(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2017-145376
(P2017-145376A)
(43)公開日　平成29年8月24日(2017.8.24)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C09J 7/02	(2006.01)	C09J	7/02	Z	4J002
C08K 3/00	(2006.01)	C08K	3/00		4J004
C08G 59/62	(2006.01)	C08G	59/62		4J036
C08L 63/00	(2006.01)	C08L	63/00	C	4J040
C09J 161/06	(2006.01)	C09J	161/06		5E316

審査請求 未請求　請求項の数 1　ＯＬ　（全 44 頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2016-30462(P2016-30462)
(22)出願日　平成28年2月19日(2016.2.19)

(71)出願人　000004455
日立化成株式会社
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号
(74)代理人　100078732
弁理士　大谷　保
(74)代理人　100119666
弁理士　平澤　賢一
(74)代理人　100193976
弁理士　澤山　要介
(72)発明者　伊藤　明子
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号　日立化成株式会社内
(72)発明者　松浦　雅晴
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号　日立化成株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】多層プリント配線板用の接着フィルム

(57)【要約】
【課題】シリカフィラーを高充填化しても凹凸の埋め込み性に優れる多層プリント配線板用の接着フィルムを提供する。
【解決手段】（Ａ１）重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８であるノボラック型フェノール樹脂と、（Ａ２）トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂又はジシアンジアミド由来の構造単位を含有するノボラック型フェノール樹脂と、（Ｂ）エポキシ樹脂と、（Ｃ）無機充填材と、を含む樹脂組成物を、支持体フィルム上に層形成してなる樹脂組成物層を有し、該樹脂組成物層中の（Ｃ）無機充填材の平均粒径が０．１μｍ以上であり、（Ｃ）無機充填材の含有量が、樹脂固形分のうち２０～９５質量％である、多層プリント配線板用の接着フィルム。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
（Ａ１）重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８であるノボラック型フェノール樹脂と、
（Ａ２）トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂又はジシアンジアミド由来の構造単位を含有するノボラック型フェノール樹脂と、
（Ｂ）エポキシ樹脂と、
（Ｃ）無機充填材と、
を含む樹脂組成物を、支持体フィルム上に層形成してなる樹脂組成物層を有し、
該樹脂組成物層中の（Ｃ）無機充填材の平均粒径が０．１μｍ以上であり、
（Ｃ）無機充填材の含有量が、樹脂固形分のうち２０～９５質量％である、多層プリント配線板用の接着フィルムである。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、多層プリント配線板用の接着フィルムに関する。
【背景技術】
【０００２】
近年、電子機器の小型化、軽量化及び多機能化が一段と進み、これに伴って、ＬＳＩ（Ｌａｒｇｅ　Ｓｃａｌｅ　Ｉｎｔｅｇｒａｔｉｏｎ）、チップ部品等の高集積化が進み、その形態も多ピン化及び小型化へと急速に変化している。このため、電子部品の実装密度を向上させるために、多層プリント配線板の微細配線化の開発が進められている。前記要求に合致する多層プリント配線板の製造方法として、プリプレグの代わりにガラスクロスを含まない絶縁樹脂を絶縁層として用い、必要な部分のみをビアホールで接続しながら配線層を形成するビルドアップ構造の多層プリント配線板（以下、「ビルドアップ層」ともいう）が、軽量化、小型化及び微細化に適した手法として主流になりつつある。
【０００３】
加工寸法安定性を高め、かつ半導体実装後の反り量を低減させるために、ビルドアップ層には低熱膨張率化が求められており、そのための取り組みが行われている。その最も主流な方法としてシリカフィラーの高充填化が挙げられ、例えば、ビルドアップ層中の４０質量％以上をシリカフィラーとすることによって、ビルドアップ層の低熱膨張率化が図られている（例えば、特許文献１～３参照）。
【０００４】
一方で、コンピューター及び情報通信機器は近年ますます高性能化及び高機能化し、大量のデータを高速で処理するために、扱う信号が高周波化する傾向にある。特に、携帯電話、衛星放送等に使用される電波の周波数領域は、ＧＨｚ帯の高周波領域のものが使用されており、高周波数化による伝損損失を抑制するために、高周波領域で使用する有機材料として比誘電率及び誘電正接が低い材料が望まれている。多層プリント配線板の絶縁層に使用する樹脂組成物として、シアネート樹脂を含有する樹脂組成物が、誘電特性に優れた絶縁層を形成できることが知られている。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００５】
【特許文献１】特開２００７－８７９８２号公報
【特許文献２】特開２００９－２８０７５８号公報
【特許文献３】特開２００５－３９２４７号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００６】
［１］ビルドアップ層の低ＣＴＥ化を図るためにシリカフィラーを高充填化させると、ビ

ルドアップ材料によって、内層回路の配線パターンの凹凸を埋め込むことが難しくなる傾向にある。また、スルーホールのような内層回路を、ビルドアップ材料によって凹凸が小さくなるように埋め込むことが要求されている。ビルドアップ材料の低ＣＴＥ化を図るためにシリカフィラーを高充填化すると、これらの要求を満たすことが難しくなる傾向にある。

【０００７】

第１の発明は、このような課題を解決するためになされたものであり、シリカフィラーを高充填化しても凹凸の埋め込み性に優れる多層プリント配線板用の接着フィルムを提供することを目的とする。

【０００８】

［２］シアネート樹脂を含有する樹脂組成物を層間絶縁層の材料として用いた場合、耐熱性及び保存安定性が必ずしも満足のいくものとはならなかった。また、層間絶縁層を形成する材料は、レーザー等でビアホールを形成する際に生じるスミア（樹脂残渣）が、後のデスミア処理で容易に除去できること（スミア除去性に優れること）が望まれている。

【０００９】

第２の発明は、このような課題を解決するためになされたものであり、保存安定性に優れ、得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性に優れる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いた層間絶縁層用樹脂フィルム及び多層プリント配線板を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【００１０】

［１］本発明者らは、前記第１の課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、特定のノボラック型フェノール樹脂と、エポキシ樹脂と、特定の無機充填材とを含む樹脂組成物を用いることにより、前記第１の課題を解決できることを見出し、本発明を完成させるに至った。すなわち、第１の発明は次の接着フィルムを提供する。

【００１１】

（１）（Ａ１）重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８であるノボラック型フェノール樹脂と、（Ａ２）トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂又はジシアンジアミド由来の構造単位を含有するノボラック型フェノール樹脂と、（Ｂ）エポキシ樹脂と、（Ｃ）無機充填材と、を含む樹脂組成物を、支持体フィルム上に層形成してなる樹脂組成物層を有し、該樹脂組成物層中の（Ｃ）無機充填材の平均粒径が０．１μｍ以上であり、（Ｃ）無機充填材の含有量が、樹脂固形分のうち２０～９５質量％である、多層プリント配線板用の接着フィルム。

【００１２】

［２］本発明者らは、前記第２の課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、特定の樹脂を含有する樹脂組成物において、エポキシシシランカップリング剤及びビニルシランカップリング剤から選ばれる１種以上のシランカップリング剤で表面処理されたシリカを配合することにより、前記課題を解決できることを見出し、本発明を完成させるに至った。すなわち、第２の発明は、次の（２）～（１１）を提供する。

【００１３】

（２）（ａ）エポキシ樹脂、（ｂ）シアネート樹脂、（ｃ）活性エステル硬化剤、（ｄ）フェノキシ樹脂及び（ｅ）シリカを含有し、（ｅ）シリカが、エポキシシシランカップリング剤及びビニルシランカップリング剤から選ばれる１種以上のシランカップリング剤で表面処理されたものである、樹脂組成物。

（３）（ｅ）シリカの体積平均粒径が、０．０５～１０μｍである、上記（２）に記載の樹脂組成物。

（４）（ｅ）シリカの含有量が、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、５０～５００質量部である、上記（２）又は（３）に記載の樹脂組成物。

（５）（ｅ）シリカが、エポキシシシランカップリング剤で表面処理されたシリカと、ビニルシランカップリング剤で表面処理されたシリカとを含有するものである、上記（２）～

（４）のいずれかに記載の樹脂組成物。
（６）さらに、（ｆ）硬化促進剤を含有する、上記（２）～（５）のいずれかに記載の樹脂組成物。
（７）（ｆ）硬化促進剤が、イミダゾール化合物及び有機金属塩から選ばれる１種以上である、上記（６）に記載の樹脂組成物。
（８）上記（２）～（７）のいずれかに記載の樹脂組成物を含有する、層間絶縁層用樹脂フィルム。
（９）さらに、支持体を有する、上記（８）に記載の層間絶縁層用樹脂フィルム。
（１０）接着補助層を介して支持体を有する、上記（９）に記載の層間絶縁層用樹脂フィルム。
（１１）上記（２）～（７）のいずれかに記載の樹脂組成物の硬化物又は上記（８）～（１０）のいずれかに記載の層間絶縁層用樹脂フィルムの硬化物を含む、多層プリント配線板。

【発明の効果】

【００１４】
［１］第１の発明によれば、シリカフィラーを高充填化しても凹凸の埋め込み性に優れた多層プリント配線板用の接着フィルムを提供することができる。

【００１５】
［２］第２の発明によれば、保存安定性に優れ、得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性に優れる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いた層間絶縁層用樹脂フィルム及び多層プリント配線板を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【００１６】
［１］第１の発明
本発明の多層プリント配線板用の接着フィルムは、（Ａ１）重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８であるノボラック型フェノール樹脂（以下、単に「（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂」ともいう）と、（Ａ２）トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂又はジシアンジアミド由来の構造単位を含有するノボラック型フェノール樹脂（以下、単に「（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂」ともいう）と、（Ｂ）エポキシ樹脂と、（Ｃ）無機充填材と、を含む樹脂組成物（以下、「接着フィルム用樹脂組成物」ともいう）を、支持体フィルム上に層形成してなる樹脂組成物層を有し、該樹脂組成物層中の（Ｃ）無機充填材の平均粒径が０．１μｍ以上であり、（Ｃ）無機充填材の含有量が、樹脂固形分のうち２０～９５質量％である、多層プリント配線板用の接着フィルムである。

【００１７】
［接着フィルム用樹脂組成物］
接着フィルム用樹脂組成物は、（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂と、（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂と、（Ｂ）エポキシ樹脂と、（Ｃ）無機充填材とを含むものである。以下、これらの各成分について説明する。

【００１８】
＜（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂＞
（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂は、エポキシ樹脂の硬化剤として用いられるものであり、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８の範囲のものである。

【００１９】
このような（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂は、例えば、特許第４２８３７７３号公報に記載の製造方法により製造することができる。
すなわち、原料としてフェノール化合物及びアルデヒド化合物、酸触媒としてリン酸化合物、反応補助溶媒として非反応性の含酸素有機溶媒を用い、これらから形成される二層分離状態を、例えば、機械的攪拌、超音波等によりかき混ぜ混合して、二層（有機相と水

相）が交じり合った白濁状の不均一反応系（相分離反応）として、フェノール化合物とアルデヒド化合物との反応を進め、縮合物（樹脂）を合成することができる。
次に、例えば、非水溶性有機溶剤（例えば、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等）を添加混合して前記の縮合物を溶解し、かき混ぜ混合を止めて静置し、有機相（有機溶剤相）と水相（リン酸水溶液相）とに分離させ、水相を除去して回収を図る一方、有機相については湯水洗及び／又は中和した後、有機溶剤を蒸留回収することによって（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂を製造することができる。
上記のノボラック型フェノール樹脂の製造方法は、相分離反応を利用しているため、攪拌効率は極めて重要であり、反応系中の両相を微細化して界面の表面積をできる限り増加させることが反応効率の面から望ましく、これによりフェノール化合物の樹脂への転化が促進される。

【００２０】
原料として用いられるフェノール化合物としては、例えば、フェノール、オルソクレゾール、メタクレゾール、パラクレゾール、キシレノール、ビスフェノール化合物、オルソ位に炭素数３以上、好ましくは炭素数３～１０の炭化水素基を有するオルソ置換フェノール化合物、パラ位に炭素数３以上、好ましくは炭素数３～１８の炭化水素基を有するパラ置換フェノール化合物等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。
ここで、ビスフェノール化合物としては、例えば、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビス（２－メチルフェノール）Ａ、ビス（２－メチルフェノール）Ｆ、ビスフェノールＳ、ビスフェノールＥ、ビスフェノールＺ等が挙げられる。
オルソ置換フェノール化合物としては、例えば、２－プロピルフェノール、２－イソプロピルフェノール、２－ｓｅｃ－ブチルフェノール、２－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、２－フェニルフェノール、２－シクロヘキシルフェノール、２－ノニルフェノール、２－ナフチルフェノール等が挙げられる。
パラ置換フェノール化合物としては、例えば、４－プロピルフェノール、４－イソプロピルフェノール、４－ｓｅｃ－ブチルフェノール、４－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、４－フェニルフェノール、４－シクロヘキシルフェノール、４－ノニルフェノール、４－ナフチルフェノール、４－ドデシルフェノール、４－オクタデシルフェノール等が挙げられる。

【００２１】
原料として用いられるアルデヒド化合物としては、例えば、ホルムアルデヒド、ホルマリン、パラホルムアルデヒド、トリオキサン、アセトアルデヒド、パラアルデヒド、プロピオンアルデヒド等が挙げられる。これらの中でも、反応速度の観点から、パラホルムアルデヒドが好ましい。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００２２】
アルデヒド化合物（Ｆ）とフェノール化合物（Ｐ）との配合モル比（Ｆ／Ｐ）は、好ましくは０．３３以上、より好ましくは０．４０～１．０、さらに好ましくは０．５０～０．９０である。配合モル比（Ｆ／Ｐ）を前記範囲内とすることにより、優れた収率を得ることができる。

【００２３】
酸触媒として用いるリン酸化合物は、水の存在下、フェノール化合物との間で相分離反応の場を形成する重要な役割を果たすものである。リン酸化合物としては、例えば、８９質量％リン酸、７５質量％リン酸等の水溶液タイプを用いることができる。また、必要に応じて、例えば、ポリリン酸、無水リン酸等を用いてもよい。
リン酸化合物の含有量は、相分離効果を制御する観点から、例えば、フェノール化合物１００質量部に対して、５質量部以上、好ましくは２５質量部以上、より好ましくは５０～１００質量部である。なお、７０質量部以上のリン酸化合物を使用する場合には、反応系への分割投入により、反応初期の発熱を抑えて安全性を確保することが好ましい。

【００２４】

反応補助溶媒としての非反応性含酸素有機溶媒は、相分離反応の促進に極めて重要な役割を果たすものである。反応補助溶媒としては、アルコール化合物、多価アルコール系エーテル、環状エーテル化合物、多価アルコール系エステル、ケトン化合物、スルホキシド化合物からなる群から選ばれる少なくとも一種の化合物を用いることが好ましい。

アルコール化合物としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール等の一価アルコール、ブタンジオール、ペンタンジオール、ヘキサンジオール、エチレングリコール、プロピレングリコール、トリメチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリエチレングリコール、トリプロピレングリコール、ポリエチレングリコール等の二価アルコール、グリセリン等の三価アルコールなどが挙げられる。

多価アルコール系エーテルとしては、例えば、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノプロピルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノペンチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールエチルメチルエーテル、エチレングリコールグリコールエーテル等が挙げられる。

環状エーテル化合物としては、例えば、１，３－ジオキサン、１，４－ジオキサン等が挙げられ、多価アルコール系エステルとしては、例えば、エチレングリコールアセテート等のグリコールエステル化合物などが挙げられる。ケトン化合物としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン（以下、「ＭＥＫ」ともいう）、メチルイソブチルケトン等が挙げられ、スルホキシド化合物としては、例えば、ジメチルスルホキシド、ジエチルスルホキド等が挙げられる。

これらの中でも、エチレングリコールモノメチルエーテル、ポリエチレングリコール、１，４－ジオキサンが好ましい。

反応補助溶媒は、上記の例示に限定されず、上記の特質を有し、かつ反応時に液状を呈するものであれば、固体であってもよく、それぞれ単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

反応補助溶媒の配合量としては、特に限定されないが、例えば、フェノール化合物１００質量部に対して、５質量部以上、好ましくは１０～２００質量部である。

【００２５】

前記不均一反応工程中に、さらに、界面活性剤を用いることによって、相分離反応を促進し、反応時間を短縮することが可能となり、収率向上にも寄与できる。

界面活性剤としては、例えば、石鹸、アルファオレフィンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキルエーテル硫酸エステル塩、フェニルエーテルエステル塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、エーテルスルホン酸塩、エーテルカルボン酸塩等のアニオン系界面活性剤；ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンスチレン化フェノールエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアミノエーテル、ポリエチレングリコール脂肪族エステル、脂肪族モノグリセライド、ソルビタン脂肪族エステル、ペンタエリストール脂肪族エステル、ポリオキシエチレンポリプロピレングリコール、脂肪族アルキロールアマイド等のノニオン系界面活性剤；モノアルキルアンモニウムクロライド、ジアルキルアンモニウムクロライド、アミン酸塩化合物等のカチオン系界面活性剤などが挙げられる。

界面活性剤の配合量は、特に限定されないが、例えば、フェノール化合物１００質量部に対して、０．５質量部以上、好ましくは１～１０質量部である。

【００２６】

反応系中の水の量は相分離効果、生産効率に影響を与えるが、一般的には質量基準で、４０質量％以下である。水の量を４０質量％以下とすることにより、生産効率を良好に保つことができる。

【００２７】

フェノール化合物とアルデヒド化合物との反応温度は、フェノール化合物の種類、反応条件等によって異なり、特に限定されないが、一般的には４０℃以上、好ましくは８０℃

～還流温度、より好ましくは還流温度である。反応温度が４０℃以上であると、十分な反応速度が得られる。

反応時間は、反応温度、リン酸の配合量、反応系中の含水量等によって異なるが、一般的には１～１０時間程度である。

【００２８】

また、反応環境としては、通常は常圧であるが、本発明の特長である不均一反応を維持する観点からは、加圧下又は減圧下で反応を行ってもよい。例えば、０．０３～１．５０ＭＰａの加圧下においては、反応速度を上げることができ、さらに、反応補助溶媒としてメタノール等の低沸点溶媒の使用が可能となる。

【００２９】

前記（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂の製造方法により、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８であるノボラック型フェノール樹脂を製造することができる。

フェノール化合物の種類によって異なるものの、アルデヒド化合物（Ｆ）とフェノール化合物（Ｐ）の配合モル比（Ｆ／Ｐ）の範囲によって、例えば、以下のような（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂が得られる。

配合モル比（Ｆ／Ｐ）が０．３３以上０．８０未満の範囲では、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）の面積法による測定法で、フェノール化合物のモノマー成分の含有量が、例えば、３質量％以下、好ましくは１質量％以下であり、フェノール化合物のダイマー成分の含有量が、例えば、５～９５質量％、好ましくは１０～９５質量％であり、さらにＧＰＣ測定による重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との分散比（Ｍｗ／Ｍｎ）が、１．０５～１．８、好ましくは１．１～１．７であるノボラック型フェノール樹脂を高収率で製造することができる。

【００３０】

（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂としては、市販品を使用することができ、例えば、「ＰＡＰＳ－ＰＮ２」（旭有機材工業株式会社製、商品名）、「ＰＡＰＳ－ＰＮ３」（旭有機材工業株式会社製、商品名）等が挙げられる。

【００３１】

＜（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂＞

（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂は、トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂又はジシアンジアミド由来の構造単位を含有するノボラック型フェノール樹脂である。

本発明の接着フィルム用樹脂組成物は、（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂を含有することにより、金属箔の引き剥がし強さ及び化学粗化後の無電解めっきの引き剥がし強さを向上させることができる。

（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂としては、例えば、トリアジン環含有ノボラック型フェノール樹脂である「フェノライトＬＡ－１３５６」（ＤＩＣ株式会社製、商品名）、「フェノライトＬＡ７０５０シリーズ」（ＤＩＣ株式会社製、商品名）等、トリアジン含有クレゾールノボラック樹脂である「フェノライトＬＡ－３０１８」（商品名、ＤＩＣ株式会社製）等が挙げられる。

【００３２】

接着フィルム用樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲において、（Ａ１）及び（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂以外のエポキシ樹脂硬化剤（以下、単に「エポキシ樹脂硬化剤」ともいう）を併用してもよい。

エポキシ樹脂硬化剤としては、例えば、（Ａ１）及び（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂以外の各種フェノール樹脂化合物、酸無水物化合物、アミン化合物、ヒドラジット化合物等が挙げられる。フェノール樹脂化合物としては、例えば、（Ａ１）及び（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂以外のノボラック型フェノール樹脂、レゾール型フェノール樹脂等が挙げられ、酸無水物化合物としては、例えば、無水フタル酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、メチルハイミック酸等が挙げられる。また、アミン化合物として

は、例えば、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、グアニル尿素等が挙げられる。

【００３３】

これらのエポキシ樹脂硬化剤の中でも、信頼性を向上させる観点から、（Ａ１）及び（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂以外のノボラック型フェノール樹脂が好ましい。

（Ａ１）及び（Ａ２）ノボラック型フェノール樹脂以外のノボラック型フェノール樹脂としては、市販品を用いてもよく、例えば、「ＴＤ２０９０」（ＤＩＣ株式会社製、商品名）等のフェノールノボラック樹脂、「ＫＡ－１１６５」（ＤＩＣ株式会社製、商品名）等のクレゾールノボラック樹脂などが挙げられる。

【００３４】

＜（Ｂ）エポキシ樹脂＞

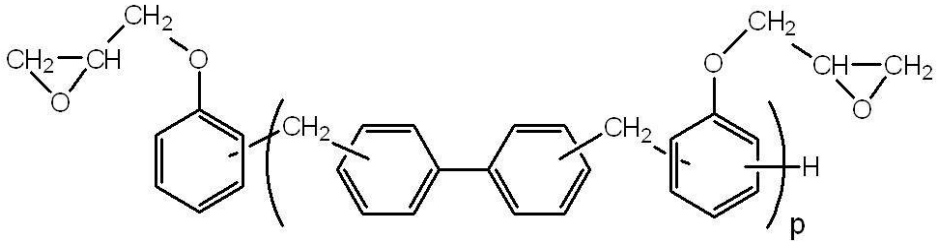
（Ｂ）エポキシ樹脂としては、特に限定されないが、例えば、平均で、１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂を含むことが、ガラス転移温度、及び耐酸又は耐アルカリ等の耐薬品性に優れるため好ましい。

【００３５】

１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、ビフェノール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、アラルキル型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂等が挙げられる。これらの中でも、ビフェニル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂が好ましく、ビフェニル骨格を有するアラルキルノボラック型エポキシ樹脂がより好ましい。ビフェニル構造を有するノボラック型エポキシ樹脂とは、分子中にビフェニル誘導体の芳香族環を含有したアラルキルノボラック型のエポキシ樹脂をいい、例えば、下記式（１）で示されるエポキシ樹脂が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００３６】

【化１】



(1)

【００３７】

（式中、ｐは、１～５の整数を示す。）

【００３８】

（Ｂ）エポキシ樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（Ｂ）エポキシ樹脂としては、例えば、「ＮＣ－３０００」（式（１）におけるｐが１．７であるエポキシ樹脂）、「ＮＣ－３０００－Ｈ」（式（１）におけるｐが２．８であるエポキシ樹脂）（いずれも日本化薬株式会社製、商品名）等が挙げられる。

接着フィルム用樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲において、（Ｂ）エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂、フェノキシ樹脂等の高分子タイプのエポキシ樹脂などを含んでいてもよい。

【００３９】

＜硬化促進剤＞

接着フィルム用樹脂組成物は、（Ａ１）ノボラック型フェノール樹脂と（Ｂ）エポキシ樹脂との反応を速める観点から、硬化促進剤を含んでいてもよい。硬化促進剤としては、例えば、２－フェニルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、１－シアノ

エチル－２－フェニルイミダゾリウムトリメリテート等のイミダゾール化合物；トリフェニルホスフィン等の有機リン化合物；ホスホニウムボレート等のオニウム塩；１，８－ジアザビシクロウンデセン等のアミン類；３－（３，４－ジクロロフェニル）－１，１－ジメチルウレアなどが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００４０】

＜（Ｃ）無機充填材＞

接着フィルム用樹脂組成物は、平均粒径が０．１μｍ以上の（Ｃ）無機充填材を含む。

（Ｃ）無機充填材としては、例えば、シリカ、アルミナ、硫酸バリウム、タルク、クレー、雲母粉、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、ホウ酸アルミニウム、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸カルシウム、チタン酸ビスマス、酸化チタン、ジルコン酸バリウム、ジルコン酸カルシウム等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。これらの中でも、接着フィルムを硬化して形成される層間絶縁層の熱膨張係数を下げる観点から、シリカであることが好ましい。

（Ｃ）無機充填材の形状は、特に限定されないが、内層回路に形成されたスルーホール及び回路パターンの凹凸を埋め込み易くする観点から、球形であることが好ましい。

【００４１】

（Ｃ）無機充填材の平均粒径は０．１μｍ以上であり、優れた埋め込み性を得る観点から、０．２μｍ以上であることが好ましく、０．３μｍ以上であることがより好ましい。

平均粒径が０．１μｍ未満の無機充填材の含有量は、埋め込み性の観点から、固形分で、３ｖｏｌ％以下であることが好ましく、１ｖｏｌ％以下であることがより好ましく、平均粒径が０．１μｍ未満の無機充填材を含有しないことがさらに好ましい。なお、（Ｃ）無機充填材は、１種を単独で用いてもよく、異なる平均粒径のものを混合して使用してもよい。

【００４２】

（Ｃ）無機充填材としては、市販品を用いてもよい。市販品の（Ｃ）無機充填材としては、例えば、球形のシリカである「ＳＯ－Ｃ１」（平均粒径：０．２５μｍ）、「ＳＯ－Ｃ２」（平均粒径：０．５μｍ）、「ＳＯ－Ｃ３」（平均粒径：０．９μｍ）、「ＳＯ－Ｃ５」（平均粒径：１．６μｍ）、「ＳＯ－Ｃ６」（平均粒径：２．２μｍ）（すべて株式会社アドマテックス製）等が挙げられる。

【００４３】

（Ｃ）無機充填材は表面処理を施したものであってもよい。例えば、（Ｃ）無機充填材としてシリカを使用する場合、表面処理として、シランカップリング剤処理を施していてもよい。シランカップリング剤としては、例えば、アミノシランカップリング剤、ビニルシランカップリング剤、エポキシシランカップリング剤等が挙げられる。これらの中でも、アミノシランカップリング剤で表面処理を施したシリカが好ましい。

【００４４】

接着フィルム用樹脂組成物中における（Ｃ）無機充填材の量は次のように定義する。まず、支持体フィルム上に層形成する樹脂組成物を、２００℃で３０分間乾燥し、樹脂組成物に含まれる溶剤を除去して、溶剤を除去した後の重さ（固形分）を測定する。この固形分中に含まれる（Ｃ）無機充填材の量を、樹脂固形分のうちの（Ｃ）無機充填材の量と定義する。

また、（Ｃ）無機充填材の測定方法として、予め配合する（Ｃ）無機充填材の固形分の量を計算しておくと、固形分中の割合を容易に求めることができる。溶剤に分散した（Ｃ）無機充填材（以下、「（Ｃ）無機充填材分散液」ともいう）を使用する場合における計算例を以下に示す。

（Ｃ）無機充填材分散液中における（Ｃ）無機充填材の固形分は、２００℃で３０分間乾燥して計算した結果、７０質量％であった。この（Ｃ）無機充填材分散液４０ｇを用いて樹脂組成物を配合した結果、得られた樹脂組成物の総量は１００ｇであった。１００ｇ

の樹脂組成物を２００℃で３０分乾燥し、乾燥後の固形分の重量を測定した結果６０ｇであった。固形分中に含まれる（Ｃ）無機充填材の量は、４０ｇ×７０質量％＝２８ｇであるため、樹脂固形分のうちの（Ｃ）無機充填材の量は、２８／６０＝４７質量％（４６．６質量％）と求められる。

【００４５】

接着フィルム用樹脂組成物中における（Ｃ）無機充填材の量は、熱硬化後の層間絶縁層の熱膨張係数を低くする観点からは、多いほど好ましいが、形成する内層回路基板の配線パターンの凹凸及びスルーホールを埋め込む観点から、適切な無機充填材の量がある。このような観点から、（Ｃ）無機充填材の含有量は、樹脂固形分のうち２０～９５質量％であり、３０～９０質量％であることが好ましく、５０～９０質量％であることがより好ましい。（Ｃ）無機充填材の含有量が２０質量％以上であると、熱膨張係数を低くすることができ、９５質量％以下であると、埋め込み性を良好に保つことができる。

【００４６】

＜難燃剤＞

接着フィルム用樹脂組成物は、さらに、難燃剤を含んでいてもよい。

難燃剤としては、特に限定されないが、例えば、無機難燃剤、樹脂難燃剤等が挙げられる。

無機難燃剤としては、例えば、（Ｃ）無機充填材として例示される水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等が挙げられる。

樹脂難燃剤としては、ハロゲン系樹脂であっても、非ハロゲン系樹脂であってもよいが、環境負荷への配慮から、非ハロゲン系樹脂を用いることが好ましい。樹脂難燃剤は、充填材として配合するものであってもよく、熱硬化性樹脂と反応する官能基を有するものであってもよい。

樹脂難燃剤は、市販品を使用することができる。充填材として配合する樹脂難燃剤の市販品としては、例えば、芳香族リン酸エステル系難燃剤である「ＰＸ－２００」（大八化学工業株式会社製、商品名）、ポリリン酸塩化合物である「Ｅｘｏｌｉｔ　ＯＰ　９３０」（クラリアントジャパン株式会社製、商品名）等が挙げられる。

熱硬化性樹脂と反応する官能基を有する樹脂難燃剤の市販品としては、エポキシ系リン含有難燃剤、フェノール系リン含有難燃剤等が挙げられる。エポキシ系リン含有難燃剤としては、例えば、「ＦＸ－３０５」（新日鐵住金化学株式会社製、商品名）等が挙げられ、フェノール系リン含有難燃剤としては、例えば、「ＨＣＡ－ＨＱ」（三光株式会社製、商品名）、「ＸＺ９２７４１」（ダウ・ケミカル社製、商品名）等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００４７】

＜溶剤＞

接着フィルム用樹脂組成物は、層形成を効率的に行う観点から、溶剤を含むことが好ましい。溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン化合物；酢酸エチル、酢酸ブチル、セロソルブアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、カルビトールアセテート等の酢酸エステル化合物；セロソルブ、メチルカルビトール、ブチルカルビトール等のカルビトール化合物；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素化合物；ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリドン、ジエチレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルなどを挙げることができる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００４８】

＜残留溶剤量＞

本発明の接着フィルム中における残留溶剤量は、取り扱う材料によって異なるが、１～２０質量％であることが好ましく、２～１５質量％であることがより好ましく、２～１０質量％であることがさらに好ましい。残留溶剤量が１質量％以上であると、接着フィルムの取り扱い性が向上し、例えば、カッターで切断をする際の粉落ちの発生、割れの発生等

を抑制することができる。一方、２０質量％以下であると、ベトつきを抑制し、フィルムの巻き取り及び巻きだしが容易になる。また、巻きだしを可能にするため、乾燥後に接着フィルムのワニス塗布面に保護フィルムを設けることが多いが、残留溶剤量が２０質量％以下であると、保護フィルムと本発明の接着フィルムとの間の剥離が容易になる。

また、残留溶剤は、多層プリント配線板を作製する工程で、乾燥及び熱硬化によって除去されるものであるため、環境負荷の観点から少ないほうが好ましく、乾燥及び熱硬化の前後の膜厚変化を小さくするためにも少ないほうが好ましい。

なお、本発明の接着フィルムの製造にあたっては、目標とする残留溶剤量になるように、乾燥条件を決定することが好ましい。乾燥条件は、前述の樹脂組成物中に含まれる溶剤の種類、溶剤の量等によって異なるため、それぞれの塗工装置によって、予め条件出しを行った後、決定することが好ましい。

【００４９】

ここで、本発明における残留溶剤量とは、支持体フィルムの樹脂組成物層中に含まれる、溶剤の割合（質量％）であり、次のように定義できる。

まず、支持体フィルムの重量（W_a）を測定し、その上に樹脂組成物層を形成した後の重量（W_b）を測定する。その後、支持体フィルムとその上に形成した樹脂組成物層を２００℃の乾燥機の中に１０分間放置し、乾燥後の重量（W_c）を測定する。得られた重量（W_a）～（W_c）を用いて下記式により計算することができる。

溶剤の割合（質量％）＝（１－（（W_c）－（W_a））／（（W_b）－（W_a））×１００

【００５０】

＜その他の成分＞

本発明の接着フィルムは、本発明の効果を阻害しない範囲で、その他の成分を含んでいてもよい。その他の成分としては、例えば、オルベン、ベントン等の増粘剤；チアゾール系、トリアゾール系等の紫外線吸収剤；シランカップリング剤等の密着付与剤；フタロシアニンブルー、フタロシアニングリーン、アイオジングリーン、ジスアゾイエロー、カーボンブラック等の着色剤；上記以外の任意の樹脂成分などが挙げられる。

【００５１】

［支持体フィルム］

本発明における支持体フィルムとは、本発明の接着フィルムを製造する際の支持体となるものであり、多層プリント配線板を製造する際に、通常、最終的に剥離又は除去されるものである。

【００５２】

支持体フィルムとしては、特に限定されないが、例えば、有機樹脂フィルム、金属箔、離型紙等が挙げられる。

有機樹脂フィルムの材質としては、ポリエチレン、ポリ塩化ビニル等のポリオレフィン；ポリエチレンテレフタレート（以下、「ＰＥＴ」ともいう）、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル；ポリカーボネート、ポリイミドなどが挙げられる。これらの中でも、価格及び取り扱い性の観点から、ＰＥＴが好ましい。

金属箔としては、銅箔、アルミニウム箔等が挙げられる。支持体に銅箔を用いる場合には、銅箔をそのまま導体層とし、回路を形成することもできる。

この場合、銅箔としては、圧延銅、電解銅箔等を用いることができる。また、銅箔の厚さは、特に限定されないが、例えば、２～３６μｍの厚さを有するものを使用することができる。厚さの薄い銅箔を用いる場合には、作業性を向上させる観点から、キャリア付き銅箔を使用してもよい。

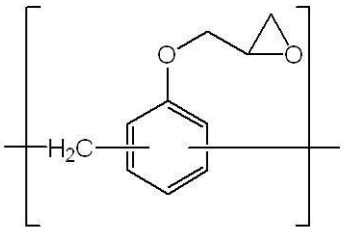
これらの支持体フィルム及び後述する保護フィルムには、離型処理、プラズマ処理、コロナ処理等の表面処理が施されていてもよい。離型処理としては、シリコーン樹脂系離型剤、アルキッド樹脂系離型剤、フッ素樹脂系離型剤等による離型処理などが挙げられる。

支持体フィルムの厚さは、特に限定されないが、取扱い性の観点から、１０～１２０μｍであることが好ましく、１５～８０μｍであることがより好ましく、１５～７０μｍで

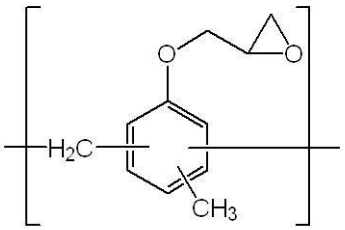
あることがさらに好ましい。
支持体フィルムは、上述のように単一の成分である必要はなく、複数層（２層以上）の別材料で形成されていてもよい。
【００５３】
支持体フィルムが２層構造である例を示すと、例えば、１層目の支持体フィルムとして、上記で挙げられた支持体フィルムを用い、２層目として、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂の硬化剤、充填材等から形成される層を有するものが挙げられる。２層目に用いられる材料は、本発明の接着フィルムに使用する材料において挙げられた材料も使用できる。
１層目の支持体フィルムの上に形成される層（２層目以降、２層以上の複数層あってもよい）は、機能を付与することを意図して作製される層であり、例えば、メッキ銅との接着性の向上等を目的として用いることができる。
２層目の形成方法としては、特に制限されないが、例えば、各材料を溶媒中に溶解及び分散したワニスを、１層目の支持体フィルム上に塗布及び乾燥させる方法が挙げられる。
【００５４】
支持体フィルムが複数層から形成される場合、１層目の支持体フィルムの厚さは、１０～１００μｍであることが好ましく、１０～６０μｍであることがより好ましく、１３～５０μｍであることがさらに好ましい。
１層目の支持体フィルムの上に形成される層（２層目以降、２層以上の複数層あってもよい）の厚さは、１～２０μｍであることが好ましい。１μｍ以上であると、意図する機能を果たすことができ、また、２０μｍ以下であると、支持体フィルムとしての経済性に優れる。
【００５５】
支持体フィルムが複数層で形成されている場合、支持体フィルムを剥離する際には、本発明の接着フィルムと共に多層プリント配線板側に形成して残す層（２層以上でもよい）と、剥離又は除去される層（２層以上でもよい）とに分離されてもよい。
【００５６】
［保護フィルム］
本発明の接着フィルムは、保護フィルムを有していてもよい。保護フィルムは、接着フィルムの支持体が設けられている面とは反対側の面に設けられるものであり、接着フィルムへの異物等の付着及びキズ付きを防止する目的で使用される。保護フィルムは、本発明の接着フィルムをラミネート、熱プレス等で回路基板等に積層する前に剥離される。
保護フィルムとしては、特に限定されないが、支持体フィルムと同様の材料を用いることができる。保護フィルムの厚さは、特に限定されないが、例えば、１～４０μｍの厚さを有するものを使用することができる。
【００５７】
［接着フィルムの製造方法］
本発明の接着フィルムは、支持体フィルム上に接着フィルム用樹脂組成物を塗布及び乾燥することにより製造することができる。得られた接着フィルムは、ロール状に巻き取って、保存及び貯蔵することができる。より具体的には、例えば、前記有機溶剤に前記各樹脂成分を溶解した後、（Ｃ）無機充填材等を混合して接着フィルム用樹脂組成物を調製し、該ワニスを支持体フィルム上に塗布し、加熱、熱風吹きつけ等によって、有機溶剤を乾燥させて、支持体フィルム上に樹脂組成物層を形成することにより製造することができる。
なお、本発明の接着フィルムにおいて、支持体フィルム上に形成した樹脂組成物層は、乾燥させて得られる未硬化の状態であってもよく、半硬化（Ｂステージ化）した状態であってもよい。
【００５８】
支持体フィルムにワニスを塗工する方法としては、特に限定されないが、例えば、コンマコーター、バーコーター、キスコーター、ロールコーター、グラビアコーター、ダイコーター等の公知の塗工装置を用いて塗工する方法を適用することができる。塗工装置は、

目標とする膜厚に応じて、適宜選択すればよい。
【００５９】
［２］第２の発明
次に、第２の発明に係る樹脂組成物、層間絶縁層用樹脂フィルム及び多層プリント配線板について説明する。
以下、第２の発明の説明において、単に「樹脂組成物」と称する場合、第２の発明に係る樹脂組成物を指すものとする。
【００６０】
［樹脂組成物］
本発明の樹脂組成物は、（ａ）エポキシ樹脂（以下、「（ａ）成分」ともいう）、（ｂ）シアネート樹脂（以下、「（ｂ）成分」ともいう）、（ｃ）活性エステル硬化剤（以下、「（ｃ）成分」ともいう）、（ｄ）フェノキシ樹脂（以下、「（ｄ）成分」ともいう）及び（ｅ）シリカ（以下、「（ｅ）成分」ともいう）を含有し、（ｅ）シリカが、エポキシシランカップリング剤及びビニルシランカップリング剤から選ばれる１種以上のシランカップリング剤で表面処理されたものである。
【００６１】
＜（ａ）エポキシ樹脂＞
（ａ）エポキシ樹脂としては、特に限定されないが、例えば、１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂が好ましく挙げられる。具体的には、例えば、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾ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、アラルキル型エポキシ樹脂、ナフトール型エポキシ樹脂、アントラセン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂、キサンテン型エポキシ樹脂等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。
【００６２】
（ａ）エポキシ樹脂としては、保存安定性、並びに得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性の観点から、ノボラック型エポキシ樹脂を含有することが好ましく、下記一般式（ａ－１）～（ａ－４）のいずれかで表される構造単位のうちの少なくとも１種を有するノボラック型エポキシ樹脂を含有することがより好ましい。
【００６３】

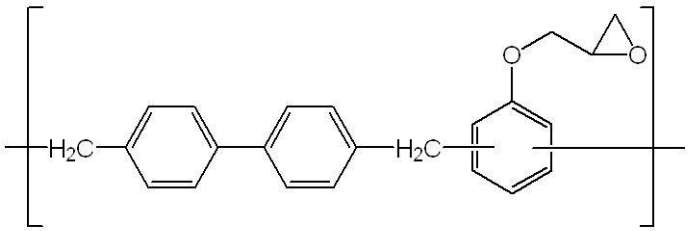
【化２】



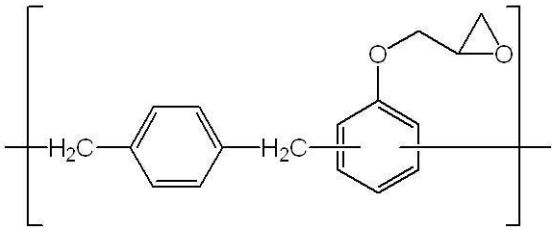
(a-1)



(a-2)



(a-3)



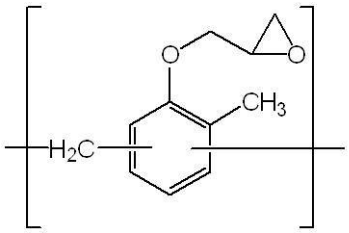
(a-4)

【００６４】

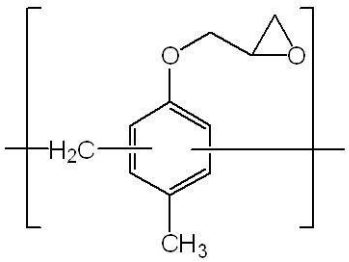
式（ａ－２）で表される構造単位は、下記式（ａ－２’）又は（ａ－２’’）で表される構造単位であることが好ましい。

【００６５】

【化３】



(a-2')



(a-2'')

【００６６】

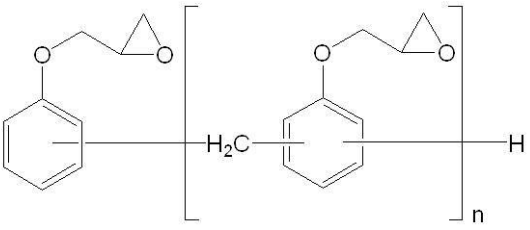
前記式（ａ－１）～（ａ－４）のいずれかで表される構造単位のうちの少なくとも１種を有するノボラック型エポキシ樹脂を含有することにより、誘電特性に優れ、熱膨張率が低く、さらに導体層との接着性にも優れる層間絶縁層が得られる傾向にある。

前記式（ａ－１）～（ａ－４）のいずれかで表される構造単位のうちの少なくとも１種を有するノボラック型エポキシ樹脂中における、前記一般式（ａ－１）～（ａ－４）のいずれかで表される構造単位の含有量は、７０モル％以上であることが好ましく、９０モル％以上であることがより好ましい。

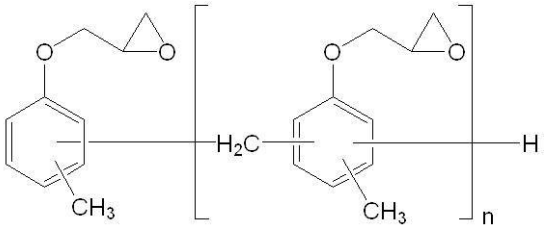
（ａ）エポキシ樹脂は、誘電特性、熱膨張率及び導体層との接着性に優れる層間絶縁層を得る観点から、下記一般式（Ａ－１）～（Ａ－４）のいずれかで表されるノボラック型エポキシ樹脂であることが好ましい。

【００６７】

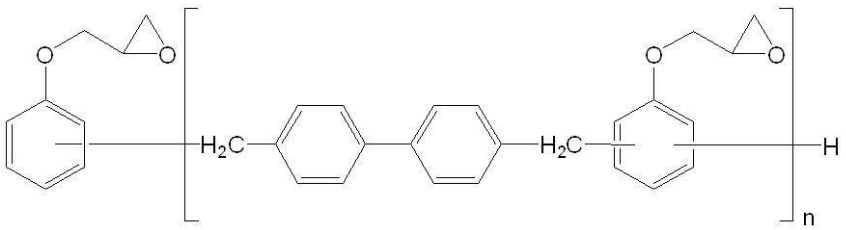
【化４】



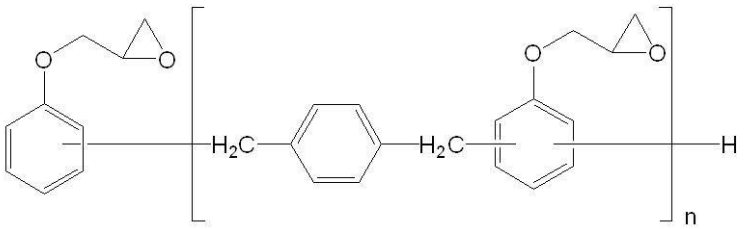
(A-1)



(A-2)



(A-3)



(A-4)

【００６８】

前記一般式（Ａ－１）～（Ａ－４）中、いずれにおいても、ｎは１～２０の整数を示し、好ましくは１～１０の整数である。

【００６９】

ノボラック型エポキシ樹脂は、市販品を用いることができる。市販品のノボラック型エポキシ樹脂としては、例えば、「Ｎ６７３」（エポキシ当量：２１１ｇ／ｅｑ）、「Ｎ６９８」（エポキシ当量：２１８ｇ／ｅｑ）、「Ｎ７４０」（エポキシ当量：１８０ｇ／ｅｑ）、「Ｎ７７０」（エポキシ当量：１８８ｇ／ｅｑ）、「Ｎ７７５」（エポキシ当量：１８７ｇ／ｅｑ）、「Ｎ７３０－Ａ」（エポキシ当量：１７５ｇ／ｅｑ）（以上、ＤＩＣ株式会社製、商品名）、「ＮＣ－２０００－Ｌ」（エポキシ当量：２３７ｇ／ｅｑ）、「ＮＣ－３０００－Ｈ」（エポキシ当量：２８９ｇ／ｅｑ）（以上、日本化薬株式会社製、商品名）等が挙げられる。

【００７０】

（ａ）エポキシ樹脂のエポキシ当量は、保存安定性、並びに得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性の観点から、１５０～５００ｇ／ｅｑであることが好ましく

、１５０～４００ｇ／ｅｑであることがより好ましく、１５０～３００ｇ／ｅｑであることがさらに好ましい。

ここで、エポキシ当量は、エポキシ基あたりの樹脂の質量（ｇ／ｅｑ）であり、ＪＩＳ Ｋ ７２３６に規定された方法に従って測定することができる。具体的には、株式会社三菱化学アナリテック製の自動滴定装置「ＧＴ－２００型」を用いて、２００ｍｌビーカーにエポキシ樹脂２ｇを秤量し、メチルエチルケトン９０ｍｌを滴下し、超音波洗浄器溶解後、氷酢酸１０ｍｌ及び臭化セチルトリメチルアンモニウム１．５ｇを添加し、０．１ｍｏｌ／Ｌの過塩素酸／酢酸溶液で滴定することにより求められる。

【００７１】

本発明の樹脂組成物中における（ａ）エポキシ樹脂の含有量は、保存安定性、並びに得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性の観点から、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、３～５０質量部であることが好ましく、７～３０質量部であることがより好ましく、１０～２０質量部であることがさらに好ましい。

ここで、本明細書において、「固形分換算」とは、有機溶剤等の揮発性成分を除いた不揮発分のみを基準とすることを意味する。つまり、固形分換算１００質量部とは、不揮発分１００質量部相当を意味する。

【００７２】

＜（ｂ）シアネート樹脂＞

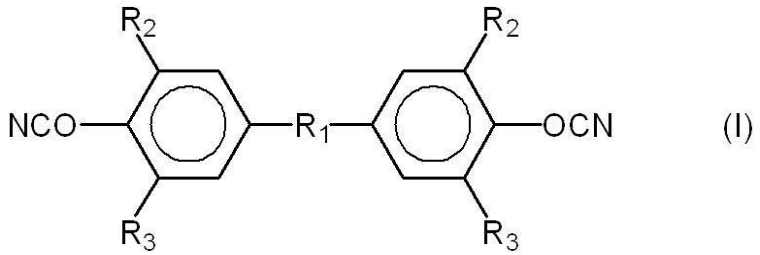
（ｂ）シアネート樹脂としては、特に限定されないが、例えば、１分子中に２個以上のシアナト基を有するシアネート樹脂が好ましく挙げられる。

（ｂ）シアネート樹脂としては、例えば、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパン、ビス（４－シアナトフェニル）エタン、ビス（３，５－ジメチル－４－シアナトフェニル）メタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン等のビスフェノール型シアネート樹脂；フェノール付加ジシクロペンタジエン重合体のシアネートエステル化合物等のジシクロペンタジエン型シアネート樹脂；フェノールノボラック型シアネートエステル化合物、クレゾールノボラック型シアネートエステル化合物等のノボラック型シアネート樹脂；α，α’－ビス（４－シアナトフェニル）－ｍ－ジイソプロピルベンゼン；これらのシアネート樹脂のプレポリマー（以下、「シアネートプレポリマー」ともいう）などが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

これらの中でも、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、下記一般式（Ｉ）で表されるシアネート樹脂、下記一般式（ＩＶ）で表されるシアネート樹脂及びこれらのプレポリマーが好ましい。

【００７３】

【化５】



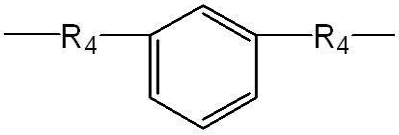
(I)

【００７４】

一般式（Ｉ）中、R_1は、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～３のアルキレン基、硫黄原子、下記一般式（ＩＩ）又は下記一般式（ＩＩＩ）で表される２価の基を示す。R_2及びR_3は水素原子又は炭素数１～４のアルキル基を示す。複数のR_2同士又はR_3同士は、それぞれ同一であっても異なっていてもよい。

【００７５】

【化６】



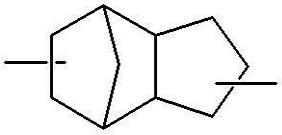
(II)

【００７６】

一般式（ＩＩ）中、Ｒ$_4$は炭素数１～３のアルキレン基を示す。複数のＲ$_4$同士は、同一であっても異なっていてもよい。

【００７７】

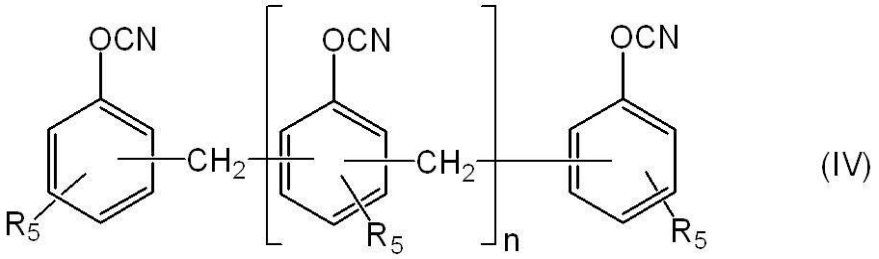
【化７】



(III)

【００７８】

【化８】



(IV)

【００７９】

一般式（ＩＶ）中、Ｒ$_5$は、水素原子又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～３のアルキル基を示す。ｎは１以上の整数を示す。複数のＲ$_5$同士は、同一であっても異なっていてもよい。

【００８０】

前記一般式（Ｉ）中、Ｒ$_1$で表される炭素数１～３のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、１，２－プロピレン基、１，３－プロピレン基、２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）等が挙げられる。これらの中でも、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、メチレン基又は２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）が好ましく、２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）がより好ましい。

前記炭素数１～３のアルキレン基を置換するハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

前記一般式（ＩＩ）中、Ｒ$_4$で表される炭素数１～３のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、１，２－プロピレン基、１，３－プロピレン基、２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）等が挙げられる。

これらのＲ$_1$で表される基の中でも、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、メチレン基又は２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）が好ましく、２，２－プロピレン基（－Ｃ（ＣＨ$_3$）$_2$－）がより好ましい。

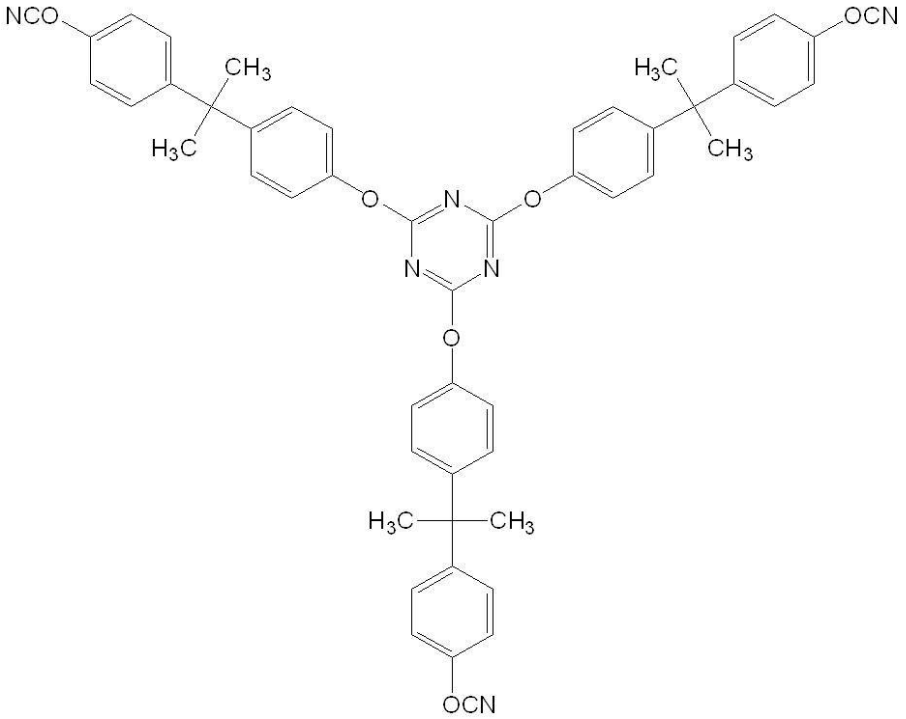
前記一般式（Ｉ）中、Ｒ$_2$又はＲ$_3$で表される炭素数１～４のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等が挙げられる。

【００８１】

前記一般式（ＩＶ）中、Ｒ$_5$で表される炭素数１～３のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等が挙げられる。

前記炭素数１～３のアルキル基を置換するハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

【００８２】
前記シアネートプレポリマーとは、（ｂ）シアネート樹脂同士が環化反応によりトリアジン環を形成したポリマーをいい、主にシアネートエステル化合物の３、５、７、９、１１量体等が挙げられる。このシアネートプレポリマーにおいて、シアナト基の転化率は、特に限定されないが、有機溶媒に対する良好な溶解性を得る観点から、２０～７０質量％であることが好ましく、３０～６５質量％であることがより好ましい。
シアネートプレポリマーとしては、例えば、前記一般式（Ｉ）で表されるシアネート樹脂のプレポリマー、前記一般式（ＩＶ）で表されるシアネート樹脂のプレポリマー等が挙げられる。これらの中でも、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、１分子中に２個のシアナト基を有するジシアネート化合物のプレポリマーであることが好ましく、前記一般式（Ｉ）で表されるシアネート樹脂のプレポリマーであることがより好ましく、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパンの少なくとも一部がトリアジン化されて３量体となったプレポリマー（下記式（Ｖ）参照）であることがさらに好ましい。
【００８３】
【化９】



(V)

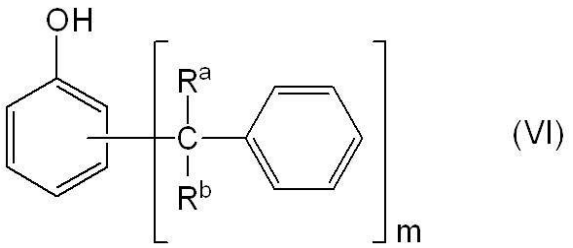
【００８４】
シアネートプレポリマーの重量平均分子量（Ｍｗ）は、特に限定されないが、有機溶媒に対する溶解性及び作業性の観点から、５００～４５００であることが好ましく、６００～４０００であることがより好ましく、１０００～４０００であることがさらに好ましく、１５００～４０００であることが特に好ましい。シアネートプレポリマーの重量平均分子量（Ｍｗ）が５００以上であれば、シアネートプレポリマーの結晶化が抑制され、有機溶媒に対する溶解性が良好になる傾向にあり、また、４５００以下であれば、粘度の増大が抑制され、作業性に優れる傾向にある。
なお、重量平均分子量（Ｍｗ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）（東ソー株式会社製）により、標準ポリスチレンの検量線を用いて測定したものであり、詳細には、実施例に記載の方法に従って測定したものである。
【００８５】
シアネートプレポリマーは、単官能フェノール化合物の存在下で前記シアネート樹脂をプレポリマー化したものであってもよい。シアネートプレポリマーを製造する際に、単官能フェノール化合物を配合することにより、得られる硬化物中の未反応のシアナト基を減

少させることができるため、耐湿性及び電気特性が優れる傾向にある。

単官能フェノール化合物としては、例えば、ｐ－ノニルフェノール、ｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、ｐ－ｔｅｒｔ－アミルフェノール、ｐ－ｔｅｒｔ－オクチルフェノール等のアルキル基置換フェノール系化合物；ｐ－（α－クミル）フェノール、モノ－、ジ－又はトリ－（α－メチルベンジル）フェノール等の下記一般式（ＶＩ）で表されるフェノール系化合物などが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００８６】

【化１０】



(VI)

【００８７】

一般式（ＶＩ）中、Ｒ^{a}及びＲ^{b}は、それぞれ独立に、水素原子又はメチル基を示し、ｍは１～３の整数を示す。ｍが２又は３の整数の場合、複数のＲ^{a}同士又はＲ^{b}同士は、それぞれ同一であっても異なっていてもよい。

【００８８】

単官能フェノール化合物の配合量は、得られる層間絶縁層の誘電特性及び耐湿性の観点から、単官能フェノール化合物が有するフェノール性水酸基と、（ｂ）シアネート樹脂に含まれるシアナト基との当量比（水酸基／シアナト基）が、０．０１～０．３０になる量とすることが好ましく、０．０１～０．２０になる量とすることがより好ましく、０．０１～０．１５になる量とすることがさらに好ましい。単官能フェノール化合物の配合量が上記範囲内であると、特に高周波数帯域での誘電正接が十分低いものが得られる傾向にあることに加えて、良好な耐湿性が得られる傾向にある。

【００８９】

シアネートプレポリマーの製造方法としては、特に制限はなく、公知の製造方法を適用することができる。

シアネートプレポリマーは、例えば、前記ジシアネート化合物と前記単官能フェノール化合物とを反応することにより、好適に製造することができる。ジシアネート化合物と単官能フェノール化合物との反応により、－Ｏ－Ｃ（＝ＮＨ）－Ｏ－で表される基を有する化合物（つまりイミノカーボネート）が形成され、さらに該イミノカーボネート同士が反応するか、又は該イミノカーボネートとジシアネート化合物とが反応することにより、単官能フェノール化合物が脱離する一方で、トリアジン環を有するシアネートプレポリマーが得られる。前記反応は、例えば、前記ジシアネート化合物と前記単官能フェノール化合物とを、トルエン等の溶媒の存在下で混合して溶解し、８０～１２０℃に保持しながら、必要に応じてナフテン酸亜鉛等の反応促進剤を添加して行うことができる。

【００９０】

（ｂ）シアネート樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（ｂ）シアネート樹脂としては、ビスフェノール型のシアネート樹脂、ノボラック型のシアネート樹脂、これらのシアネート樹脂の一部又は全部がトリアジン化され３量体となったプレポリマー等が挙げられる。

ビスフェノールＡ型（２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン型）のシアネート樹脂の市販品としては、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＢＡＤＣｙ」（ロンザ社製、商品名）、「アロシー（Ａｒｏｃｙ）Ｂ－１０」（ハンツマン社製、商品名）等を用いてもよい。また、ビスフェノールＥ型（１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン型）のシアネート樹脂の市販品としては、「アロシー（Ａｒｏｃｙ）Ｌ１０」（ハン

ツマン社製、商品名）、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＬＥＣｙ」（ロンザ社製、商品名）等を用いてもよく、２，２’－ビス（４－シアネート－３，５－メチルフェニル）エタン型のシアネート樹脂の市販品としては、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＭＥＴＨＹＬＣｙ」（ロンザ社製）等を用いてもよい。

ノボラック型のシアネート樹脂の市販品としては、フェノールノボラック型のシアネート樹脂である「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＰＴ３０」（ロンザ社製、商品名）等を用いてもよい。

シアネート樹脂のプレポリマーの市販品としては、ビスフェノールＡ型のシアネート樹脂をプレポリマー化した「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＢＡ２００」（ロンザ社製、商品名）、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＢＡ２３０Ｓ」（ロンザ社製、商品名）等を用いてもよく、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＢＡ３０００」等を用いてもよい。

他に、「アロシー（Ａｒｏｃｙ）ＸＵ－３７１」（ハンツマン社製、商品名）、ジシクロペンタジエン構造を含有したシアネート樹脂である「アロシー（Ａｒｏｃｙ）ＸＰ７１７８７．０２Ｌ」（ハンツマン社製、商品名）、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＤＴ－４０００」（ロンザ社製、商品名）、「プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＤＴ－７０００」（ロンザ社製、商品名）等を用いてもよい。

【００９１】

本発明の樹脂組成物中における（ｂ）シアネート樹脂の含有量は、保存安定性、並びに得られる層間絶縁層のリフロー耐熱性及びスミア除去性の観点から、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、０．５～３０質量部であることが好ましく、１～２０質量であることがより好ましく、２～１５質量部であることがさらに好ましく、３～１０質量部であることが特に好ましい。

【００９２】

本発明の樹脂組成物中における、（ａ）エポキシ樹脂と（ｂ）シアネート樹脂との質量比［（ａ）／（ｂ）］は、保存安定性、並びにリフロー耐熱性、スミア除去性、誘電特性、熱膨張率及び導体層との接着性に優れる層間絶縁層を得る観点から、０．５～１０であることが好ましく、０．６～７であることがより好ましく、０．６～５であることがさらに好ましく、０．７～４であることが特に好ましい。

【００９３】

＜（ｃ）活性エステル硬化剤＞

本発明の樹脂組成物は、さらに、（ｃ）活性エステル硬化剤を含有する。（ｃ）活性エステル硬化剤は、シアネートと反応しなかったエポキシ基と反応して硬化すると考えられ、（ｃ）活性エステル硬化剤を含有することで、誘電正接が低減される傾向にある。

（ｃ）活性エステル硬化剤としては、特に限定されないが、例えば、エステル基を１分子中に２個以上有する化合物が挙げられる。具体的には、例えば、フェノールエステル類、チオフェノールエステル類、Ｎ－ヒドロキシアミンエステル類、複素環ヒドロキシ化合物のエステル類等が挙げられる。

【００９４】

（ｃ）活性エステル硬化剤は、カルボン酸化合物及びチオカルボン酸化合物から選ばれる１種以上と、ヒドロキシ化合物及びチオール化合物から選ばれる１種以上との縮合反応によって得られるものが好ましい。特に、耐熱性向上の観点から、カルボン酸化合物とヒドロキシ化合物とから得られる活性エステル硬化剤が好ましく、カルボン酸化合物とフェノール化合物及びナフトール化合物から選ばれる１種以上とから得られる活性エステル硬化剤がより好ましい。

カルボン酸化合物としては、例えば、安息香酸、酢酸、コハク酸、マレイン酸、イタコン酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ピロメリット酸等が挙げられる。

フェノール化合物としては、例えば、ハイドロキノン、レゾルシン、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビスフェノールＳ、フェノールフタリン、メチル化ビスフェノールＡ、メチル化ビスフェノールＦ、メチル化ビスフェノールＳ、フェノール、ｏ－クレゾー

ル、ｍ－クレゾール、ｐ－クレゾール、カテコール、ジヒドロキシベンゾフェノン、トリヒドロキシベンゾフェノン、テトラヒドロキシベンゾフェノン、フロログルシン、ベンゼントリオール、ジシクロペンタジエニルジフェノール、フェノールノボラック等が挙げられる。

ナフトール化合物としては、例えば、α－ナフトール、β－ナフトール、１，５－ジヒドロキシナフタレン、１，６－ジヒドロキシナフタレン、２，６－ジヒドロキシナフタレン等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【００９５】

（ｃ）活性エステル硬化剤としては、特開２００４－２７７４６０号公報に開示されている活性エステル硬化剤を用いてもよく、また、市販品を用いることもできる。

市販品の（ｃ）活性エステル硬化剤としては、例えば、ジシクロペンタジエニルジフェノール構造を含むもの、フェノールノボラックのアセチル化物、フェノールノボラックのベンゾイル化物等が挙げられ、これらの中でも、ジシクロペンタジエニルジフェノール構造を含むものが好ましい。具体的には、ジシクロペンタジエニルジフェノール構造を含むものとして「ＥＸＢ９４５１」、「ＥＸＢ９４６０」、「ＥＸＢ９４６０Ｓ－６５Ｔ」、「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」（以上、ＤＩＣ株式会社製、商品名、活性基当量約２２３ｇ／ｅｑ）、フェノールノボラックのアセチル化物として「ＤＣ８０８」（活性基当量約１４９ｇ／ｅｑ）、フェノールノボラックのベンゾイル化物として「ＹＬＨ１０２６」（活性基当量約２００ｇ／ｅｑ）、「ＹＬＨ１０３０」（商品名、活性基当量約２０１ｇ／ｅｑ）、「ＹＬＨ１０４８」（活性基当量約２４５ｇ／ｅｑ）（以上、三菱化学株式会社製、商品名）等が挙げられる。これらの中でも、ワニスの保存安定性及び硬化物の熱膨張率の観点から、「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」が好ましい。

【００９６】

本発明の樹脂組成物中における、（ｃ）活性エステル硬化剤の含有量は、保存安定性、並びに得られる層間絶縁層の誘電特性及び熱膨張率の観点から、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、１～４０質量部であることが好ましく、５～３０質量部であることがより好ましく、８～１５質量部であることがさらに好ましい。

【００９７】

＜（ｄ）フェノキシ樹脂＞

本発明の樹脂組成物は、さらに、（ｄ）フェノキシ樹脂を含有する。

本発明の樹脂組成物は、（ｄ）フェノキシ樹脂を含有することによって、得られる層間絶縁層と導体層との接着強度が向上する傾向にあり、また、層間絶縁層の表面の粗化形状が小さく、緻密になる傾向にある。また、無電解めっき法を用いて層間絶縁層上に導体層を形成する場合、めっきブリスターの発生が抑制されると共に、層間絶縁層とソルダーレジストとの接着強度が向上する傾向にある。

（ｄ）フェノキシ樹脂の重量平均分子量は、有機溶剤への溶解性並びに層間絶縁層の機械的強度及び耐薬品性を向上させる観点から、５０００～１０００００であることが好ましく、５０００～５００００であることがより好ましく、１００００～５００００であることがさらに好ましい。（ｄ）フェノキシ樹脂の重量平均分子量を上記範囲内とすることにより、導体層のブリスターの発生が抑制される傾向にある。

【００９８】

（ｄ）フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールＡ骨格、ビスフェノールＦ骨格、ビスフェノールＳ骨格、ビスフェノールＡＦ骨格、ビスフェノールトリメチルシクロヘキサン骨格、ビスフェノールアセトフェノン骨格、ノボラック骨格、ビフェニル骨格、フルオレン骨格、ジシクロペンタジエン骨格、ノルボルネン骨格、ナフタレン骨格、アントラセン骨格、アダマンタン骨格、テルペン骨格、トリメチルシクロヘキサン骨格、スチレンとグリシジルメタクリレートの共重合体骨格から選択される１種類以上の骨格を有するものを用いることができる。これらの中でも、層間絶縁層の耐薬品性を向上させる観点及び粗化、デスミア処理等において、酸化剤によって層間絶縁層に適度な凹凸を付与することを容易とする観点から、ビフェニル骨格を有するフェノキシ樹脂が好ましい。これら

は単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。（ｄ）フェノキシ樹脂の末端はフェノール性水酸基、エポキシ基等のいずれの官能基でもよい。

【００９９】

（ｄ）フェノキシ樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（ｄ）フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールＡＦ骨格含有フェノキシ樹脂である「ＹＬ７３８３」、「ＹＬ７３８４」（共に三菱化学株式会社製、商品名）、ビスフェノールＡ骨格含有フェノキシ樹脂である「１２５６」、「４２５０」（共に三菱化学株式会社製、商品名）、「ＹＰ－５０」（新日鐵住金化学株式会社製、商品名）、ビスフェノールＳ骨格含有フェノキシ樹脂である「ＹＸ８１００」（三菱化学株式会社製、商品名）、ビスフェノールアセトフェノン骨格含有フェノキシ樹脂である「ＹＸ６９５４」（三菱化学株式会社製、商品名）、フルオレン骨格含有フェノキシ樹脂である「ＦＸ－２９３」（新日鐵住金化学株式会社製、商品名）、ビスフェノールトリメチルシクロヘキサン骨格含有フェノキシ樹脂である「ＹＬ７２１３」（三菱化学株式会社製、商品名）、その他、「ＦＸ－２８０」（新日鐵住金化学株式会社製、商品名）、「ＹＬ７５５３」、「ＹＬ６７９４」、「ＹＬ７２９０」、「ＹＬ７４８２」（以上、三菱化学株式会社製、商品名）等を用いることができる。

【０１００】

本発明の樹脂組成物中における（ｄ）フェノキシ樹脂の含有量は、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点、並びにめっきブリスターの発生を抑制する観点から、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、０．０５～５質量部であることが好ましく、０．２～３質量部であることがより好ましく、０．５～１．５質量部であることがさらに好ましい。

【０１０１】

＜（ｅ）シリカ＞

本発明の樹脂組成物は、エポキシシランカップリング剤及びビニルシランカップリング剤から選ばれる１種以上のシランカップリング剤で表面処理された（ｅ）シリカを含有する。

エポキシシランカップリング剤で表面処理されたシリカを用いると、後述する粗化処理工程後の表面粗さが小さく、樹脂組成物の保存安定性が優れる傾向にあり、ビニルシランカップリング剤で表面処理したシリカを用いると、保存安定性とスミア除去性が優れる傾向にある。両者を最適な比率で混合することで、より一層、樹脂組成物の保存安定性、並びに得られる層間絶縁層のスミア除去性及びリフロー耐熱性に優れる傾向にある。

また、（ｅ）シリカは、前記の効果を両立させる観点から、エポキシシランカップリング剤で表面処理されたシリカと、ビニルシランカップリング剤で表面処理されたシリカとを含有するものとしてもよい。

また、（ｅ）シリカは、エポキシシランカップリング剤とビニルシランカップリング剤以外のシランカップリング剤（以下、「その他のカップリング剤」ともいう）で表面処理されたシリカを含有してもよい。

その他のカップリング剤としては、例えば、アミノシランカップリング剤、メタクリルシランカップリング剤、メルカプトシランカップリング剤が挙げられる。中でも、スミア除去性及びリフロー耐熱性の観点から、アミノシランカンプリング剤で表面処理されたシリカを含有することが好ましい。アミノシランカップリング剤としては、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシランであるＫＢＭ－６０３（信越化学工業株式会社製、商品名）、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシランであるＫＢＭ－５７３（信越化学工業株式会社製、商品名）等が挙げられ、リフロー耐熱性の観点から、ＫＢＭ－５７３が最も好ましい。

（ｅ）シリカが、エポキシシランカップリング剤で表面処理されたシリカと、ビニルシランカップリング剤で表面処理されたシリカとを含有する場合、エポキシシランカップリング剤で表面処理されたシリカの含有割合は、エポキシシランカップリング剤で表面処理されたシリカとビニルシランカップリング剤で表面処理されたシリカとの合計含有量に対

して、１０～９０質量％であることが好ましく、２０～８０質量％であることがより好ましく、２５～６０質量％あることがさらに好ましい。

【０１０２】

シリカとしては、例えば、湿式法で製造された含水率の高い沈降シリカ、乾式法で製造された結合水等をほとんど含まない乾式法シリカ等が挙げられ、乾式法シリカとしては、さらに、製造法の違いにより、破砕シリカ、フュームドシリカ、溶融シリカ（溶融球状シリカ）等が挙げられる。

【０１０３】

シリカの体積平均粒径は、特に限定されないが、０．０５～１０μｍであることが好ましく、０．１～１０μｍであることがより好ましく、０．３～５μｍであることがさらに好ましい。シリカの体積平均粒子径が０．０５μｍ以上であると、高充填した際の流動性が良好に保たれる傾向にあり、１０μｍ以下であれば、層間絶縁層に回路パターンを形成する際にファインパターンの形成を安定的に行うことができる傾向にある。なお、使用するシリカの体積平均粒径は１種類でもよく、異なる体積平均粒径のものを混合して使用してもよい。

ここで、体積平均粒径とは、粒子の全体積を１００％として粒径による累積度数分布曲線を求めたとき、体積５０％に相当する点の粒径のことであり、レーザ回折散乱法を用いた粒度分布測定装置等で測定することができる。

【０１０４】

シリカは、市販品を用いてもよく、例えば、高純度合成球状シリカである「アドマファイン」（株式会社アドマテックス製、商品名）シリーズを用いることができる。「アドマファイン」シリーズの中でも、例えば、高純度でイオン性不純物が少ない「ＳＯ－Ｃ１」（体積平均粒径：０．２５μｍ）、「ＳＯ－Ｃ２」（体積平均粒径：０．５μｍ）、「ＳＯ－Ｃ３」（体積平均粒径：０．９μｍ）、「ＳＯ－Ｃ５」（体積平均粒径：１．６μｍ）、「ＳＯ－Ｃ６」（体積平均粒径：２．２μｍ）等を用いることができる。また、これらの「アドマファイン」に後述のシランカップリング剤による表面処理を施し、溶剤と混合した後、フィルターを通すことによって、粗粒をカットしたものを使用してもよい。

【０１０５】

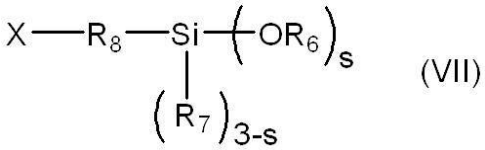
（エポキシシランカップリング剤）

シリカの表面処理に用いられるエポキシシランカップリング剤は、エポキシ基を含有するシランカップリング剤であれば、特に限定されないが、粗化処理工程後の表面粗さが小さい層間絶縁層が得られると共に、優れた保存安定性が得られる観点から、１個又は２個のエポキシ基と１個のケイ素原子を有するシランカップリング剤であることが好ましく、１個のエポキシ基と１個のケイ素原子を有するシランカップリング剤であることがより好ましい。

このようなエポキシシランカップリング剤としては、例えば、下記一般式（ＶＩＩ）で表されるエポキシシランカップリング剤が挙げられる。

【０１０６】

【化１１】

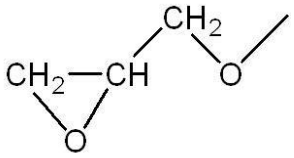


(VII)

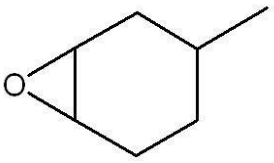
【０１０７】

一般式（ＶＩＩ）中、R_6及びR_7は、各々独立に炭素数１～１２のアルキル基を示し、R_8は、炭素数１～１２のアルキレン基を示し、Ｘは、下記一般式（ＶＩＩＩ）又は（ＩＸ）で表される１価の基を示す。ｓは、１～３の整数を示す。ｓが１のとき、複数のR_7同士は、同一であっても異なっていてもよく、ｓが２又は３のとき、複数のR_6同士は、同一であっても異なっていてもよい。

【０１０８】
【化１２】

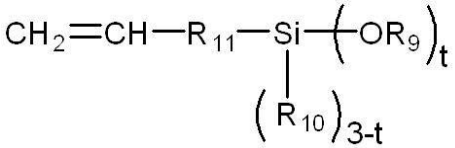


(VIII)



(IX)

【０１０９】
Ｒ$_6$及びＲ$_7$で表される炭素数１～１２のアルキル基は、炭素数１～６のアルキル基であることが好ましく、炭素数１～３のアルキル基であることがより好ましい。具体的には、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基等が挙げられ、これらの中でも、メチル基又はエチル基が好ましい。
Ｒ$_8$で表される炭素数１～１２のアルキレン基は、炭素数１～６のアルキレン基であることが好ましく、炭素数２～４のアルキレン基であることがより好ましい。具体的には、メチレン基、エチレン基、プロピレン基等が挙げられ、これらの中でも、プロピレン基が好ましい。
【０１１０】
エポキシシランカップリング剤としては、市販品を用いてもよい。市販品のエポキシシランカップリング剤としては、例えば、「ＫＢＭ－３０３」（２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン）、「ＫＢＭ－４０２」（３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン）、「ＫＢＭ－４０３」（３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン）、「ＫＢＥ－４０２」（３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン）、「ＫＢＥ－４０３」（３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン）（以上、信越化学工業株式会社製、商品名）等が挙げられる。これらの中でも、リフロー耐熱性、保存安定性及びスミア除去性に優れる層間絶縁層を得る観点から、「ＫＢＭ－４０３」が好ましい。
【０１１１】
（ビニルシランカップリング剤）
シリカの表面処理に用いられるビニルシランカップリング剤は、ビニル基を含有するシランカップリング剤であれば、特に限定されないが、優れた保存安定性と、スミア除去性に優れる層間絶縁層が得られる観点から、例えば、１個又は２個のビニル基と１個のケイ素原子を有するシランカップリング剤であることが好ましく、１個のビニル基と１個のケイ素原子を有するシランカップリング剤であることがより好ましい。
このような、ビニルシランカップリング剤としては、例えば、下記一般式（Ｘ）で表されるビニルシランカップリング剤が挙げられる。
【０１１２】
【化１３】



(X)

【０１１３】
一般式（Ｘ）中、Ｒ$_9$及びＲ$_{10}$は、各々独立に炭素数１～１２のアルキル基を示し、

R_{11}は、単結合又は炭素数１～１２のアルキレン基を示し、ｔは、１～３の整数を示す。ｔが１のとき、複数のR_{10}同士は、同一であっても異なっていてもよく、ｔが２又は３のとき、複数のR_{9}同士は、同一であっても異なっていてもよい。

【０１１４】

R_{9}及びR_{10}で表される炭素数１～１２のアルキル基としては、前記一般式（ＶＩＩ）におけるR_{6}及びR_{7}と同様のものが挙げられ、好ましい態様も同様である。

R_{11}で表される炭素数１～１２のアルキレン基としては、前記一般式（ＶＩＩ）におけるR_{8}と同様のものが挙げられ、好ましい態様も同様である。

【０１１５】

ビニルシランカップリング剤としては、市販品を用いてもよい。市販品のビニルシランカップリング剤としては、例えば、「ＫＢＭ－１００３」（ビニルトリメトキシシラン）、「ＫＢＥ－１００３」（ビニルトリエトキシシラン）（以上、信越化学工業株式会社製、商品名）等が挙げられる。これらの中でも、内層配線の埋め込み性の観点から、分子鎖の短い「ＫＢＭ－１００３」が好ましい。

【０１１６】

なお、本発明の樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲で、シリカ以外の無機充填材を含んでいてもよい。

【０１１７】

本発明の樹脂組成物中における（ｅ）シリカの含有量は、本発明の樹脂組成物に求める特性及び機能によっても異なるが、樹脂組成物を硬化してなる層間絶縁層の熱膨張係数の観点から、（ｅ）シリカを除く樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、５０～５００質量部であることが好ましく、１５０～３００質量部であることがより好ましく、２００～２５０質量部であることがさらに好ましい。

【０１１８】

＜（ｆ）硬化促進剤＞

本発明の樹脂組成物は、さらに、（ｆ）硬化促進剤を含有していてもよい。

（ｆ）硬化促進剤としては、例えば、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバルト、オクチル酸スズ、オクチル酸コバルト、ビスアセチルアセトナートコバルト（ＩＩ）、トリスアセチルアセトナートコバルト（ＩＩＩ）等の有機金属塩；イミダゾール化合物及びその誘導体、有機リン系化合物、第二級アミン、第三級アミン及び第四級アンモニウム塩等の有機系硬化促進剤などが挙げられる。これらの中でも、導体層との接着性、耐熱性及び難燃性に優れる層間絶縁層を得る観点から、有機金属塩、イミダゾール化合物及びその誘導体から選ばれる１種以上が好ましく、ナフテン酸亜鉛、イミダゾール化合物及びその誘導体から選ばれる１種以上がより好ましい。

【０１１９】

イミダゾール化合物及びその誘導体としては、例えば、２－メチルイミダゾール、２－エチルイミダゾール、２－ウンデシルイミダゾール、２－ヘプタデシルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、１，２－ジメチルイミダゾール、２－エチル－１－メチルイミダゾール、１，２－ジエチルイミダゾール、１－エチル－２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、４－エチル－２－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、１－シアノエチル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－フェニル－４，５－ジヒドロキシメチルイミダゾール、２－フェニル－４－メチル－５－ヒドロキシメチルイミダゾール、２，３－ジヒドロ－１Ｈ－ピロロ［１，２－ａ］ベンズイミダゾール、２，４－ジアミノ－６－［２’－メチルイミダゾリル－（１’）］エチル－ｓ－トリアジン、２，４－ジアミノ－６－［２’－ウンデシルイミダゾリル－（１’）］エチル－ｓ－トリアジン、２，４－ジアミノ－６－［２’－エチル－４’－メチルイミダゾリル－（１’）］エチル－ｓ－トリアジン等のイミダゾール化合物；前記イミダゾール化合物のトリメリト酸付加体；前記イミダゾール化合物のイソシアヌル酸

付加体；前記イミダゾール化合物の臭化水素酸付加体などが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。これらの中でも、ワニスへの溶解性、得られるフィルムの保存安定性、硬化物の熱膨張係数及びデスミアによる表面粗化形状の観点から、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾールが好ましい。

【０１２０】

本発明の樹脂組成物が（ｆ）硬化促進剤を含有する場合、（ｆ）硬化促進剤の含有量は、導体層との接着性、耐熱性及び難燃性の観点から、（ａ）エポキシ樹脂の固形分換算１００質量部に対して、０．０１～７質量部であることが好ましく、０．０５～５質量部であることがより好ましく、０．０１～３質量部であることがさらに好ましい。

【０１２１】

＜その他の成分＞

本発明の樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲で、上記各成分以外の成分を含有していてもよい。その他の成分としては、例えば、上記各成分以外の樹脂成分（以下、「他の樹脂成分」ともいう）、添加剤、有機溶剤等が挙げられる。

【０１２２】

（他の樹脂成分）

他の樹脂成分としては、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂等が挙げられる。

他の樹脂成分である熱硬化性樹脂としては、例えば、フェノール樹脂、不飽和イミド樹脂、イソシアネート樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、オキセタン樹脂、アミノ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アリル樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、シリコーン樹脂、トリアジン樹脂、メラミン樹脂、（ａ）エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂等が挙げられる。

熱可塑性樹脂としては、例えば、フッ素樹脂、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンスルフィド、ポリカーボネート、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアリレート、ポリアミド、ポリアミドイミド、ポリブタジエン等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【０１２３】

（添加剤）

添加剤としては、例えば、（ｃ）活性エステル硬化剤以外のエポキシ樹脂硬化剤（以下、「他のエポキシ樹脂硬化剤」ともいう）、難燃剤、酸化防止剤、ハジキ防止剤（表面調整剤）、紫外線吸収剤、光重合開始剤、蛍光増白剤、密着性向上剤等が挙げられる。

【０１２４】

他のエポキシ樹脂硬化剤としては、例えば、各種フェノール樹脂類、酸無水物類、ヒドラジット類、アミン類等が挙げられる。

【０１２５】

難燃剤としては、例えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の熱分解温度が３００℃未満の金属水和物；トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジル－２，６－キシレニルホスフェート、１，３－フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）、１，３－フェニレンビス（ジ－２，６－キシレニルホスフェート）、ビスフェノールＡビス（ジフェニルホスフェート）等のリン酸エステル系化合物、ホスファゼン、赤リン等のリン系難燃剤；三酸化アンチモン、モリブデン酸亜鉛等の無機難燃助剤などが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。これらの中でも、近年の環境問題の観点から、臭素、塩素等のハロゲンを含有しない非ハロゲン系難燃剤が好ましい。

【０１２６】

酸化防止剤としては、例えば、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、スチレン化フェノール系酸化防止剤等のフェノール系酸化防止剤などが挙げられる。

【０１２７】

ハジキ防止剤としては、例えば、シリコーン系、ビニル系、アクリル系、フッ素系等のハジキ防止剤（表面調整剤）が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。これらの中でも、シリコーン系のハジキ防止剤が好ましい。

本発明の樹脂組成物がハジキ防止剤を含有する場合、ハジキ防止剤の含有量は、リフロー耐熱性、保存安定性及びスミア除去性を維持しつつハジキ防止性を向上させる観点から、樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、０．００１～１０質量部であることが好ましく、０．００５～５質量部であることがより好ましく、０．０１～３質量部であることがさらに好ましく、０．０２～０．５質量部であることが特に好ましい。

【０１２８】

紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤等が挙げられる。光重合開始剤としては、例えば、ベンゾフェノン系光重合開始剤、ベンジルケタール系光重合開始剤、チオキサントン系光重合開始剤等が挙げられる。蛍光増白剤としては、例えば、スチルベン誘導体等が挙げられる。密着性向上剤としては、例えば、尿素シラン等の尿素化合物、シランカップリング剤などが挙げられる。

【０１２９】

（有機溶剤）

本発明の樹脂組成物は、取り扱いを容易にする観点及び後述する層間絶縁層用樹脂フィルムを形成し易くする観点から、有機溶剤を含有させてワニスの状態にしてもよい。

有機溶剤としては、特に限定されないが、例えば、アセトン、メチルエチルケトン（以下、「ＭＥＫ」ともいう）、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤；酢酸エチル、酢酸ブチル、セロソルブアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、カルビトールアセテート等の酢酸エステル系溶剤；セロソルブ、ブチルカルビトール等のカルビトール系溶剤；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶剤；ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリドン等のアミド系溶剤などが挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。これらの中でも、溶解性の観点から、ケトン系溶剤が好ましく、ＭＥＫ、メチルイソブチルケトンがより好ましい。

【０１３０】

本発明の樹脂組成物は、（ａ）～（ｅ）成分、必要に応じその他の成分を混合することにより製造することができる。混合方法としては、公知の方法を適用することができ、例えば、ビーズミル等を用いて混合することができる。

【０１３１】

本発明の樹脂組成物は、例えば、ワニスの状態で回路基板に塗布して層間絶縁層を形成することもできるが、樹脂フィルム、プリプレグ等のシート状積層材料の形態で回路基板に積層して層間絶縁層を形成してもよい。本発明の樹脂組成物の軟化点は、シート状積層材料のラミネート性の観点から、４０～１５０℃であることが好ましい。

【０１３２】

［層間絶縁層用樹脂フィルム］

本発明の層間絶縁層用樹脂フィルム（以下、単に「樹脂フィルム」ともいう）は、本発明の樹脂組成物を含有するものであり、回路基板の導体層からその上の層を絶縁するために用いられる。

本発明の樹脂フィルムの厚さは、プリント配線板に形成される導体層の厚みによって決定することができるが、導体層の厚さが、通常、５～７０μｍであるため、１０～１００μｍであることが好ましく、多層プリント配線板の薄型化を可能とする観点からは、導体層以上の厚さを有しつつ、１５～８０μｍであることがより好ましく、２０～５０μｍであることがさらに好ましい。

【０１３３】

本発明の樹脂フィルムは、支持体を有する樹脂フィルムであってもよく、接着補助層を介して支持体を有する樹脂フィルムであってもよい。すなわち、本発明の樹脂フィルムは、支持体、接着補助層及び層間絶縁層用樹脂組成物層をこの順に有する層間絶縁層用樹脂フィルムであってもよい。

【０１３４】

＜層間絶縁層用樹脂組成物層＞

層間絶縁層用樹脂組成物層は、本発明の樹脂組成物を含有するものであり、本発明の樹脂フィルムを用いて多層プリント配線板を製造する場合において、回路基板と接着補助層との間に設けられる層である。また、層間絶縁層用樹脂組成物層は、回路基板にスルーホール、ビアホール等が存在する場合、それらの中に流動し、該ホール内を充填する役割も果たす。

なお、接着補助層と層間絶縁層用樹脂組成物層との間には、明確な界面が存在せず、例えば、接着補助層の構成成分の一部が層間絶縁層用樹脂組成物層の中に流動した状態であってもよい。

層間絶縁層用樹脂組成物層の厚さは、プリント配線板に形成される導体層の厚みによって決定することができるが、導体層の厚さは、通常、５～７０μｍであるため、１０～１００μｍであることが好ましく、多層プリント配線板の薄型化を可能とする観点からは、導体層以上の厚さを有しつつ、１５～８０μｍであることがより好ましく、２０～５０μｍであることがさらに好ましい。

層間絶縁層用樹脂組成物層は、本発明の樹脂組成物を層形成することにより得られる。

【０１３５】

＜接着補助層＞

接着補助層は、導体層との良好な接着性を得るため、導体層と本発明の樹脂フィルムにより形成される層間絶縁層との間に設けられる層である。接着補助層を設けることで平滑な表面が得られ、かつ導体層との接着性の高い層間絶縁層が得られる傾向にある。

接着補助層の厚さは、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、例えば、１～１５μｍであることが好ましく、１～１０μｍであることがより好ましく、１～７μｍであることがさらに好ましい。

接着補助層は、接着補助層用樹脂組成物を層形成することにより得ることができる。

【０１３６】

（接着補助層用樹脂組成物）

接着補助層用樹脂組成物は、導体層及び樹脂フィルムとの接着性の観点、並びにフィルム表面を平滑にする観点から、（ｇ）エポキシ樹脂、（ｈ）シアネート樹脂及び（ｉ）ポリアミド樹脂を含有することが好ましい。接着補助層用樹脂組成物は、導体層との接着性を高める観点から、樹脂フィルムよりも導体層との接着性に優れるものが好ましい。

【０１３７】

〔（ｇ）エポキシ樹脂〕

（ｇ）エポキシ樹脂としては、特に限定されないが、本発明の樹脂組成物が含有することができる（ａ）エポキシ樹脂と同様のものが挙げられる。

これらの中でも、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、アルキルフェノ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が好ましい。

（ｇ）エポキシ樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（ｇ）エポキシ樹脂としては、例えば、「ＮＣ－３０００－Ｈ」、「ＮＣ－３０００－Ｌ」、「ＮＣ－３１００」、「ＮＣ－３０００」（以上、日本化薬株式会社製、商品名、ビフェニル骨格を有するアラルキルノボラック型エポキシ樹脂）、「ＮＣ－７０００－Ｌ」（日本化薬株式会社製、商品名、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂）等が挙げられる。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

接着補助層用樹脂組成物中における（ｇ）エポキシ樹脂の含有量は、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、接着補助層用樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、２０～８０質量部であることが好ましく、３０～７０質量部であることがより好ましく、４０～６０質量部であることがさらに好ましい。

【０１３８】

〔（ｈ）シアネート樹脂〕

（ｈ）シアネート樹脂としては、特に限定されないが、本発明の樹脂組成物が含有する

ことができる（ｂ）シアネート樹脂と同様のものが挙げられる。
接着補助層用樹脂組成物中における（ｈ）シアネート樹脂の含有量は、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、接着補助層用樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、１０～７０質量部であることが好ましく、２０～６０質量部であることがより好ましく、３０～５０質量部であることがさらに好ましい。
接着補助層用樹脂組成物中における（ｇ）エポキシ樹脂と（ｈ）シアネート樹脂との質量比［（ｇ）／（ｈ）］は、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、０．３～２０であることが好ましく、０．６～１０であることがより好ましい。
【０１３９】
〔（ｉ）ポリアミド樹脂〕
（ｉ）ポリアミド樹脂としては、特に限定されず、公知のポリアミド樹脂を用いることができる。
（ｉ）ポリアミド樹脂としては、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、ポリブタジエン骨格を含んでいるものが好ましく、熱硬化性樹脂（例えば、エポキシ樹脂のエポキシ基）と反応するフェノール性水酸基、アミノ基等を含有しているものがより好ましい。
（ｉ）ポリアミド樹脂としては、市販品を用いてもよい。市販品の（ｉ）ポリアミド樹脂としては、例えば、日本化薬株式会社製のポリアミド樹脂「ＢＰＡＭ－０１」、「ＢＰＡＭ－１５５」（共に商品名）等が挙げられる。
（ｉ）ポリアミド樹脂としては、表面粗さが小さく、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、「ＢＰＡＭ－０１」及び「ＢＰＡＭ－１５５」が好ましい。「ＢＰＡＭ－１５５」は、末端にアミノ基を有するゴム変性ポリアミドであり、エポキシ基との反応性を有するため、（ｉ）ポリアミド樹脂として「ＢＰＡＭ－１５５」を使用した樹脂組成物から得られる層間絶縁層は、めっき法によって形成した導体層との接着強度により優れ、表面粗さが小さくなる傾向にある。
【０１４０】
（ｉ）ポリアミド樹脂の数平均分子量は、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、２００００～３００００であることが好ましく、２２０００～２９０００であることがより好ましく、２４０００～２８０００であることがさらに好ましい。
（ｉ）ポリアミド樹脂の重量平均分子量は、めっき法によって形成した導体層との接着強度に優れる層間絶縁層を得る観点から、１０００００～１４００００であることが好ましく、１０３０００～１３００００であることがより好ましく、１０５０００～１２００００であることがさらに好ましい。
なお、数平均分子量及び重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）（東ソー株式会社製）により、標準ポリスチレンの検量線を用いて測定したものである。
【０１４１】
接着補助層用樹脂組成物中における（ｉ）ポリアミド樹脂の含有量は、平滑な表面を有し、めっき法によって形成した導体層との接着性が高い層間絶縁層を得る観点から、接着補助層用樹脂組成物の固形分換算１００質量部に対して、１～２０質量部であることが好ましく、２～１５質量部であることがより好ましく、３～１０質量部であることがさらに好ましい。
【０１４２】
〔（ｊ）無機充填材〕
接着補助層用樹脂組成物は、さらに（ｊ）無機充填材を含有していてもよい。（ｊ）無機充填材は、本発明の樹脂組成物を熱硬化して形成される層間絶縁層をレーザー加工する際に、樹脂の飛散を防止し、レーザー加工の形状を整えることを可能にする観点から重要

である。また、層間絶縁層の表面を酸化剤で粗化する際に、適度な粗化面を形成し、めっきによって接着強度に優れる導体層の形成を可能にする観点から重要であり、そのような観点から選択することが好ましい。

【０１４３】

（ｊ）無機充填材としては、例えば、シリカ、アルミナ、硫酸バリウム、タルク、クレー、雲母粉、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、ホウ酸アルミニウム、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸カルシウム、チタン酸ビスマス、酸化チタン、ジルコン酸バリウム、ジルコン酸カルシウム等が挙げられる。これらの中でも、安価である点から、シリカが好ましい。これらは単独で又は２種以上を混合して使用してもよい。

【０１４４】

（ｊ）無機充填材は、微細配線を形成する観点から、粒子径が小さいものが好ましい。また、同様の観点から、（ｊ）無機充填材は、比表面積が２０ｍ^2／ｇ以上であるものが好ましく、６０～２００ｍ^2／ｇであるものがより好ましく、９０～１３０ｍ^2／ｇであるものがさらに好ましい。

比表面積は、不活性気体の低温低湿物理吸着によるＢＥＴ法で求めることができる。具体的には、粉体粒子表面に、窒素等の吸着占有面積が既知の分子を液体窒素温度で吸着させ、その吸着量から粉体粒子の比表面積を求めることができる。

比表面積が２０ｍ^2／ｇ以上の（ｊ）無機充填材としては、市販品を用いてもよく、例えば、ヒュームドシリカである「ＡＥＲＯＳＩＬ（アエロジル）（登録商標）Ｒ９７２」（日本アエロジル株式会社製、商品名、比表面積１１０±２０ｍ^2／ｇ）及び「ＡＥＲＯＳＩＬ（アエロジル）（登録商標）Ｒ２０２」（日本アエロジル株式会社製、商品名、比表面積１００±２０ｍ^2／ｇ）、コロイダルシリカである「ＰＬ－１」（扶桑化学工業株式会社製、商品名、比表面積１８１ｍ^2／ｇ）及び「ＰＬ－７」（扶桑化学工業株式会社製、商品名、比表面積３６ｍ^2／ｇ）等が挙げられる。

また、（ｊ）無機充填材としては、得られる層間絶縁層の耐湿性を向上させる観点から、シランカップリング剤等の表面処理剤で表面処理された無機充填材を用いることができる。

【０１４５】

接着補助層用樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲で、上記各成分以外の成分を含有していてもよい。その他の成分としては、本発明の樹脂組成物が含有していてもよいその他の成分と同様のものが挙げられる。

【０１４６】

接着補助層用樹脂組成物は、取り扱いを容易にする観点から、有機溶剤を含有させてワニスの状態にしてもよい。有機溶剤としては、本発明の樹脂組成物をワニスにする際に用いられる有機溶剤と同様のものが挙げられる。

接着補助層用樹脂組成物をワニスの状態にする場合、有機溶剤の含有量は、接着補助層用樹脂組成物の取り扱いが容易になる範囲、また、ワニスの塗工性が良好となる範囲に適宜調整すればよい。ワニス中の固形分濃度（有機溶剤以外の成分の濃度）は、例えば、１０～５０質量％であることが好ましく、１５～５０質量％であることがより好ましく、２０～４０質量％であることがさらに好ましい。

【０１４７】

＜支持体＞

支持体としては、特に限定されないが、例えば、有機樹脂フィルム、金属箔、離型紙等が挙げられる。

有機樹脂フィルムの材質としては、ポリエチレン、ポリ塩化ビニル等のポリオレフィン；ポリエチレンテレフタレート（以下、「ＰＥＴ」ともいう）、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル；ポリカーボネート、ポリイミドなどが挙げられる。これらの中でも、価格及び取り扱い性の観点から、ＰＥＴが好ましい。

金属箔としては、銅箔、アルミニウム箔等が挙げられる。支持体に銅箔を用いる場合に

は、銅箔をそのまま導体層とし、回路を形成することもできる。
この場合、銅箔としては、圧延銅、電解銅箔等を用いることができる。また、銅箔の厚さは、特に限定されないが、例えば、２～３６μｍの厚さを有するものを使用することができる。厚さの薄い銅箔を用いる場合には、作業性を向上させる観点から、キャリア付き銅箔を使用してもよい。
【０１４８】
これらの支持体及び後述する保護フィルムには、離型処理、プラズマ処理、コロナ処理等の表面処理が施されていてもよい。離型処理としては、シリコーン樹脂系離型剤、アルキッド樹脂系離型剤又はフッ素樹脂系離型剤等による離型処理などが挙げられる。
支持体の厚さは、特に限定されないが、取扱い性及び経済性の観点から、１０～１２０μｍであることが好ましく、１５～８０μｍであることがより好ましく、２５～５０μｍであることがさらに好ましい。
支持体は、多層プリント配線板を製造する際に、通常、最終的に剥離又は除去される。
【０１４９】
＜保護フィルム＞
本発明の樹脂フィルムは、保護フィルムを有していてもよい。保護フィルムは、本発明の樹脂フィルムの支持体が設けられている面とは反対側の面に設けられるものであり、樹脂フィルムへの異物等の付着及びキズ付きを防止する目的で使用される。保護フィルムは、本発明の樹脂フィルムをラミネート、熱プレス等で回路基板等に積層する前に剥離される。
保護フィルムとしては、特に限定されないが、支持体と同様の材料を用いることができる。保護フィルムの厚さは、特に限定されないが、例えば、１～４０μｍの厚さを有するものを使用することができる。
保護フィルムは、本発明の樹脂フィルムをラミネート、熱プレス等で回路基板等に積層する前に剥離される。
【０１５０】
＜層間絶縁層用樹脂フィルムの製造方法＞
本発明の樹脂フィルムが支持体を有する場合、本発明の樹脂フィルムは、支持体上に本発明の樹脂組成物を塗工した後、加熱乾燥することにより製造できる。
本発明の樹脂フィルムが接着補助層を介して支持体を有する場合、本発明の樹脂フィルムは、支持体上に接着補助層を形成した後、該接着補助層上に本発明の樹脂組成物を塗工し、次いで、加熱乾燥することにより製造できる。ここで、支持体上に接着補助層を形成する方法に特に制限はなく、例えば、接着補助層用樹脂組成物を支持体上に塗工した後、加熱乾燥することにより形成することができる。
【０１５１】
支持体上に接着補助層用樹脂組成物又は本発明の樹脂組成物を塗工する方法としては、特に限定されないが、例えば、コンマコーター、バーコーター、キスコーター、ロールコーター、グラビアコーター、ダイコーター等の公知の塗工装置を用いて塗工する方法を適用することができる。塗工装置は、目標とする膜厚に応じて、適宜選択すればよい。
【０１５２】
接着補助層用樹脂組成物又は本発明の樹脂組成物を塗工した後の乾燥条件としては、特に限定されないが、得られる樹脂フィルム中の有機溶剤の含有量が、１０質量％以下となるように乾燥させることが好ましく、５質量％以下となるように乾燥させることがより好ましい。
乾燥条件は、ワニス中の有機溶剤の量及び種類によっても異なるが、例えば、３０～６０質量％の有機溶剤を含むワニスであれば、５０～１５０℃で３～１０分間程度乾燥させることにより、接着補助層及び層間絶縁層用樹脂フィルムを形成することができる。
乾燥条件は、簡単な実験により適宜、好適な乾燥条件を設定することが好ましい。
【０１５３】
［多層プリント配線板］

本発明の多層プリント配線板は、本発明の樹脂組成物又は層間絶縁層用樹脂フィルムの硬化物を含むものである。

本発明の多層プリント配線板は、例えば、本発明の樹脂フィルムを回路基板にラミネートすることにより、製造することができる。具体的には、下記工程（１）～（６）［但し、工程（３）は任意である。］を含む製造方法により製造することができ、工程（１）、（２）又は（３）の後で支持体を剥離又は除去してもよい。

【０１５４】

（１）本発明の樹脂フィルムを回路基板の片面又は両面にラミネートする工程［以下、ラミネート工程（１）と称する］。

（２）ラミネートされた樹脂フィルムを熱硬化し、絶縁層を形成する工程［以下、絶縁層形成工程（２）と称する］。

（３）絶縁層を形成した回路基板に穴あけする工程［以下、穴あけ工程（３）と称する］。

（４）絶縁層の表面を酸化剤によって粗化処理する工程［以下、粗化処理工程（４）と称する］。

（５）粗化された絶縁層の表面にめっきにより導体層を形成する工程［以下、導体層形成工程（５）と称する］。

（６）導体層に回路形成する工程［以下、回路形成工程（６）と称する］。

【０１５５】

ラミネート工程（１）は、真空ラミネーターを用いて、本発明の樹脂フィルムを回路基板の片面又は両面にラミネートする工程である。真空ラミネーターとしては、市販品の真空ラミネーターを使用することができる。市販品の真空ラミネーターとしては、例えば、ニチゴー・モートン株式会社製のバキュームアップリケーター、株式会社名機製作所製の真空加圧式ラミネーター、株式会社日立製作所製のロール式ドライコーター、日立化成エレクトロニクス株式会社製の真空ラミネーター等が挙げられる。

樹脂フィルムに保護フィルムが設けられている場合には、該保護フィルムを剥離又は除去した後、樹脂フィルムの層間絶縁層用樹脂組成物層が回路基板と接するように、加圧及び加熱しながら回路基板に圧着することによりラミネートすることができる。

該ラミネートは、例えば、樹脂フィルム及び回路基板を必要に応じて予備加熱（プレヒート）してから、圧着温度（ラミネート温度）を６０～１４０℃、圧着圧力を０．１～１．１ＭＰａ（９．８×10^4～１０７．９×10^4Ｎ／ｍ^2）、空気圧２０ｍｍＨｇ（２６．７ｈＰａ）以下の減圧下で実施することができる。また、ラミネートの方法は、バッチ式であっても、ロールでの連続式であってもよい。

【０１５６】

絶縁層形成工程（２）では、まず、ラミネート工程（１）で回路基板にラミネートされた樹脂フィルムを室温付近に冷却する。

支持体を剥離する場合は、剥離した後、回路基板にラミネートされた樹脂フィルムを加熱硬化させて絶縁層、つまり後に「層間絶縁層」となる絶縁層を形成する。

加熱硬化の条件は、１段階目は１００～２００℃で５～３０分間の範囲で選択され、２段階目は１４０～２２０℃で２０～８０分間の範囲で選択することができる。離型処理の施された支持体を使用した場合には、熱硬化させた後に、支持体を剥離してもよい。

【０１５７】

上記の方法により絶縁層を形成した後、必要に応じて穴あけ工程（３）を経てもよい。穴あけ工程（３）は、回路基板及び形成された絶縁層に、ドリル、レーザー、プラズマ、これらの組み合わせ等の方法により穴あけを行い、ビアホール、スルーホール等を形成する工程である。レーザーとしては、炭酸ガスレーザー、ＹＡＧレーザー、ＵＶレーザー、エキシマレーザー等が用いられる。

【０１５８】

粗化処理工程（４）では、絶縁層の表面を酸化剤により粗化処理を行う。また、絶縁層及び回路基板にビアホール、スルーホール等が形成されている場合には、これらを形成す

る際に発生する、所謂「スミア」を、酸化剤によって除去してもよい。粗化処理と、スミアの除去は同時に行うことができる。
酸化剤としては、例えば、過マンガン酸塩（過マンガン酸カリウム、過マンガン酸ナトリウム等）、重クロム酸塩、オゾン、過酸化水素、硫酸、硝酸等が挙げられる。これらの中でも、ビルドアップ工法による多層プリント配線板の製造における絶縁層の粗化に汎用されている酸化剤である、アルカリ性過マンガン酸溶液（例えば、過マンガン酸カリウム、過マンガン酸ナトリウムの水酸化ナトリウム水溶液）を用いることができる。
粗化処理により、絶縁層の表面に凹凸のアンカーが形成する。
【０１５９】
導体層形成工程（５）では、粗化されて凹凸のアンカーが形成された絶縁層の表面に、めっきにより導体層を形成する。
めっき方法としては、無電解めっき法、電解めっき法等が挙げられる。めっき用の金属は、めっきに使用し得る金属であれば特に制限されない。めっき用の金属は、銅、金、銀、ニッケル、白金、モリブデン、ルテニウム、アルミニウム、タングステン、鉄、チタン、クロム、又はこれらの金属元素のうちの少なくとも１種を含む合金の中から選択することができ、銅、ニッケルであることが好ましく、銅であることがより好ましい。
なお、先に導体層（配線パターン）とは逆パターンのめっきレジストを形成しておき、その後、無電解めっきのみで導体層（配線パターン）を形成する方法を採用することもできる。
導体層の形成後、１５０～２００℃で２０～１２０分間アニール処理を施してもよい。アニール処理を施すことにより、層間絶縁層と導体層との間の接着強度がさらに向上及び安定化する傾向にある。また、このアニール処理によって、層間絶縁層の硬化を進めてもよい。
回路形成工程（６）において、導体層をパターン加工し、回路形成する方法としては、例えば、サブトラクティブ法、フルアディティブ法、セミアディティブ法（ＳＡＰ：ＳｅｍｉＡｄｄｉｔｉｖｅ　Ｐｒｏｃｅｓｓ）、モディファイドセミアディティブ法（ｍ－ＳＡＰ：ｍｏｄｉｆｉｅｄ　Ｓｅｍｉ　Ａｄｄｉｔｉｖｅ　Ｐｒｏｃｅｓｓ）等の公知の方法を利用することができる。
【０１６０】
このようにして作製された導体層の表面を粗化してもよい。導体層の表面を粗化することにより、導体層に接する樹脂との密着性が向上する傾向にある。導体層を粗化するには、有機酸系マイクロエッチング剤である「ＣＺ－８１００」、「ＣＺ－８１０１」、「ＣＺ－５４８０」（全てメック株式会社製、商品名）等を用いることができる。
【０１６１】
本発明の多層プリント配線板に用いられる回路基板は、特に限定されないが、例えば、ガラスエポキシ、金属基板、ポリエステル基板、ポリイミド基板、ＢＴレジン基板、熱硬化性ポリフェニレンエーテル基板等の基板の片面又は両面に、パターン加工された導体層（回路）が形成されたものが挙げられる。
層間絶縁層の回路基板への接着性の観点からは、回路基板の導体層の表面は、黒化処理等により、予め粗化処理が施されていてもよい。
【実施例】
【０１６２】
［１］次に、第１の発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、第１の発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。
【０１６３】
実施例１
エポキシ樹脂として、ビフェニルノボラック型エポキシ樹脂である「ＮＣ－３０００－Ｈ」（日本化薬株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）を２５．８質量部、
ノボラック型フェノール樹脂として、「ＰＡＰＳ－ＰＮ２」（旭有機材工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．１７）を６．３質量部、

エポキシ樹脂硬化剤として、トリアジン変性フェノールノボラック樹脂である「ＬＡ－１３５６－６０Ｍ」（ＤＩＣ株式会社製、商品名、溶剤：ＭＥＫ、固形分濃度６０質量％）を４．９質量部、
無機充填材として、「ＳＯ－Ｃ２」（株式会社アドマテックス製、商品名、平均粒径；０．５μｍ）の表面をアミノシランカップリング剤で処理し、さらに、ＭＥＫ中に分散させたシリカ（固形分濃度７０質量％）を９２．９質量部、
硬化促進剤として、２－エチル－４－メチルイミダゾールである「２Ｅ４ＭＺ」（四国化成工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）を０．０２６質量部、
追加溶剤としてＭＥＫを１３．１質量部配合し、混合及びビーズミル分散処理を施して接着フィルム用樹脂組成物ワニス１を作製した。
上記で得られた接着フィルム用樹脂組成物ワニス１を、支持体フィルムであるＰＥＴ（帝人デュポンフィルム株式会社製、商品名：Ｇ２、フィルム厚：５０μｍ）上に塗布した後、乾燥して、樹脂組成物層を形成した。なお、塗工厚さは４０μｍとして、乾燥は、樹脂組成物層中の残留溶剤が８．０質量％になるように行った。乾燥後、樹脂組成物層面側に保護フィルムとして、ポリエチレンフィルム（タマポリ株式会社製、商品名：ＮＦ－１３、厚さ：２５μｍ）を積層した。その後、得られたフィルムをロール状に巻き取り、接着フィルム１を得た。

【０１６４】

実施例２～６、８、比較例１～４

実施例１において、原料組成、製造条件を表１に記載のとおりに変更した以外は、実施例１と同様にして、接着フィルム２～６、８～１２を得た。

【０１６５】

実施例７

支持体フィルムであるＰＥＴ（帝人デュポンフィルム株式会社製、商品名：Ｇ２、フィルム厚：５０μｍ）の上に、１０μｍの膜厚になるように、以下の手順で作製した樹脂ワニスＡを塗布及び乾燥して得られた６０μｍ厚さの支持体フィルム２を準備した。

【０１６６】

上記で使用した樹脂ワニスＡは、以下の手順で作製した。
エポキシ樹脂として、ビフェニルノボラック型エポキシ樹脂である「ＮＣ－３０００－Ｈ」（日本化薬株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）を６３．９質量部、
エポキシ樹脂硬化剤として、トリアジン変性フェノールノボラック樹脂である「ＬＡ－１３５６－６０Ｍ」（ＤＩＣ株式会社製、商品名、溶剤；ＭＥＫ、固形分濃度６０質量％）を１８．０質量部、
コアシェルゴム粒子である「ＥＸＬ－２６５５」（ローム・アンド・ハース電子材料株式会社製、商品名）を１５．２質量部、
無機充填材として、ヒュームドシリカである「アエロジルＲ９７２」（日本アエロジル株式会社製、商品名、平均粒径；０．０２μｍ、固形分濃度１００質量％）を８．８質量部、
硬化促進剤として、２－エチル－４－メチルイミダゾールである「２Ｅ４ＭＺ」（四国化成工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）を１．２８質量部、
追加溶剤として、シクロヘキサノンを２２６．１質量部配合し、混合及びビーズミル分散処理を施して樹脂ワニスＡを作製した。
上記で得られた樹脂ワニスＡを、支持体フィルムであるＰＥＴ（帝人デュポンフィルム株式会社製、商品名：Ｇ２、フィルム厚：５０μｍ）上に、１０μｍの膜厚になるように塗布した後、乾燥して、フィルム厚が６０μｍの支持体フィルム２を得た。

【０１６７】

次に、上記で得た支持体フィルム２上に塗布する接着フィルム用樹脂組成物ワニスを、表１に記載の原料組成、製造条件で、実施例１と同様にして作製した。
支持体フィルム２と、接着フィルム用樹脂組成物ワニスを用いて、実施例１と同様にして接着フィルム７を得た。

【０１６８】
［評価方法］
得られた接着フィルム１～１２は以下の方法により評価した。
【０１６９】
（接着フィルムの取扱い性試験用試料の作製及び試験方法）
得られた接着フィルム１～１２を５００ｍｍ×５００ｍｍのサイズに切断し、接着フィルムの取扱い性試験用試料１～１２を作製した。
作製した接着フィルムの取扱い性試験用試料１～１２を用いて、次の（１）～（３）の方法により取扱い性を評価し、いずれかの試験において不良とされたものを「取扱い性不良」、いずれの試験でも不良でなかったものを「取扱い性良好」とした。
（１）接着フィルムの取扱い性試験用試料１～１２について、まず、保護フィルムを剥離した。保護フィルムを剥離する際に、塗布及び乾燥した樹脂が一部、保護フィルム側に付着したもの、又は粉落ちが発生したものを、取扱い性不良とした。
（２）フィルムの中央端２点（５００ｍｍ×２５０ｍｍになるように、端部の２点）をもち、塗布及び乾燥した樹脂に割れが発生したものを、取扱い性不良とした。
（３）表面の銅箔に黒化及び還元処理を施した銅張積層板である「ＭＣＬ－Ｅ－６７９ＦＧ（Ｒ）」（日立化成株式会社製、銅箔厚１２μｍ、板厚０．４１ｍｍ）に、バッチ式の真空加圧式ラミネーター「ＭＶＬ－５００」（株式会社名機製作所製、商品名）を用いてラミネートによって積層した。この際の真空度は３０ｍｍＨｇ以下であり、温度は９０℃、圧力は０．５ＭＰａの設定とした。室温に冷却後、支持体フィルムを剥がした（接着フィルム７については、支持体フィルム２のうち、ＰＥＴとその上に形成した樹脂層の間で剥がれた）。この際に、粉落ちが発生したり、ＰＥＴが途中で破れた材料を取り扱い性不良とした。
【０１７０】
（熱膨張係数測定用試料の作製及び試験方法）
得られた接着フィルム１～１２をそれぞれ２００ｍｍ×２００ｍｍのサイズに切断し、保護フィルムを剥がし、１８μｍ厚さの銅箔に、バッチ式の真空加圧式ラミネーター「ＭＶＬ－５００」（株式会社名機製作所製、商品名）を用いてラミネートによって積層した。この際の真空度は３０ｍｍＨｇ以下であり、温度は９０℃、圧力は０．５ＭＰａの設定とした。
室温に冷却後、支持体フィルムを剥がし（接着フィルム７については、支持体フィルム２のうち、ＰＥＴとその上に形成した樹脂層の間で剥がれた）、１８０℃の乾燥機中で１２０分間硬化した。その後、塩化第二鉄液で銅箔を除去し、幅３ｍｍ、長さ８ｍｍに切り出したものを、熱膨張係数測定用試料１～１２とした。
【０１７１】
作製した熱膨張係数測定用試料１～１２を用いて、次の方法により熱膨張係数を測定した。
得られた熱膨張係数測定用試料１～１２をセイコーインスツル株式会社製の熱機械分析装置を用い、昇温速度１０℃／分で２４０℃まで昇温させ、－１０℃まで冷却後、昇温速度１０℃／分で３００℃まで昇温させた際の膨張量の変化曲線得て、該膨張量の変化曲線の０～１５０℃の平均熱膨張係数を求めた。
【０１７２】
（埋め込み性評価基板の作製及び試験方法）
埋め込み性評価基板に使用した内層回路は次のとおりである。銅箔厚が１２μｍ、板厚が０．１５ｍｍ（銅箔厚を含む）の銅張積層板である「ＭＣＬ－Ｅ－６７９ＦＧ（Ｒ）」（日立化成株式会社製、商品名）に直径が０．１５ｍｍのスルーホールを５ｍｍ間隔で２５個×２５個の群になるようにドリル穴あけ法によって作製した。次いで、デスミア及び無電解めっきを施し、電解めっきを用いてスルーホール中に電解めっきを施した。
その結果、銅厚を含む板厚が０．２ｍｍ、直径が０．１ｍｍ、５ｍｍ間隔で２５個×２５個のスルーホールを有する回路基板を得た。

次に、保護フィルムを剥がした接着フィルム１～１２を、樹脂組成物層が回路基板の回路面側と対向するように配置した後、バッチ式の真空ラミネーター「ＭＶＬ－５００」（株式会社名機製作所製、商品名）を用いてラミネートによって積層した。この際の真空度は３０ｍｍＨｇであり、温度は９０℃、圧力は０．５ＭＰａの設定とした。

室温に冷却後、両面に接着フィルムが付いたスルーホールを有する回路基板を１ｍｍの厚さのアルミ板２枚で挟み、前記真空ラミネーターを用いてラミネートを行った。この際の真空度は３０ｍｍＨｇであり、温度は９０℃、圧力は０．７ＭＰａの設定とした。

室温に冷却後、支持体フィルムを剥がし（接着フィルム７については、支持体フィルム２のうち、ＰＥＴとその上に形成した樹脂層の間で剥がれた）、１８０℃の乾燥機中で１２０分間硬化した。こうして、埋め込み性評価基板１～１２を得た。

【０１７３】

作製した埋め込み性評価基板１～１２を用いて、次の方法により埋め込み性を評価した。

株式会社ミツトヨ製の接触式の表面粗さ計「ＳＶ２１００」（商品名）を用い、埋め込み性評価基板１～１２のスルーホール部分表面の段差を測定した。段差は、スルーホールの表面の中心部分が１０個入るように測定し、１０個の凹みの平均値を計算した。

【０１７４】

【表１】

配合表及び接着フィルムの材料

		濃度(%)	配合量	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
エポキシ樹脂	NC3000-H	100	質量部	25.8	25.8	25.8	25.8	18.4	33.2	25.8	25.8	0.0	25.8	25.8	66.4	1.5
			固形分質量部	25.8	25.8	25.8	25.8	18.4	33.2	25.8	25.8	0.0	25.8	25.8	66.4	1.5
	N673-80M	80	質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	29.4	0.0	0.0	0.0	0.0
			固形分質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	23.5	0.0	0.0	0.0	0.0
ノボラック型フェノール樹脂	PAPS-PN2	100	質量部	6.3	0.0	6.3	6.3	4.5	8.0	6.3	6.3	7.8	0.0	6.3	16.1	0.4
			固形分質量部	6.3	0.0	6.3	6.3	4.5	8.0	6.3	6.3	7.8	0.0	6.3	16.1	0.4
	PAPS-PN3	100	質量部	0.0	6.3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			固形分質量部	0.0	6.3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	HP-850	100	質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.3	0.0	0.0	0.0
			固形分質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.3	0.0	0.0	0.0
トリアジン変性フェノールノボラック樹脂	LA-1356-60M	60	質量部	4.9	4.8	4.9	4.9	3.5	6.2	4.9	4.9	6.1	4.9	4.9	12.5	0.3
			固形分質量部	2.9	2.9	2.9	2.9	2.1	3.7	2.9	2.9	3.6	2.9	2.9	7.5	0.2
無機充填材	SO-C2（平均粒径:0.5μm）	70	質量部	92.9	92.9	0.0	92.9	107.1	78.6	92.9	92.9	92.9	92.9	0.0	14.3	140.0
			固形分質量部	65.0	65.0	0.0	65.0	75.0	55.0	65.0	65.0	65.0	65.0	0.0	10.0	98.0
	SO-C6（平均粒径:2.2μm）	70	質量部	0.0	0.0	92.9	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			固形分質量部	0.0	0.0	65.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	アエロジルR972（平均粒径：0.02μm）	40	質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	162.5	0.0	0.0
			固形分質量部	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	65.0	0.0	0.0
硬化促進剤	2E4MZ	100	質量部	0.026	0.026	0.026	0.026	0.018	0.033	0.026	0.026	0.023	0.026	0.026	0.066	0.001
			固形分質量部	0.026	0.026	0.026	0.026	0.018	0.033	0.026	0.026	0.023	0.026	0.026	0.066	0.001
追加溶剤	MEK	-	質量部	13.1	13.1	13.1	13.1	9.3	16.8	13.1	13.1	6.7	13.1	56.6	33.6	0.7
固形分濃度	-	-	質量%	77.0	77.0	77.0	77.0	74.9	79.3	77.0	77.0	73.4	77.0	50.1	91.5	70.4
樹脂固形分のうち無機充填材の含有量		-	質量%	65.0	65.0	65.0	65.0	75.0	55.0	65.0	65.0	65.0	65.0	65.0	10.0	98.0
無機充填材の平均粒径		-	μm	0.5	0.5	2.2	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.02	0.5	0.5
支持体フィルム厚さ		-	μm	50	50	50	38	50	50	60	9	9	50	50	50	50
残留溶剤量		-	質量(wt)%	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	9.0	8.0	8.0	8.0	17.0	6.0	15.0
評価結果																
評価項目		評価方法	目標	単位(標記)	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
接着フィルムの取扱い性		ハンドリング性	良好	良・不良	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良	良好	不良
熱膨張係数		TMA	<40	ppm/℃	28	28	28	28	24	35	30	27	27	28	27	52	9
ラミネートによる埋め込み性		段差系	<2.5	μm	1.8	2.1	0.9	1.8	2.3	1.2	2.0	1.8	1.8	3.1	7.2	0.6	6.9

【０１７５】

表１の成分について以下に示す。

［エポキシ樹脂］
・ＮＣ－３０００－Ｈ：ビフェニルノボラック型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）
・Ｎ６７３－８０Ｍ：クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社製、商品名、溶剤；ＭＥＫ、固形分濃度８０質量％）
［ノボラック型フェノール樹脂］
・ＰＡＰＳ－ＰＮ２：ノボラック型フェノール樹脂（旭有機材工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．１７）
・ＰＡＰＳ－ＰＮ３：ノボラック型フェノール樹脂（旭有機材工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．５０）
・ＨＰ－８５０：リン酸ではなく塩酸を使用して製造したノボラック型フェノール樹脂（日立化成株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）
［トリアジン変性フェノールノボラック樹脂］
・ＬＡ－１３５６－６０Ｍ：トリアジン変性フェノールノボラック樹脂（ＤＩＣ株式会社製、商品名、溶剤；ＭＥＫ、固形分濃度６０質量％）
［シリカ充填材］
・ＳＯ－Ｃ２：株式会社アドマテックス製のシリカ「ＳＯ－Ｃ２」（商品名、平均粒径；０．５μｍ）の表面をアミノシランカップリング剤で処理し、さらに、ＭＥＫ溶剤中に分散させたシリカ（固形分濃度７０質量％）
・ＳＯ－Ｃ６：株式会社アドマテックス製のシリカ「ＳＯ－Ｃ６」（商品名、平均粒径；２．２μｍ）の表面をアミノシランカップリング剤で処理し、さらに、ＭＥＫ溶剤中に分散させたシリカ（固形分濃度７０質量％）
・アエロジルＲ９７２：ヒュームドシリカ（日本アエロジル株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、比表面積：１００m^2／ｇ）
［硬化促進剤］
・２Ｅ４ＭＺ：２－エチル－４－メチルイミダゾール（四国化成工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）

【０１７６】
表１から、本発明の接着フィルムは、取扱い性が良好であり、本発明の接着フィルムから、熱膨張係数が低く、埋め込み性に優れる層間絶縁層が得られることが分かる。
一方、本発明の接着フィルムを用いなかった場合、取扱い性、熱膨張係数、埋め込み性のいずれかが劣っていた。
すなわち、第１の発明によれば、熱膨張係数が低く、埋め込み性に優れ、取扱い性に優れた接着フィルムを提供でき、硬化後の熱膨張係数が低い層間絶縁層を提供できることが分かる。

【０１７７】
［２］次に、第２の発明を参考例により、さらに詳細に説明するが、第２の発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

【０１７８】
（シアネートプレポリマーの重量平均分子量）
シアネートプレポリマーの重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により、標準ポリスチレンを用いた検量線から換算して求めた。検量線は、標準ポリスチレン：ＴＳＫｇｅｌ（ＳｕｐｅｒＨＺ２０００、ＳｕｐｅｒＨＺ３０００［東ソー株式会社製］）を用いて３次式で近似した。ＧＰＣの条件を、以下に示す。
・装置：ポンプ：８８０－ＰＵ［日本分光株式会社製］
ＲＩ検出器：８３０－ＲＩ［日本分光株式会社製］
恒温槽：８６０－ＣＯ［日本分光株式会社製］
オートサンプラー：ＡＳ－８０２０［東ソー株式会社製］
・溶離液：テトラヒドロフラン
・試料濃度：３０ｍｇ／５ｍＬ

・注入量：２０μＬ
・流量：１．００ｍＬ／分
・測定温度：４０℃
【０１７９】
［シアネートプレポリマーの合成］
製造例１
５Ｌのセパラブルフラスコに、トルエン１４３６質量部、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパン（ロンザ社製、商品名：プリマセット（Ｐｒｉｍａｓｅｔ）ＢＡＤＣｙ）３３００質量部、ｐ－（α－クミル）フェノール（東京化成工業株式会社製）５０．４０質量部を投入し、溶解させた後、液温を１００℃に保ってから反応促進剤としてナフテン酸亜鉛（和光純薬工業株式会社製、固形分濃度８質量％、ミネラルスピリット溶液）を０．２５質量部配合し、約３時間加熱反応させることにより、固形分濃度が約７０質量％のシアネートプレポリマーの溶液（シアネートプレポリマーの重量平均分子量：３４４１）を得た。
【０１８０】
［支持体付き接着補助層の製造方法］
表２に記載の各成分を配合した後、樹脂成分が溶解するまで十分に撹拌した。次いで、ビーズミル法を用いて分散し、接着補助層用樹脂組成物ワニスを得た。
得られた接着補助層用樹脂組成物ワニスを、ダイコーターを用いて３８μｍ厚さのＰＥＴフィルム「ＮＲ－１」（帝人デュポンフィルム株式会社製、商品名）の処理面側に、塗工後の厚さが３μｍになるように塗布した後、乾燥し、支持体付き接着補助層を得た。使用した原料を表２に示す。
【０１８１】
【表２】

表2

接着補助層用樹脂組成物ワニスの組成			
(g) 成分	NC-7000-L	質量部	48.2
		固形分質量部	48.2
(h) 成分	シアネート プレポリマー	質量部	51.8
		固形分質量部	36.3
(i) 成分	BPAM-155	質量部	63.7
		固形分質量部	6.4
硬化促進剤	2PZ-CN	質量部	0.24
		固形分質量部	0.24
ハジキ防止剤	BYK-310	質量部	0.5
		固形分質量部	0.1
追加溶剤	ｼﾞﾒﾁﾙｱｾﾄｱﾐﾄﾞ	質量部	292

【０１８２】
表２の成分について以下に示す。
［（ｇ）成分］
・ＮＣ－７０００－Ｌ：ナフタレン骨格を含有するノボラック型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、エポキシ当量：２３１ｇ／ｅｑ）
［（ｈ）成分］
・シアネートプレポリマー：製造例１で合成したシアネートプレポリマー
［（ｉ）成分］
・ＢＰＡＭ－１５５：末端にアミノ基を有するゴム変性ポリアミド樹脂（日本化薬株式

会社製、商品名、固形分濃度１００質量％、数平均分子量：２６０００、重量平均分子量：１１００００）
［硬化促進剤］
・２ＰＺ－ＣＮ：１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール（四国化成工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）
［ハジキ防止剤］
・ＢＹＫ－３１０：（ビックケミー・ジャパン株式会社製、商品名、固形分濃度２５質量％、キシレン溶剤希釈）
【０１８３】
［層間絶縁層用樹脂フィルムの作製］
参考例１
表３に記載の各成分を配合したものを、樹脂が溶解するまで５時間混合し、次いで、ビーズミル分散処理を施して、層間絶縁層用樹脂組成物ワニスを得た。
得られた層間絶縁層用樹脂組成物ワニスを、支持体付き接着補助層の接着補助層が塗工された面に、ダイコーターを用いて、塗工後の厚さが３７μｍ（接着補助層と合わせて４０μｍ）になるように塗工し、層間絶縁層用樹脂フィルムを得た。
【０１８４】
参考例２～６、比較参考例１及び２
参考例１において、層間絶縁層用樹脂組成物ワニス組成を表３に示す組成に変更した以外は、参考例１と同様にして、層間絶縁層用樹脂フィルムを得た。
【０１８５】
［測定及び評価方法］
（保存安定性の評価方法）
（１）保存前におけるゲル化時間（ゲル化時間１）の測定
各例で得られた樹脂フィルムから保護フィルムを取り剥がし、支持体から、層間絶縁層用樹脂組成物及び接着補助層用樹脂組成物を含む樹脂組成物を取り出した。その樹脂組成物を１８０℃に設定したＳＵＳプレート製のゲル化試験機（株式会社日新化学研究所製）に投入し、竹串を用いて１秒間に２回転のペースで撹拌し、保存前におけるゲル化するまでの時間（ゲル化時間１）を測定した。
（２）保存後におけるゲル化時間（ゲル化時間２）の測定
各例で得られた樹脂フィルムを５℃で保管し、３０日後に取り出し、室温に戻した後、樹脂フィルムから保護フィルムを取り剥がし、支持体から、樹脂組成物のみを取り出した。得られた樹脂組成物について、ゲル化時間１と同様の方法で、保存後の樹脂組成物がゲル化するまでの時間（ゲル化時間２）を測定した。
（３）ゲル化時間の保存率の算出
ゲル化時間１とゲル化時間２を用いて、下記式によりゲル化時間の保存率を算出した。
ゲル化時間の保存率（％）＝（ゲル化時間２／ゲル化時間１）×１００
ゲル化時間の保存率が大きいほど、保存安定性に優れる。結果を表３に示す。
【０１８６】
（スミア除去性の評価方法）
各例で得られた樹脂フィルムについて、以下の手順（１）～（６）に従って、スミア（樹脂残渣）除去性の評価を行った。結果を表３に示す。
【０１８７】
（１）回路基板の作製
ガラス布基材エポキシ樹脂の両面銅張積層板（日立化成株式会社製、商品名：ＭＣＬ－Ｅ－７００Ｇ（Ｒ）、銅箔の厚さ１２μｍ、基材厚み０．４ｍｍ）の両面に、エッチングにより回路パターンを形成し、さらにメック株式会社製「メックエッチボンドＣ（登録商標）ＣＺ８１０１」を用いて粗化処理を行った。さらに、メック株式会社製「メックエッチボンド（登録商標）ＣＬ－８３０１」を用いて防錆処理を行った。これにより、回路基板を作製した。

（２）層間絶縁層の積層方法
各例で作製した樹脂フィルムから保護フィルムを剥がし、層間絶縁層用樹脂組成物層が回路基板の回路面側になるように配置して、バッチ式真空加圧ラミネーター「ＭＶＬＰ－５００」（株式会社名機製作所製、商品名）を用いて、（１）で作製した回路基板の両面に積層した。ラミネートは３０秒間減圧して、気圧を１５ｈＰａ以下とした後、１００℃で３０秒間、圧力０．５ＭＰａで圧着させることにより行った。
（３）層間絶縁層の硬化
（２）で得られた試料を室温に冷却した後、支持体（ＰＥＴフィルム）を剥離した。その後、１３０℃で２０分間、次いで、１８０℃で４０分間加熱し、層間絶縁層樹脂組成物層を硬化して層間絶縁層を形成した。
（４）ビアホールの形成方法
ビアメカニクス株式会社製CO_2レーザー加工機「ＬＣ－２Ｆ２１Ｂ」を使用して、周波数２０００ｋＨｚ、パルス幅が１５μｓ、ショット数４のバーストモードで層間絶縁層を加工して、層間絶縁層表面におけるビアホールのトップ径（直径）が７０μｍ、層間絶縁層底面におけるビアホール底部の直径が６０μｍのビアホールを形成した（テーパ率（ビアボトム／ビアトップ）は約８６％）。
（５）デスミア処理方法
ビアホールを形成した試料を、７０℃に加温した膨潤液「スウェリングディップセキュリガントＰ」（アトテックジャパン株式会社製）に１０分間浸漬処理した。次に、８０℃に加温した粗化液「コンセントレートコンパクトＣＰ」（アトテックジャパン株式会社製）に１０分間浸漬処理し、引き続き、４０℃に加温した中和液「リダクション　セキュリガント　Ｐ５００」（アトテックジャパン株式会社製）に５分間浸漬処理して中和した。
（６）スミア除去性の評価方法
デスミア処理後のビアホールの底部の周囲を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）（株式会社日立製作所製、商品名：Ｓ－４７００）を用いて観察し、得られた画像からビアホール底部の壁面からの最大スミア長を測定した。
【０１８８】
（リフロー耐熱性評価用基板の作製方法と評価方法）
リフロー耐熱性評価は以下の手順（１）～（３）に従って行った。結果を表３に示す。
【０１８９】
（１）無電解めっき処理
リフロー耐熱性評価用基板を作製するにあたって、前記スミア除去性の評価方法において示したデスミア処理後の基板のうち、レーザー加工処理が施されていない部分を試料として準備した。
該試料を、まず、６０℃のアルカリクリーナーである「クリーナーセキュリガント９０２」（アトテックジャパン株式会社製、商品名）で５分間処理し、脱脂洗浄した。洗浄後、２３℃のプリディップ液である「プリディップネオガントＢ」（アトテックジャパン株式会社製、商品名）で２分間処理した。その後、４０℃のアクチベーター液である「アクチベーターネオガント８３４」（アトテックジャパン株式会社製、商品名）で５分間処理を施し、パラジウム触媒を付けた。次に、３０℃の還元液である「リデューサーネオガントＷＡ」（アトテックジャパン株式会社製、商品名）に５分間処理した。次に、化学銅液［「ベーシックプリントガントＭＳＫ－ＤＫ」、「カッパーソリューションプリントガントＭＳＫ」、「スタビライザープリントガントＭＳＫ」］（全てアトテックジャパン株式会社製、商品名）に入れ、無電解めっきをめっき厚さが０．５μｍ程度になるまで実施した。無電解めっき後に、めっき皮膜中に残存している応力を緩和させるため、及び残留している水素ガスを除去するために、１２０℃で１５分間ベーク処理を施した。
（２）電解めっき処理
次に、無電解めっき処理された基板に、めっき厚さが約３０μｍになるように約１．５Ａ／dm^2、１時間電解めっきを行った。電解めっき後に、１９０℃で９０分間加熱処理を施した。室温に冷却後、４０ｍｍ×４０ｍｍのサイズに切断して、リフロー耐熱性評価

用基板を各１０枚作製した。
（３）リフロー耐熱性評価試験
リフロー装置は、株式会社タムラ製作所製のエアーリフローシステム（型番：ＴＡＲ３０－３６６ＰＮ）を用い、送り速度を０．６１ｍ／分とし、リフロー装置内を最大で２６０℃になるように設定したものを用いた。上記で得られたリフロー耐熱性評価用基板を、リフロー装置に最大で２００回通し、膨れが発生するまでの通過回数を調べ、試料１０枚の平均値を平均リフロー通過回数とした。
【０１９０】
【表３】

表3

			参考例						参考比較例	
			1	2	3	4	5	6	1	2
(a)成分	N673	質量部	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9
		固形分質量部	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9	116.9
	N730-A	質量部	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7
		固形分質量部	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7	32.7
(b)成分	シアネート プレポリマー	質量部	58.2	58.2	58.2	58.2	58.2	58.2	58.2	58.2
		固形分質量部	40.7	40.7	40.7	40.7	40.7	40.7	40.7	40.7
(c)成分	HPC-8000-65T	質量部	164.6	164.6	164.6	164.6	164.6	164.6	164.6	164.6
		固形分質量部	107.0	107.0	107.0	107.0	107.0	107.0	107.0	107.0
(d)成分	YX7200B35	質量部	28.0	28.0	28.0	28.0	28.0	28.0	28.0	28.0
		固形分質量部	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8
(e)成分	ビニルシラン 処理品	質量部	987.8	740.8	493.9	246.9	0	493.9	0	0
		固形分質量部	691.4	518.6	345.7	172.9	0	345.7	0	0
	エポキシシラン 処理品	質量部	0	246.9	493.9	740.8	987.8	0	0	0
		固形分質量部	0	172.9	345.7	518.6	691.4	0	0	0
比較用成分	アミノシラン 処理品	質量部	0	0	0	0	0	493.9	987.8	0
		固形分質量部	0	0	0	0	0	345.7	691.4	0
	未処理品	質量部	0	0	0	0	0	0	0	987.8
		固形分質量部	0	0	0	0	0	0	0	691.4
(f)成分	2PZ-CN	質量部	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6
		固形分質量部	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6
ﾊｼﾞｷ防止剤	BYK-310	質量部	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
		固形分質量部	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
評価結果	ゲル化時間の保存率(%)		82	78	72	68	64	52	38	86
	最大スミア長(μm)		1.8	2.8	3.1	3.9	4.5	1.2	1.5	1.3
	リフロー通過回数(回)		7	11	12	14	19	14	24	2

【０１９１】
表３の成分について以下に示す。
［（ａ）成分］
・Ｎ６７３：クレゾールノボラック型のエポキシ樹脂「エピクロン（登録商標）Ｎ６７３」（ＤＩＣ株式会社製、商品名、エポキシ当量：２１０ｇ／ｅｑ、固形分濃度１００質量％）
・Ｎ７３０－Ａ：フェノールノボラック型エポキシ樹脂「エピクロン（登録商標）Ｎ７３０－Ａ」（ＤＩＣ株式会社製、商品名、エポキシ当量：１７６ｇ／ｅｑ、固形分濃度１００質量％）
［（ｂ）成分］
・シアネートプレポリマー：製造例１で合成したシアネートプレポリマー
［（ｃ）成分］
・ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ：（ＤＩＣ株式会社製、商品名、活性エステル当量：２２

３ｇ／ｅｑ、固形分濃度６５質量％）
［（ｄ）成分］
・ＹＸ７２００Ｂ３５：（三菱化学株式会社製、商品名、固形分濃度３５質量％、ＭＥＫカット）
［（ｅ）成分］
・平均粒径が０．５μｍの溶融シリカである「ＳＯ－Ｃ２」（株式会社アドマテックス製、商品名）を、以下に示すシランカップリング剤で処理を施し、ＭＥＫ中に、固形分濃度が７０質量％になるように分散させたシリカスラリー。なお、各シランカップリング剤は、「ＳＯ－Ｃ２」１０００質量部に対して２０質量部使用した。
・ビニルシラン処理品：「ＫＢＭ－１００３」（信越化学工業株式会社製、商品名、化学名：ビニルトリメトキシシラン）
・エポキシシラン処理品：「ＫＢＭ－４０３」（信越化学工業株式会社製、商品名、化学名：３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン）
・アミノシラン処理品：「ＫＢＭ－５７３」（信越化学工業株式会社製、商品名、化学名：Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン）
［比較用成分］
・平均粒径が０．５μｍの溶融シリカである「ＳＯ－Ｃ２」（株式会社アドマテックス製、商品名）を、ＭＥＫ中に、固形分濃度が７０質量％になるように分散させたシリカスラリー。
［（ｆ）成分］
・２ＰＺ－ＣＮ：１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール（四国化成工業株式会社製、商品名、固形分濃度１００質量％）
［ハジキ防止剤］
・ＢＹＫ－３１０：（ビックケミー・ジャパン株式会社製、商品名、固形分濃度２５質量％、キシレン溶剤希釈）

【０１９２】
表３から、本発明の樹脂組成物は保存安定性に優れ、得られる層間絶縁層が、リフロー耐熱性及びスミア除去性に優れることが分かる。

【産業上の利用可能性】

【０１９３】
本発明の樹脂組成物は保存安定性に優れ、得られる層間絶縁層が、リフロー耐熱性及びスミア除去性に優れるため、半導体実装時の歩留まりが高い多層プリント配線板を提供できる。
そのため、本発明の樹脂組成物は、コンピューター、携帯電話、デジタルカメラ、テレビ等の電気製品、並びに自動二輪車、自動車、電車、船舶、航空機等の乗り物など、幅広く利用可能である。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
Ｃ０９Ｊ 163/00	*(2006.01)*	Ｃ０９Ｊ 163/00		
Ｃ０９Ｊ 11/04	*(2006.01)*	Ｃ０９Ｊ 11/04		
Ｈ０５Ｋ 3/46	*(2006.01)*	Ｈ０５Ｋ 3/46	Ｔ	

(72)発明者 菅原 郁夫
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 横島 廣幸
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 富岡 健一
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 鈴川 喬之
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 笠原 彩
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 手塚 祐貴
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 入野 哲朗
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内
(72)発明者 加藤 亮
東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内

Ｆターム(参考) 4J002 CC042 CC073 CD031 CD051 CD061 DE076 DE136 DE146 DE186 DE236
DG046 DJ016 DJ036 DJ046 DJ056 DK006 FD016 FD142 FD143 GJ01
4J004 AA12 AA13 AB01 CA06 CB03 FA08
4J036 AD07 AD08 AD21 AE05 AF05 AF06 AF08 AF26 AJ08 FA01
FA03 FA04 FA05 FB07 FB08 JA06
4J040 EB031 EC081 HA306 JA03 JB05 KA03 KA36 KA42 LA01 LA03
NA19 PA23
5E316 AA16 CC41 DD02 EE38 HH40