートとも称す。樹脂シートの製造方法は、常法に従って行うことができ、特に限定されない。例えば、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を支持基材に塗布して乾燥することで得ることができる。

[0252] 支持基材としては、特に限定されないが、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、及びエチレンテトラフルオロエチレン共重合体フィルム、並びにポリイミドフィルム等の有機系のフィルム；これらのフィルムの表面に離型剤を塗布した離型フィルム；銅箔、及びアルミ箔等の導体箔；ガラス板、SUS板、及びFRP等の板状のものが挙げられる。

- [0253] 塗布方法としては、特に限定されないが、例えば、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、バーコーター、ダイコーター、ドクターブレード、及びベーカーアプリケーションター等で支持基材上に塗布する方法が挙げられる。
- [0254] 本実施形態の樹脂シートのうち、単層樹脂シートは、本実施形態の樹脂組成物をシート状に成形してなる。単層樹脂シートの製造方法は、常法に従って行うことができ、特に限定されない。例えば、本実施形態の樹脂シートの製法において、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を支持基材上に塗布して乾燥させた後に、樹脂シートから支持基材を剥離又はエッチングする方法が挙げられる。なお、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、シート状のキャビティを有する金型内に供給し乾燥する等してシート状に成形することで、支持基材を用いることなく単層樹脂シートを得ることもできる。
- [0255] 本実施形態の樹脂シート又は単層樹脂シートの作製において、溶剤を除去する際の乾燥条件は、特に限定されないが、低温であると樹脂組成物中に溶剤が残り易く、高温であると樹脂組成物の硬化が進行することから、20℃～170℃の温度で1分間～90分間が好ましい。
- [0256] 本実施形態の樹脂シート又は単層樹脂シートの樹脂層の厚みは、本実施形態の樹脂組成物の溶液の濃度と塗布の厚みにより調整することができ、特に限定されないが、一般的には塗布の厚みが厚くなると乾燥時に溶剤が残り易くなることから、0.1μm～500μmが好ましい。
- [0257] 本実施形態の樹脂シート又は単層樹脂シートは、例えば、半導体ウェハ、半導体搭載用基板、及びプリント配線板の絶縁層の製造用として使用することができる。
- [0258] [積層体]
本実施形態の樹脂組成物を支持基材上に塗布することにより、低ボイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れる、樹脂組成物を含む層を有する積層体を提供することができる。本実施形

態の積層体は、支持基材と、支持基材上に積層された本実施形態の樹脂組成物を含む層と、を備える。このような積層体は、本実施形態の樹脂組成物が、支持基材に展着されて得られる。支持基材としては、特に限定されないが、高分子フィルムを使用することができる。高分子フィルムとしては、例えば、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリブタジエン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリメチルペンテン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、及びエチレン-ビニルアルコール共重合体などのビニル系樹脂；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、及びポリブチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；ポリウレタン系樹脂；ポリアミド系樹脂；ポリアミド系樹脂等を含有するフィルム、並びにこれらのフィルムの表面に離型剤を塗布した離型フィルムが挙げられる。これらの中でも、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、及びポリアミド系樹脂が好ましく、ポリエステル系樹脂の一種である、ポリエチレンテレフタレートがより好ましい。

[0259] 支持基材の厚さは、特に限定されないが、積層体の製造がより容易である点、例えば、支持基材に樹脂組成物を塗布する場合の塗布厚の安定性と、積層体の搬送性の点から、 $10\ \mu\text{m}$ ～ $100\ \mu\text{m}$ であることが好ましい。支持基材の厚さの下限としては、積層体を製造する際の歩留り確保の点から、 $10\ \mu\text{m}$ 以上であることがより好ましくは、 $20\ \mu\text{m}$ 以上であることが更に好ましく、 $25\ \mu\text{m}$ 以上であることが更に好ましい。支持基材の厚さの上限としては、支持基材が最終的に半導体装置の構成部材として存在することなく、工程の途中で剥離される点と、積層体の製造コストの点から、 $80\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $50\ \mu\text{m}$ 以下であることが更に好ましい。

[0260] 支持基材上に、本実施形態の樹脂組成物を含む層（以下、単に「樹脂組成物層」ともいう。）を形成して本実施形態の積層体を製造する方法としては、特に限定されない。そのような製造方法としては、例えば、本実施形態の樹脂組成物を有機溶剤に溶解又は分散させたワニス、支持基材の表面に塗

布し、加熱、及び／又は減圧下で乾燥し、溶媒を除去して本実施形態の樹脂組成物を固化させ、樹脂組成物層を形成する手法が挙げられる。乾燥条件は、特に限定されないが、樹脂組成物層に対する有機溶剤の含有比率が、樹脂組成物層の総量（100質量部）に対して、通常10質量部以下、好ましくは5質量部以下となるように乾燥させる。斯かる乾燥を達成する条件は、ワニス中の有機溶媒の種類と配合量によっても異なる。例えば、本実施形態に係るビスマレイミド化合物（A）及びラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、10質量部～650質量部のメチルエチルケトンを含むワニスの場合、1気圧下で90℃～160℃の加熱条件下で2分～15分の乾燥が目安となる。本実施形態の積層体における樹脂組成物層の厚さは、特に限定されないが、樹脂組成物層の乾燥時に、比較的分子量の揮発分をより良好に除去する観点、及び積層体としての機能をより有効かつ確実に奏する観点から、5μm～500μmの範囲が好適であり、10μm～100μmの範囲がより好ましい。

[0261] [樹脂組成物層付き半導体ウェハ、及び樹脂組成物層付き半導体搭載用基板]

本実施形態の樹脂組成物層付き半導体ウェハは、半導体ウェハと、その半導体ウェハに積層された本実施形態の積層体とを備え、樹脂組成物を含む層が、半導体ウェハに積層される。また、本実施形態の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板は、半導体搭載用基板と、その半導体搭載用基板に積層された本実施形態の積層体とを備え、樹脂組成物を含む層が、半導体搭載用基板に積層される。

[0262] 本実施形態の樹脂組成物層付き半導体ウェハを作製する方法は、特に限定されないが、例えば、半導体ウェハの電極が形成された面、すなわち基板との接合が行われる面に、本実施形態の積層体の樹脂組成物層が対向するよう貼り合わせることで得られる。また、本実施形態の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板を作製する方法は、特に限定されないが、例えば、半導体搭載用基板のチップ搭載側の面に、本実施形態の積層体の樹脂組成物層が対向する

よう貼り合わせることで得られる。

[0263] 本実施形態の積層体を半導体ウェハ又は半導体搭載用基板に貼り合わせる方法としては、特に限定されないが、真空加圧式ラミネータを好適に使用することができる。この場合、本実施形態の積層体に対してゴム等の弾性体を介して加圧し、貼り合わせる方法が好ましい。ラミネート条件としては、当業界で一般に使用されている条件であれば、特に限定されないが、例えば、 $50^{\circ}\text{C}\sim 140^{\circ}\text{C}$ の温度、 $1\text{kgf}/\text{cm}^2\sim 11\text{kgf}/\text{cm}^2$ の範囲の接触圧力、並びに 20hPa 以下の雰囲気減圧下で行われる。ラミネート工程の後に、金属板による熱プレスにより、貼り合わされた積層体の平滑化を行ってもよい。ラミネート工程、及び平滑化工程は、市販されている真空加圧式ラミネータによって連続的に行うことができる。半導体ウェハ又は半導体搭載用基板に貼り付けられた積層体は、いずれの場合もチップのフリップチップ実装前までに支持基材の除去が行われる。

[0264] [半導体装置]

本実施形態の半導体装置は、本実施形態の樹脂組成物層付き半導体ウェハ、及び／又は本実施形態の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板を備える。本実施形態の半導体装置を製造する方法は、特に限定されないが、例えば、本実施形態の樹脂組成物層付き半導体ウェハを研削等の手段で薄化、及びダイシングソー等による個片化を行い、樹脂組成物層付きチップとし、これを半導体搭載用基板に搭載する手法が挙げられる。また、本実施形態の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板に、チップを搭載してもよい。樹脂組成物層付きチップを半導体搭載用基板に搭載する方法、及び半導体チップを樹脂組成物層付き半導体搭載用基板に搭載する方法では、熱圧着工法に対応したフリップチップボンダを好適に使用することができる。また、本実施形態ではチップを半導体搭載用基板にフリップチップ実装する場合を便宜的に説明しているが、チップをフリップチップ実装しつつ、本実施形態の樹脂組成物を適用する対象は、半導体搭載用基板以外とすることも可能である。例えば、本実施形態の樹脂組成物は、半導体ウェハ上へチップを搭載する際の半導体ウェ

ハとチップとの接合部や、TSV (Through Silicon Via) 等を経由してチップ間接続を行うチップ積層体の、各チップ間の接合部に使用することも可能であり、いずれの場合も本発明の効果を得ることができる。

実施例

[0265] 以下、本実施形態を実施例及び比較例を用いてより具体的に説明する。本実施形態は、以下の実施例によって何ら限定されるものではない。

[0266] [樹脂組成物及び積層体の作製]

(実施例1)

ビスマレイミド化合物 (A) として、MIZ-001 (日本化薬 (株) 製、(商品名)、式 (27) で表されるマレイミド化合物であり、式 (27) 中の a が 1 ~ 6 (整数) の混合物である) 33.3 質量部、ラジカル重合性樹脂又は化合物 (B) として、ビス-(3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタン (BMI-70 (商品名)、ケイ・アイ化成 (株) 製) のメチルエチルケトン (MEK) 溶液 (不揮発分 50 質量%) 13.4 質量部 (不揮発分換算で 6.7 質量部)、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン (BMI-80 (商品名)、ケイ・アイ化成 (株) 製) の MEK 溶液 (不揮発分 50 質量%) 8.0 質量部 (不揮発分換算で 4.0 質量部)、式 (2) で表されるノボラック型マレイミド化合物 (BMI-2300 (商品名)、大和化成工業社製、不飽和イミド基当量 186 g / eq.) 2.7 質量部、式 (5) で表されるマレイミド化合物 (MIR-3000-70MT (商品名)、日本化薬 (株) 製、不揮発分 70 質量%) 76.2 質量部 (不揮発分換算で 53.3 質量部)、熱硬化性化合物 (F) として、P-d 型ベンゾオキサジン (四国化成工業 (株) 製) の MEK 溶液 (不揮発分 50 質量%) 66.6 質量部 (不揮発分換算で 33.3 質量部)、フラックス機能を有する化合物 (H) として、ロジン変性マレイン酸樹脂 (マルキード No 32 (商品名)、荒川化学工業 (株) 製) の MEK 溶液 (不揮発分 100 質量%) 26.7 質量部、無機充填材 (G) として、

スラリーシリカ（Y A O 5 0 C - M J E（商品名）、固形分50質量%、平均粒子径：50nm、（株）アドマテックス製）266.6質量部（不揮発分換算で133.3質量部）、熱ラジカル重合開始剤（D）として、ビス（1-メチル-1-フェニルエチル）ペルオキシド（ジクミルパーオキサイド、キシダ化学(株)製、10時間半減期温度：116.4℃）1.5質量部、イミダゾール化合物（E）として、2-エチル-4-メチルイミダゾール（2E4MZ、四国化成工業(株)製）4.0質量部を混合し、高速攪拌装置を用いて40分間攪拌して、ワニスを得た（MEK量：202.8質量部）。このワニスを、表面に離型剤をコートした厚さ38 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルム（TR1-38（商品名、支持基材）、ユニチカ（株）製）に塗布し、1気圧下、100℃で5分間加熱乾燥して、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0267] （実施例2）

式（5）で表されるマレイミド化合物（MIR-3000-70MT（商品名））76.2質量部（不揮発分換算で53.3質量部）を57.1質量部（不揮発分換算で40.0質量部）に変更し、ビスマレイミド化合物（A）（MIZ-001（商品名））33.3質量部を46.6質量部に変更した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0268] （実施例3）

式（5）で表されるマレイミド化合物（MIR-3000-70MT（商品名））76.2質量部（不揮発分換算で53.3質量部）を38.1質量部（不揮発分換算で26.7質量部）に変更し、ビスマレイミド化合物（A）（MIZ-001（商品名））33.3質量部を59.9質量部に変更した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0269] (実施例4)

式(5)で表されるマレイミド化合物(MIR-3000-70MT(商品名))を配合せず、ビスマレイミド化合物(A)(MIZ-001(商品名))33.3質量部を86.6質量部に変更した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0270] (実施例5)

式(5)で表されるマレイミド化合物(MIR-3000-70MT(商品名))76.2質量部(不揮発分換算で53.3質量部)を109.6質量部(不揮発分換算で76.7質量部)に変更し、ビスマレイミド化合物(A)(MIZ-001(商品名))33.3質量部を9.9質量部に変更した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0271] (実施例6)

式(5)で表されるマレイミド化合物(MIR-3000-70MT(商品名))76.2質量部(不揮発分換算で53.3質量部)を23.9質量部(不揮発分換算で16.7質量部)に変更し、ビスマレイミド化合物(A)(MIZ-001(商品名))33.3質量部を69.9質量部に変更した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

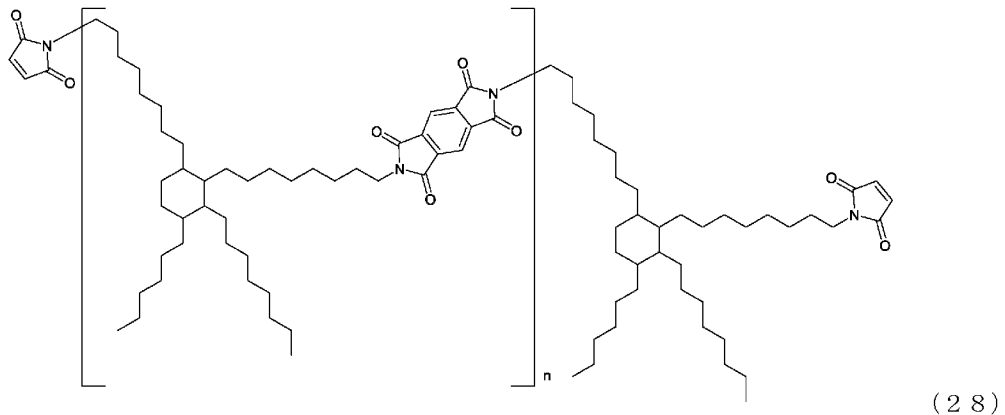
[0272] (比較例1)

ビスマレイミド化合物(A)(MIZ-001(商品名))33.3質量部の代わりに、式(3)で表されるマレイミド化合物(BMI-1000P(商品名)、ケイ・アイ化成(株)製)33.3質量部を配合した以外は、実施例1と同様にしてワニスを調製した。このワニスを用いて、実施例1と同様にして、樹脂組成物層の厚さが30 μ mである積層体を得た。

[0273] (比較例2)

ビスマレイミド化合物(A) (MIZ-001 (商品名)) 33.3質量部の代わりに、式(28)で表されるビスマレイミド化合物(BMI-3000 (商品名)、Designer Molecules inc製、nが1~20の範囲にある混合物) 33.3質量部を配合した以外は、実施例1と同様にして配合し、ワニスを作製した。その後、実施例1と同様にして、積層体を作製しようとしたが、ワニス粘度が高く、成形性が悪いために、均一な厚さの樹脂組成物層を有する積層体を成形できなかった。

[0274] [化69]



[0275] [積層体の評価]

(1) タック性

実施例1で得られた積層体を幅2.5cm×長さ5cmに切り出し、サンプルを作製した。室温にて、このサンプルの樹脂組成物層の面に対して、SUS製の錘(底面積10cm²(=2cm×5cm)、重量500g、(株)村上衡器社製)を30秒間乗せ、その後、錘を持ち上げた際に、張り付きがない場合をA(タック性なし)と評価し、張り付いた場合をC(タック性あり)と評価した。実施例2~6及び比較例1で得られた積層体に対しても、同様にサンプルを作成し、タック性を評価した。それらの結果を表1に示す。

[0276] (2) 透過率

実施例1で得られた積層体を幅5cm×長さ5cmに切り出し、サンプル

を作製した。このサンプルの624 nmでの透過率を、分光色彩計（SD6000（商品名）、日本分光(株)製）にて、室温下で測定した。624 nmでの透過率が80%以上の場合をAとし、80%未満の場合をBとした。また、実施例2～6及び比較例1で得られた積層体に対しても、同様にサンプルを作成し、透過率を評価した。それらの結果を表1に示す。透過率が80%以上であると、積層体を張り付けた基板、及び半導体チップにおけるアライメントマークを読み取ることが可能となり、積層する際の位置合わせが可能な積層体を得られる。

[0277] (3) ボイド

実施例1で得られた積層体を8 mm×8 mmの正方形に切断し、半導体搭載用基板（（株）ウォルツ製WALTS-KIT MB50-0102JY（商品名））のパッド部分における15 μmの銅回路面に対して、切断後の積層体における樹脂組成物層を積層し、ラミネートした。その後、積層体におけるポリエチレンテレフタレートフィルムを剥離した。その後、フリップチップボンダ（LFB-2301（商品名）、（株）新川製）を用いて、ステージ温度70℃、ボンドヘッド温度260℃、荷重50 N、及び時間6秒の条件で、銅とはんだで構成されるCuピラーを電極に持つ半導体チップ上に、剥離面の樹脂組成物層を熱圧着し、実装を行った。実装後のサンプル（半導体チップ／樹脂組成物層／評価用基板）を超音波精密探傷画像処理装置（μ-SDS（商品名）、（株）KJTD製）を用いて、半導体チップ実装部の範囲における樹脂組成物層のボイドの有無を確認した。ボイドの割合が、半導体チップ実装部の範囲における樹脂組成物層全体に対して、10%未満の場合をAとし、10%以上30%未満を場合Bとし、30%以上の場合をCとして、評価した。また、実施例2～6及び比較例1で得られた積層体に対しても、同様にサンプルを作成し、ボイドの割合を評価した。それらの結果を表1に示す。ボイドの割合が10%未満であると、絶縁信頼性が高い積層体を得られる。

[0278] (4) チップ接着性

実施例1で得られた積層体を8mm×8mmの正方形に切断し、半導体搭載用基板（（株）ウォルツ製WALTS-KIT MB50-0102JY（商品名））の패드部分における15μmの銅回路面に対して、切断後の積層体における樹脂組成物層を積層し、ラミネートした。その後、積層体におけるポリエチレンテレフタレートフィルムを剥離した。その後、フリップチップボンダ（LFB-2301（商品名）、（株）新川製）を用いて、ステージ温度70℃、ボンドヘッド温度260℃、荷重50N、及び時間6秒の条件で、銅とはんだで構成されるCuピラーを電極に持つ半導体チップ上に、剥離面の樹脂組成物層を熱圧着し、実装を行った。実装後のサンプル（半導体チップ／樹脂組成物層／評価用基板）の中央部の断面を切り出し、走査型電子顕微鏡（JCM-6000Plus（商品名）、日本電子（株）製）を用いて、その断面において、半導体チップと樹脂組成物層との界面における剥離を確認した。剥離の割合が、半導体チップと樹脂組成物層との界面全体に対して、1%未満の場合をAとし、1%以上20%未満の場合をBとして、20%以上の場合をCとして、評価した。また、実施例2～6及び比較例1で得られた積層体に対しても、同様にサンプルを作成し、剥離の割合を評価した。それらの結果を表1に示す。剥離の割合が1%未満であると、絶縁信頼性が高い積層体が得られる。

[0279] （5）可撓性評価

実施例1で得られた積層体を幅10mm×長さ20cmに切り出し、サンプルを作製した。室温において、このサンプルの支持基材（ポリエチレンテレフタレートフィルム）が内側になるように、外径が20mmのステンレス製丸棒（ステンレス丸棒、（株）エスコ製）に巻きつけ、10秒間保持した後、巻き戻して、サンプルを広げた。この操作を10回繰り返した後、サンプルの樹脂組成物層のクラックの有無を目視で確認し、可撓性の評価を行った。クラックの発生が全く認められない場合をA（屈曲性良好）、クラックの発生が一部に認められる場合をB、全面にクラックが認められる場合をCとした。また、実施例2～6及び比較例1で得られた積層体に対しても、同

様にサンプルを作成し、可撓性を評価した。それらの結果を表1に示す。

[0280] [表1]

評価	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1
タック性	A	A	A	A	A	A	C
透過率	A	A	A	A	A	A	A
ポイド	A	A	A	B	B	A	C
チップ接着性	A	A	A	A	B	A	C
可撓性評価	A	A	A	B	A	A	C

[0281] 本出願は、2019年6月28日出願の日本特許出願（特願2019-122395）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0282] 本実施形態の樹脂組成物は、低ポイド性、チップ接着性、タック性、透過性、及びフラックス活性のバランスに優れることから、樹脂シート、積層体、半導体ウェハ、半導体搭載用基板、及び半導体装置の材料として好適に用いられ、特に、アンダーフィル材として好適であり、プリアプライドアンダーフィル材としてより好適である。また、本実施形態の樹脂組成物は、フラックス活性に優れることから、チップと基板との接合、チップと半導体ウェハとの接合、チップとチップとの接合によって得られる積層体において、長期的な使用にも耐え得る高い信頼性を付与することができる。

請求の範囲

[請求項1] 下記式（１）で表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基と、を含む、ビスマレイミド化合物（Ａ）と、

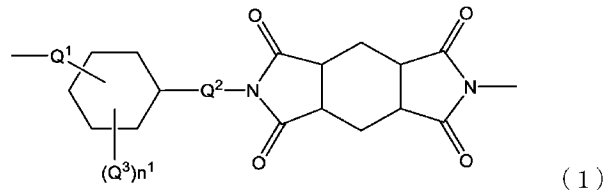
前記ビスマレイミド化合物（Ａ）以外の、ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）と、

硬化促進剤（Ｃ）と、

を含み、

前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）が、シトラコンイミド基、ビニル基、マレイミド基、（メタ）アクリロイル基、及びアリル基から選ばれる少なくとも１種を含む、樹脂組成物。

[化1]



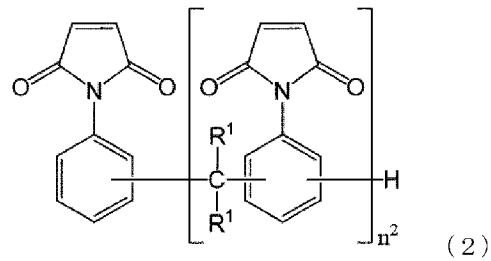
（式（１）中、 Q^1 は、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。 Q^2 は、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキレン基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニレン基を示す。 Q^3 は、各々独立に、水素原子、炭素数１～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基、又は炭素数２～１６の直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基を示す。 n^1 は、各々独立に、１～１０の整数を示す。）。

[請求項2] 前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）が、マレイミド基を含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項3] 前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）が、２，２－ビス〔４－（４－マレイミドフェノキシ）フェニル〕プロパン、下記式（２）で表されるマレイミド化合物、下記式（３）で表されるマレイミド化合物、下記式（４）で表されるマレイミド化合物、下記式（５）で表さ

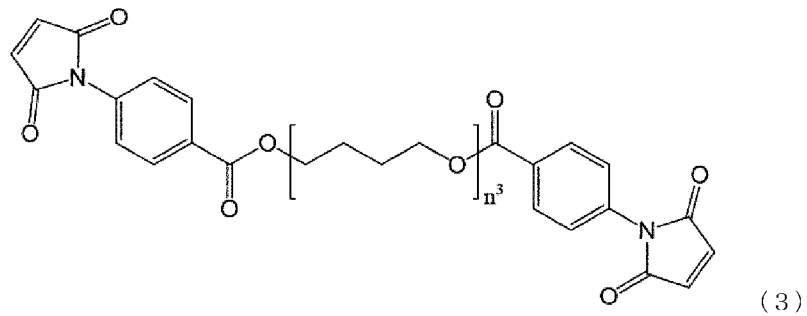
れるマレイミド化合物、下記式（6）で表される化合物、下記式（7）で表される化合物、下記式（10）で表される化合物、下記式（11）で表される化合物、下記式（12）で表される化合物、及び下記式（13）で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

[化2]



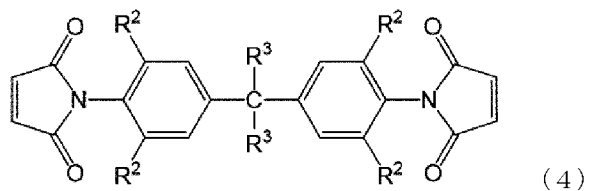
（式（2）中、R¹は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、n²は1～10の整数を示す。）。

[化3]



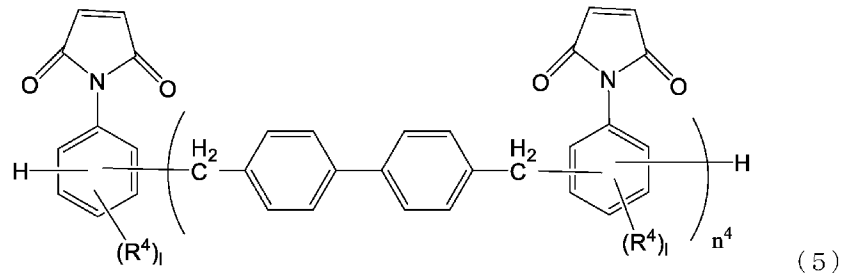
（式（3）中、n³は、1～30の整数を示す。）。

[化4]



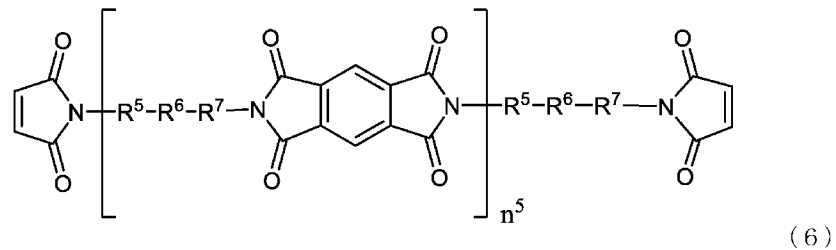
（式（4）中、R²は、各々独立に、水素原子、メチル基、又はエチル基を示し、R³は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示す。）。

[化5]



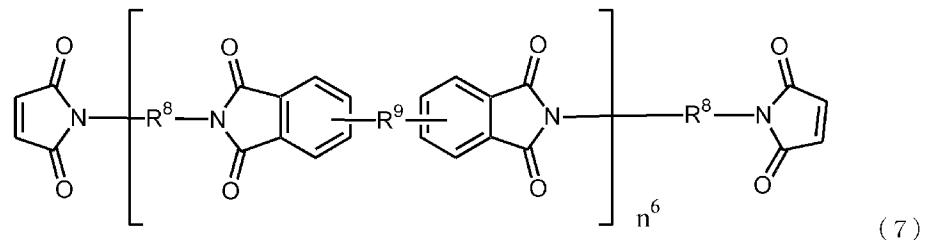
(式(5)中、 R^4 は、各々独立に、水素原子、炭素数1～5のアルキル基、又はフェニル基を示し、 l は、各々独立に、1～3の整数を示し、 n^4 は、1～10の整数を示す。)

[化6]



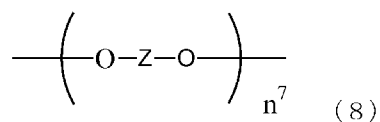
(式(6)中、 R^5 及び R^7 は、各々独立に、8以上の原子が直鎖状に連結した炭化水素基を示し、 R^6 は、各々独立に、置換又は非置換の、環を構成する原子数が4～10のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基を示し、 n^5 は、1～10の整数を示す。)

[化7]



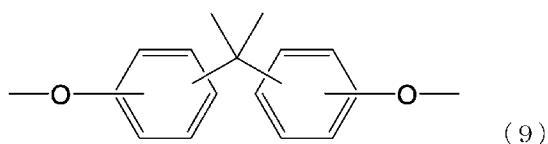
(式(7)中、 R^8 は、各々独立に、アルキレン基を示し、 R^9 は、各々独立に、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、下記式(9)で表される基、酸素原子、又は単結合を示し、 n^6 は、1～10の整数を示す。)

[化8]

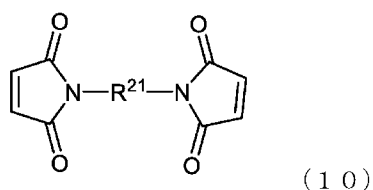


(式(8)中、Zは、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6～30の炭化水素基であり、 n^7 は、0～5の整数を示す。)

[化9]

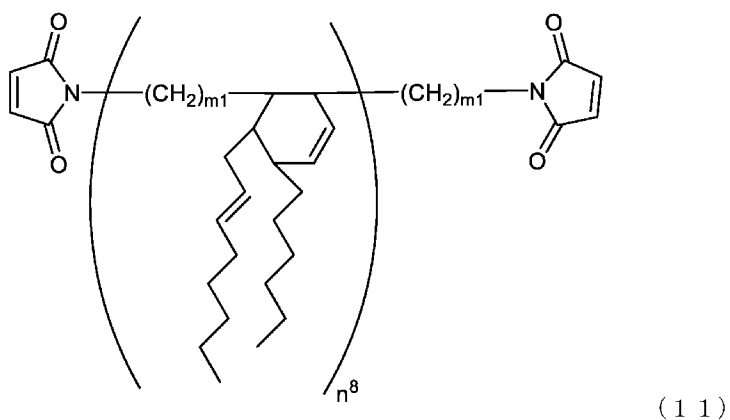


[化10]



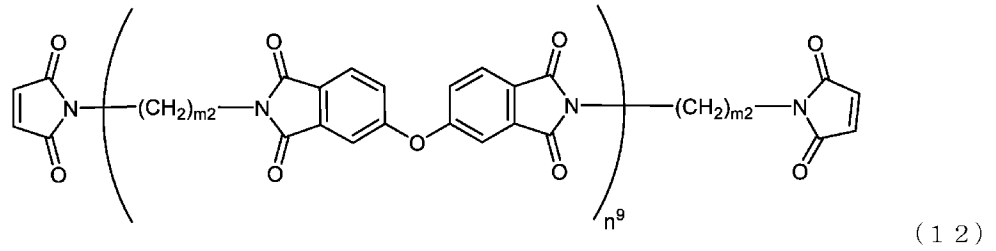
(式(10)中、 R^{21} は、炭素原子数1～40の直鎖状又は分岐状のアルキレン基、環を構成する炭素数が3～20のヘテロ原子を含んでもよい環状炭化水素基、酸素原子、式「-NH-」で表される基、硫黄原子、及び式「-SO₂-」で表される基から選ばれる少なくとも1種を示す。)

[化11]



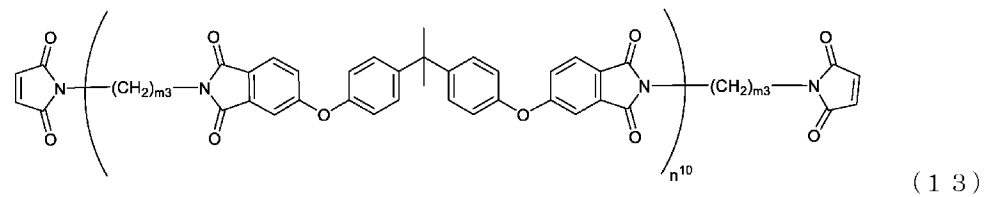
(式(11)中、 n^8 は、1～10の整数を示し、 m_1 は、8～40の整数を示す。)

[化12]



(式(12)中、 n^9 は、1～10の整数を示し、 m_2 は、8～40の整数を示す。)

[化13]



(式(13)中、 n^{10} は、1～10の整数を示し、 m_3 は、8～40の整数を示す。)

[請求項4] 前記硬化促進剤(C)が、熱ラジカル重合開始剤(D)及びイミダゾール化合物(E)から選ばれる少なくとも1種を含む、請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項5] 前記熱ラジカル重合開始剤(D)の10時間半減期温度が、100℃以上である、請求項4に記載の樹脂組成物。

[請求項6] 前記熱ラジカル重合開始剤(D)が、有機過酸化物を含む、請求項4又は5に記載の樹脂組成物。

[請求項7] 前記熱ラジカル重合開始剤(D)が、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアルキルパーオキサイド、又はヒドロパーオキサイド骨格を有する、請求項4～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項8] 前記熱ラジカル重合開始剤(D)が、ジクミルパーオキサイド、ジ(2-tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、1,1,3,3-テトラメチルブチルヒドロパーオキサイド、2,5-ジ

メチルー２，５－ビス（*t e r t*－ブチルペルオキシ）ヘキシン－３、及び*t e r t*－ブチルヒドロパーオキサイドから選ばれる少なくとも１種を含む、請求項４～７のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項９] 前記ビスマレイミド化合物（Ａ）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（Ａ）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対して、１質量部～９９質量部である、請求項１～８のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項１０] 前記硬化促進剤（Ｃ）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（Ａ）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対して、０．０５質量部～１０質量部である、請求項１～９のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

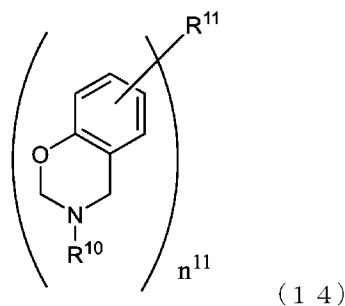
[請求項１１] 前記ビスマレイミド化合物（Ａ）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（Ｂ）以外の、熱硬化性化合物（Ｆ）を更に含む、請求項１～１０のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項１２] 前記熱硬化性化合物（Ｆ）が、４００以上の分子量を有する、請求項１１に記載の樹脂組成物。

[請求項１３] 前記熱硬化性化合物（Ｆ）が、ベンゾオキサジン化合物を含む、請求項１１又は１２に記載の樹脂組成物。

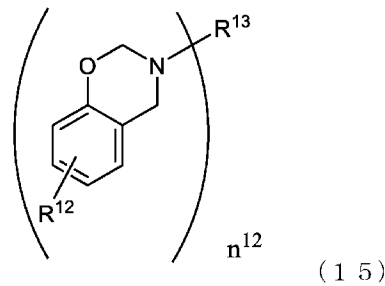
[請求項１４] 前記ベンゾオキサジン化合物が、下記式（１４）で表される化合物、下記式（１５）で表される化合物、下記式（１６）で表される化合物、及び下記式（１７）で表される化合物から選ばれる少なくとも１種を含む、請求項１３に記載の樹脂組成物。

[化１４]



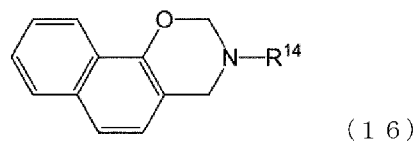
(式(14)中、 R^{10} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^{11} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は下記一般式(a)～(t)で表される1～4価の有機基を示し、 n^{11} は、1～4の整数を示す。)

[化15]



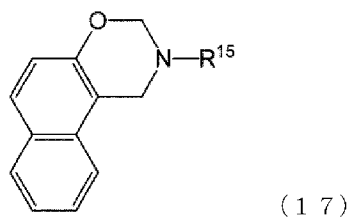
(式(15)中、 R^{12} は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^{13} は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、シクロアルキル基、又は下記一般式(a)～(t)で表される1価～4価の有機基を示し、 n^{12} は、1～4の整数を示す。)

[化16]



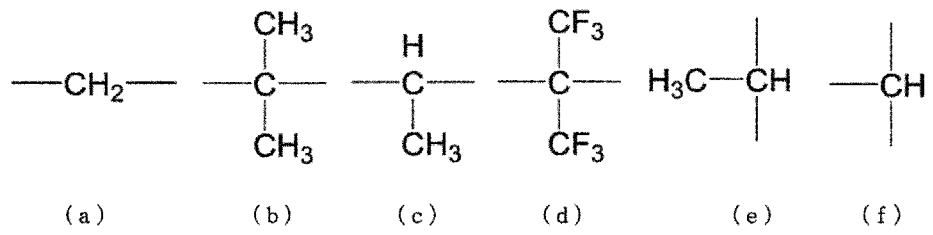
(式(16)中、 R^{14} は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有してよいフェニル基を表す。)

[化17]

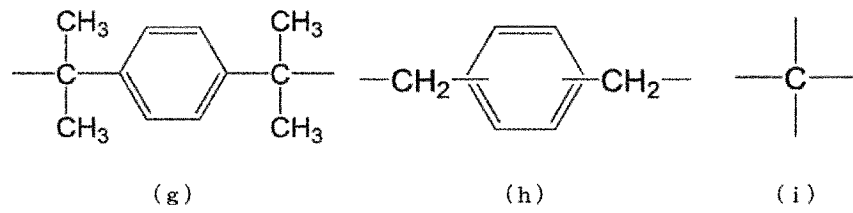


(式(17)中、 R^{15} は、アルキル基、シクロアルキル基、又は置換基を有してよいフェニル基を表す。)

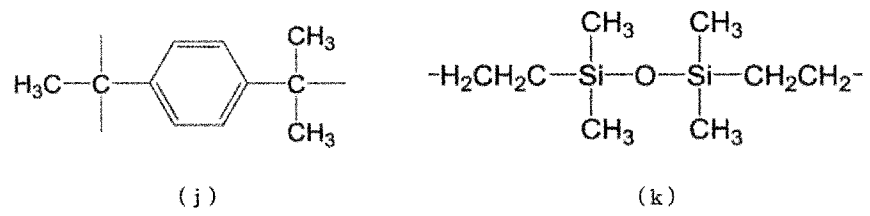
[化18]



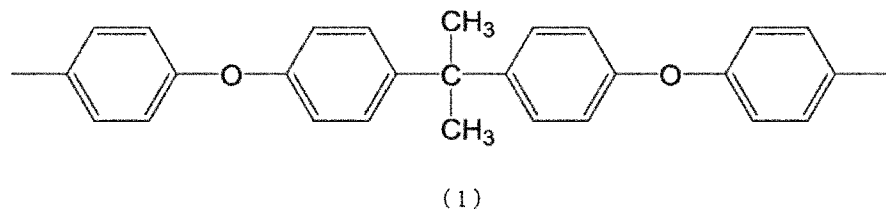
[化19]



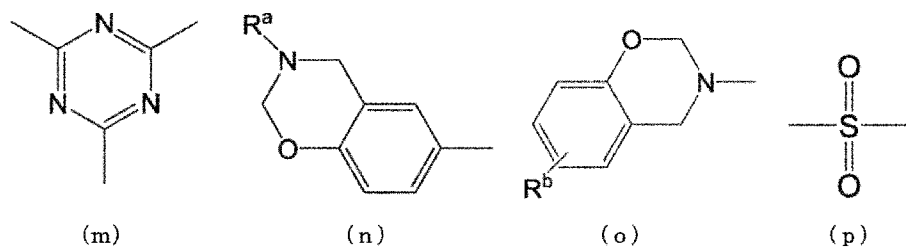
[化20]



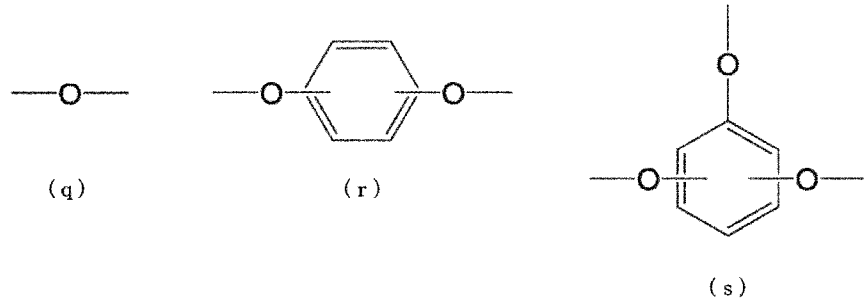
[化21]



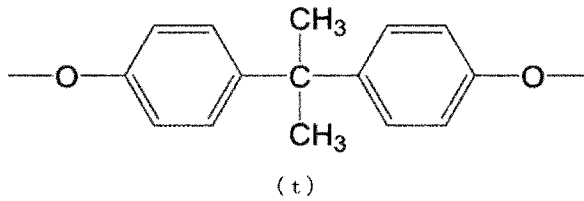
[化22]



[化23]



[化24]

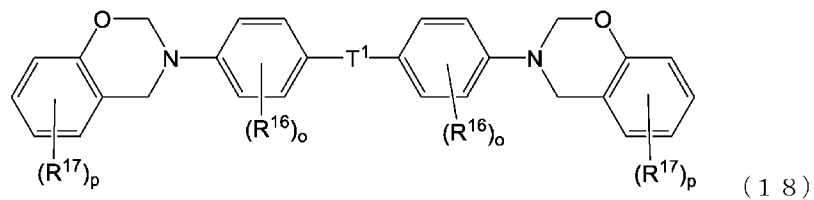


(式 (a) ~ (t) 中、 R^a は、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 R^b は、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示す。)

[請求項15]

前記ベンゾオキサジン化合物が、下記式 (18) で表される化合物、下記式 (19) で表される化合物、及び下記式 (20) で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、請求項13又は14に記載の樹脂組成物。

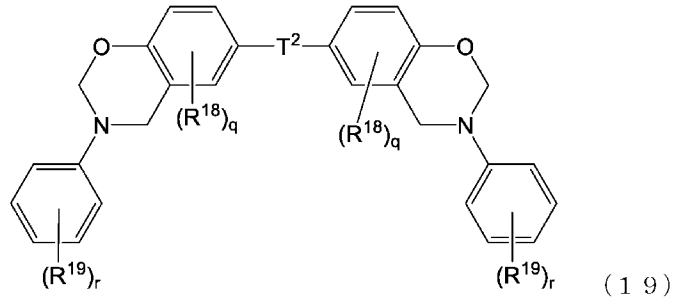
[化25]



(式 (18) 中、 R^{16} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 \circ は、各々独立に、1~4の整数を示し、 R^{17} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 p は、各々独立に、1~4の整数を示

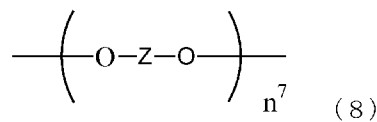
し、 T^1 は、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。))。

[化26]



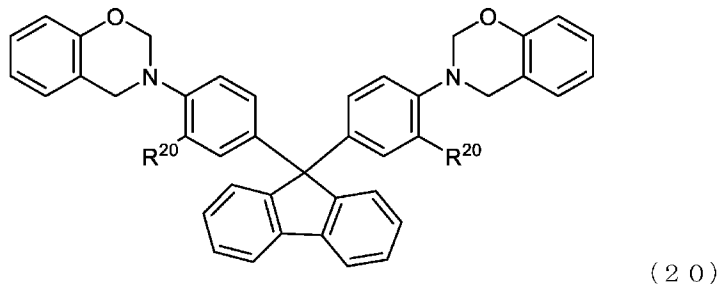
(式(19)中、 R^{18} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 q は、各々独立に、1~3の整数を示し、 R^{19} は、各々独立に、水素原子、アリール基、アラルキル基、アルケニル基、アルキル基、又はシクロアルキル基を示し、 r は、各々独立に、1~5の整数を示し、 T^2 は、アルキレン基、下記式(8)で表される基、式「 $-SO_2-$ 」で表される基、「 $-CO-$ 」で表される基、酸素原子、又は単結合を示す。))。

[化27]



(式(8)中、 Z は、アルキレン基又は芳香族環を有する炭素数6~30の炭化水素基であり、 n^7 は、0~5の整数を示す。))。

[化28]



(式(20)中、 R^{20} は、各々独立に、水素原子、又は炭素数1～4の炭化水素基を示す。)

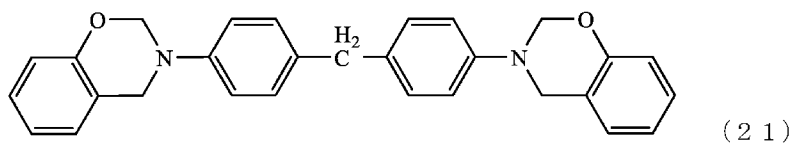
[請求項16]

前記式(18)で表される化合物が、下記式(21)で表される化合物、及び/又は下記式(22)で表される化合物を含み、

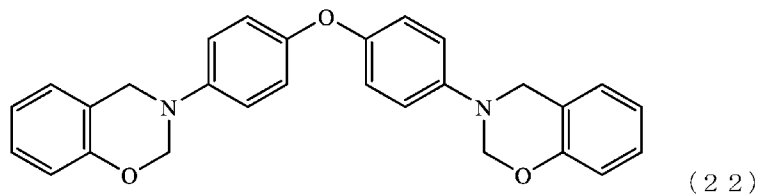
前記式(19)で表される化合物が、下記式(23)で表される化合物、下記式(24)で表される化合物、及び下記式(25)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種を含む、

請求項15に記載の樹脂組成物。

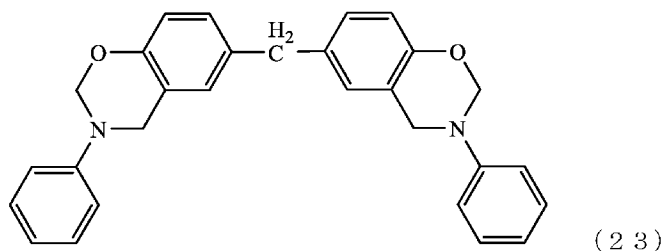
[化29]



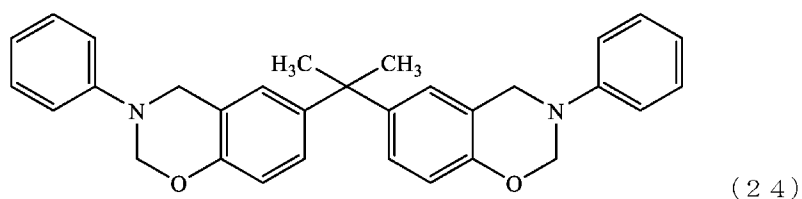
[化30]



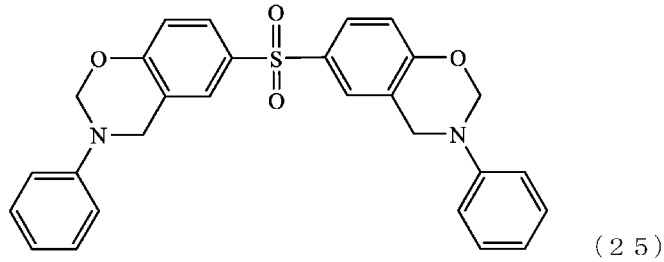
[化31]



[化32]



[化33]



- [請求項17] 前記熱硬化性化合物（F）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～99質量部である、請求項11～16のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項18] 無機充填材（G）を更に含む、請求項1～17のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項19] 前記無機充填材（G）の平均粒子径が、3 μm以下である、請求項18に記載の樹脂組成物。
- [請求項20] 前記無機充填材（G）が、シリカ、水酸化アルミニウム、アルミナ、ベーマイト、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び水酸化マグネシウムから選ばれる少なくとも1種を含む、請求項18又は19に記載の樹脂組成物。
- [請求項21] 前記無機充填材（G）が、シリカである、請求項18～20のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項22] 前記無機充填材（G）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、500質量部以下である、請求項16～19のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項23] フラックス機能を有する有機化合物（H）を更に含む、請求項1～22のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項24] 前記フラックス機能を有する有機化合物（H）の含有量が、前記ビスマレイミド化合物（A）及び前記ラジカル重合性樹脂又は化合物（B）の合計100質量部に対して、1質量部～60質量部である、請

求項 23 に記載の樹脂組成物。

[請求項25] アンダーフィル材用である、請求項 1 ～ 24 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項26] プリアプライドアンダーフィル材用である、請求項 1 ～ 25 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項27] 請求項 1 ～ 26 のいずれか一項に記載の樹脂組成物を含む、樹脂シート。

[請求項28] 支持基材と、
前記支持基材上に積層された請求項 1 ～ 26 のいずれか一項に記載の樹脂組成物を含む層と、
を備える積層体。

[請求項29] 半導体ウェハと、
前記半導体ウェハに積層された請求項 28 に記載の積層体と、を備え、
前記樹脂組成物を含む層が、前記半導体ウェハに積層された、樹脂組成物層付き半導体ウェハ。

[請求項30] 半導体搭載用基板と、
前記半導体搭載用基板に積層された請求項 28 に記載の積層体と、を備え、
前記樹脂組成物を含む層が、前記半導体搭載用基板に積層された、樹脂組成物層付き半導体搭載用基板。

[請求項31] 請求項 29 に記載の樹脂組成物層付き半導体ウェハ、及び／又は請求項 30 に記載の樹脂組成物層付き半導体搭載用基板を備える、半導体装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/025148

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08G 14/12(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08F 222/40(2006.01)i; C08L 35/00(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/36(2006.01)i FI: C08F222/40; C08G14/12; C08L35/00; C08K3/013; C08K3/36; 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) C08G14/12; H01L23/29; H01L23/31; C08F222/40; C08L35/00; C08K3/013; C08K3/36 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 1971-2020 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2018/056466 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 29.03.2018 (2018-03-29) entire text	1-31
A	JP 2003-141936 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 06.05.2003 (2003-05-06) entire text	1-31
A	JP 2011-245675 A (TOYOBO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 08.12.2011 (2011-12-08) entire text	1-31
A	JP 2014-001289 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) 09.01.2014 (2014-01-09) entire text	1-31
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "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 "I" 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 19 August 2020 (19.08.2020)		Date of mailing of the international search report 01 September 2020 (01.09.2020)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/025148

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2018/056466 A1	29 Mar. 2018	US 2019/0281697 A1 CN 109791916 A KR 10-2019-0055182 A	
JP 2003-141936 A	06 May 2003	US 2003/0104232 A1 KR 10-2003-0036097 A CN 1417809 A	
JP 2011-245675 A	08 Dec. 2011	(Family: none)	
JP 2014-001289 A	09 Jan. 2014	(Family: none)	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 14/12(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C08F 222/40(2006.01)i; C08L 35/00(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/36(2006.01)i FI: C08F222/40; C08G14/12; C08L35/00; C08K3/013; C08K3/36; H01L23/30 R</p>										
<p>B. 調査を行った分野</p>										
<p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08G14/12; H01L23/29; H01L23/31; C08F222/40; C08L35/00; C08K3/013; C08K3/36</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 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2020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 - 2020年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2020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 - 2020年									
日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年									
日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年									
<p>国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)</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	WO 2018/056466 A1（日立化成株式会社）29.03.2018（2018-03-29） 全文	1-31								
A	JP 2003-141936 A（三菱瓦斯化学株式会社）06.05.2003（2003-05-06） 全文	1-31								
A	JP 2011-245675 A（東洋紡績株式会社）08.12.2011（2011-12-08） 全文	1-31								
A	JP 2014-001289 A（新日鉄住金化学株式会社）09.01.2014（2014-01-09） 全文	1-31								
<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>										
* 引用文献のカテゴリー	<p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p>									
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	<p>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p>									
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	<p>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p>									
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	<p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>									
“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										
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日									
19.08.2020	01.09.2020									
名称及びあて先	権限のある職員（特許庁審査官）									
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	岸 智之 4J 4427									
	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/JP2020/025148

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2018/056466	A1	29.03.2018	US	2019/0281697	A1	
				CN	109791916	A	
				KR	10-2019-0055182	A	
JP	2003-141936	A	06.05.2003	US	2003/0104232	A1	
				KR	10-2003-0036097	A	
				CN	1417809	A	
JP	2011-245675	A	08.12.2011	(ファミリーなし)			
JP	2014-001289	A	09.01.2014	(ファミリーなし)			