

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7565982号
(P7565982)

(45)発行日 令和6年10月11日(2024.10.11)

(24)登録日 令和6年10月3日(2024.10.3)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 8 L	63/00 (2006.01)	C 0 8 L	63/00 C
C 0 8 G	59/42 (2006.01)	C 0 8 G	59/42
C 0 8 K	3/013(2018.01)	C 0 8 K	3/013
C 0 8 K	3/36 (2006.01)	C 0 8 K	3/36
C 0 8 K	5/3415(2006.01)	C 0 8 K	5/3415
請求項の数 18 (全36頁) 最終頁に続く			
(21)出願番号	特願2022-128013(P2022-128013)	(73)特許権者	000002174
(22)出願日	令和4年8月10日(2022.8.10)		積水化学工業株式会社
(62)分割の表示	特願2018-192627(P2018-192627)の分割	(74)代理人	大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 110001232
原出願日	平成30年10月11日(2018.10.11)		弁理士法人大阪フロント特許事務所
(65)公開番号	特開2022-161968(P2022-161968 A)	(72)発明者	前中 寛
(43)公開日	令和4年10月21日(2022.10.21)		茨城県つくば市和台3 2 積水化学工業 株式会社内
審査請求日	令和4年9月6日(2022.9.6)	(72)発明者	川原 悠子
前置審査			東京都港区虎ノ門2-1 0-4 積水化 学工業株式会社内
		(72)発明者	林 達史
			茨城県つくば市和台3 2 積水化学工業 株式会社内
		(72)発明者	久保 顕紀子
			最終頁に続く

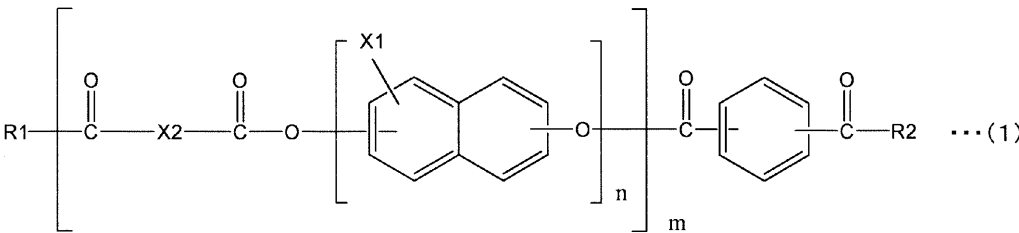
(54)【発明の名称】 樹脂材料及び多層プリント配線板

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

エポキシ化合物と、無機充填材と、硬化剤とを含み、
前記硬化剤は、下記式（1）で表される構造を有する活性エステル化合物を含み、
前記硬化剤は、側鎖を有さない活性エステル化合物を含み、
樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、前記無機充填材の含有量が55重量%以上である、樹脂材料（但し、繊維基材に含浸して用いられる樹脂材料を除く）。

【化1】



前記式（1）中、R1及びR2はそれぞれ、有機基を表し、X1は、芳香族骨格を有する基を表し、該芳香族骨格を有する基は、反応性基を有さない有機基であり、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

【請求項 2】

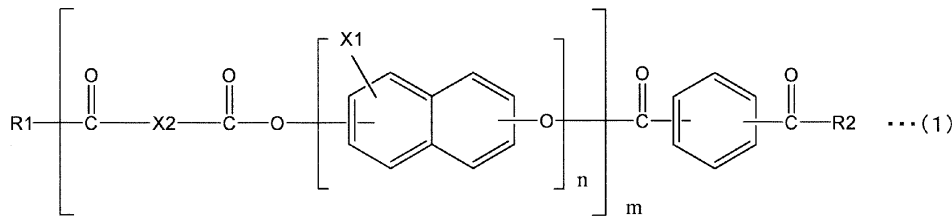
エポキシ化合物と、無機充填材と、硬化剤とを含み、

前記硬化剤は、下記式（1）で表される構造を有する活性エステル化合物を含み、

前記硬化剤は、カルボジイミド化合物を含み、

樹脂材料中の溶剤を除く成分 100 重量%中、前記無機充填材の含有量が 55 重量%以上である、樹脂材料（但し、繊維基材に含浸して用いられる樹脂材料を除く）。

【化 2】



10

前記式（1）中、R1及びR2はそれぞれ、有機基を表し、X1は、芳香族骨格を有する基を表し、該芳香族骨格を有する基は、反応性基を有さない有機基であり、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

【請求項 3】

20

前記式（1）中、X1が、芳香族骨格を2個以上有する基である、請求項1又は2に記載の樹脂材料。

【請求項 4】

前記式（1）中、R1又はR2が、複素芳香環骨格を有する基である、請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 5】

前記式（1）中、R1又はR2が、イミド骨格を有する基である、請求項1～4のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 6】

前記式（1）中、R1又はR2が、ナフタレン骨格を有する基である、請求項1～5のいずれか1項に記載の樹脂材料。

30

【請求項 7】

前記式（1）中、R1、R2、X1及びX2がそれぞれ、リン原子を有さない基である、請求項1～6のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 8】

前記式（1）中、R1、R2、X1及びX2がそれぞれ、炭素数が2以上4以下である脂肪族炭化水素鎖を有さない基である、請求項1～7のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 9】

100℃における熔融粘度が5Pa・s以上500Pa・s以下である、請求項1～8のいずれか1項に記載の樹脂材料。

40

【請求項 10】

前記式（1）で表される構造を有する活性エステル化合物の活性エステル当量が200eq/g以上500eq/g以下である、請求項1～9のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 11】

前記エポキシ化合物が、ナフトールアラルキル型エポキシ化合物を含む、請求項1～10のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 12】

前記無機充填材がシリカである、請求項1～11のいずれか1項に記載の樹脂材料。

【請求項 13】

硬化促進剤を含む、請求項1～12のいずれか1項に記載の樹脂材料。

50

【請求項 14】

ビスマレイミド化合物を含む、請求項 1 ～ 13 のいずれか 1 項に記載の樹脂材料。

【請求項 15】

熱可塑性樹脂を含む、請求項 1 ～ 14 のいずれか 1 項に記載の樹脂材料。

【請求項 16】

樹脂フィルムである、請求項 1 ～ 15 のいずれか 1 項に記載の樹脂材料。

【請求項 17】

多層プリント配線板において、絶縁層を形成するために用いられる、請求項 1 ～ 16 のいずれか 1 項に記載の樹脂材料。

【請求項 18】

回路基板と、

前記回路基板の表面上に配置された複数の絶縁層と、

複数の前記絶縁層間に配置された金属層とを備え、

複数の前記絶縁層の内の少なくとも 1 層が、請求項 1 ～ 17 のいずれか 1 項に記載の樹脂材料の硬化物である、多層プリント配線板。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、エポキシ化合物を含む樹脂材料に関する。また、本発明は、上記樹脂材料を用いた多層プリント配線板に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、半導体装置、積層板及びプリント配線板等の電子部品を得るために、様々な樹脂材料が用いられている。例えば、多層プリント配線板では、内部の層間を絶縁するための絶縁層を形成したり、表層部分に位置する絶縁層を形成したりするために、樹脂材料が用いられている。上記絶縁層の表面には、一般に金属である配線が積層される。また、上記絶縁層を形成するために、上記樹脂材料がフィルム化された樹脂フィルムが用いられることがある。上記樹脂材料及び上記樹脂フィルムは、ビルドアップフィルムを含む多層プリント配線板用の絶縁材料等として用いられている。

【0003】

上記樹脂材料の一例として、下記の特許文献 1 には、特定の構造部位を有し且つその両末端が一価のアリールオキシ基である樹脂構造を有する活性エステル樹脂と、エポキシ樹脂とを含む熱硬化性樹脂組成物が開示されている。また、特許文献 1 の実施例では、上記熱硬化性樹脂組成物は、ガラスクロスに含浸させて用いられている。

【0004】

また、下記の特許文献 2 には、特定の構造を有する活性エステル樹脂と、エポキシ樹脂とを含む樹脂組成物が開示されている。また、特許文献 2 の実施例では、上記樹脂組成物をガラスクロスは、含浸させて用いられている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】WO 2016 / 098488 A1

【文献】特開 2018 - 080264 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

従来の樹脂材料では、該樹脂材料の保存安定性が低くなることがある。例えば、従来の樹脂材料では、保存前の樹脂材料と比べて、保存後の樹脂材料の溶融粘度が上昇することがある。また、従来の樹脂材料では、保存前の樹脂材料と比べて、保存後の樹脂材料を用いた際に、基板等の凹凸に対する埋め込み性（パターン埋め込み性）が低下したり、微細

10

20

30

40

50

な配線を形成させることが困難となったりすることがある。

【0007】

絶縁層（硬化物）の誘電正接を低くするために、樹脂材料に無機充填材が多く配合されることがある。しかしながら、無機充填材が多く配合された樹脂材料では、該樹脂材料の保存安定性が低下しやすい。特許文献1の実施例では、無機充填材は用いられていない。また、特許文献2の実施例では、樹脂材料100重量%に対して無機充填材の配合量が50重量%で用いられているにすぎない。特許文献1，2に記載の樹脂材料であっても、無機充填材の配合量を多くした場合には、該樹脂材料の保存安定性が低下することがある。

【0008】

また、従来の樹脂材料を用いて絶縁層（硬化物）を形成した場合に、熱衝撃により絶縁層にひび又は割れが生じることがある。絶縁層にひび又は割れが生じた場合には、導通信頼性が低下する。

【0009】

本発明の目的は、保存安定性に優れ、かつ熱衝撃を受けても硬化物のひび又は割れが生じにくい樹脂材料を提供することである。また、本発明は、上記樹脂材料を用いた多層プリント配線板を提供することも目的とする。

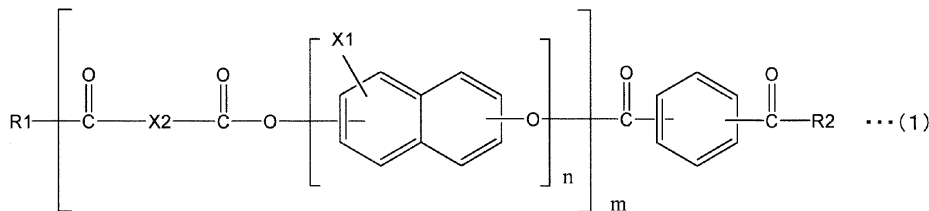
【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明の広い局面によれば、エポキシ化合物と、無機充填材と、硬化剤とを含み、前記硬化剤は、下記式（1）で表される構造を有する活性エステル化合物を含み、樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、前記無機充填材の含有量が55重量%以上である、樹脂材料（但し、繊維基材に含浸して用いられる樹脂材料を除く）が提供される。

【0011】

【化1】



【0012】

前記式（1）中、R1、R2及びX1はそれぞれ、有機基を表し、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

【0013】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式（1）中、X1が、炭素数が5以上の有機基である。

【0014】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式（1）中、X1が、芳香族骨格を有する基である。

【0015】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式（1）中、X1が、芳香族骨格を2個以上有する基である。

【0016】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式（1）中、X1が、反応性基を有さない基である。

【0017】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式（1）中、R1又はR2が、複素芳香環骨格を有する基である。

【0018】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式(1)中、R1又はR2が、イミド骨格を有する基である。

【0019】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式(1)中、R1又はR2が、ナフタレン骨格を有する基である。

【0020】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式(1)中、R1、R2、X1及びX2がそれぞれ、リン原子を有さない基である。

【0021】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式(1)中、R1、R2、X1及びX2がそれぞれ、炭素数が2以上4以下である脂肪族炭化水素鎖を有さない基である。

【0022】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、100℃における熔融粘度が5Pa・s以上500Pa・s以下である。

【0023】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記硬化剤が、側鎖を有さない活性エステル化合物を含む。

【0024】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記硬化剤が、カルボジイミド化合物を含む。

【0025】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物の活性エステル当量が200eq/g以上500eq/g以下である。

【0026】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記エポキシ化合物が、ナフトールアラキル型エポキシ化合物を含む。

【0027】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記無機充填材がシリカである。

【0028】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記樹脂材料は、硬化促進剤を含む。

【0029】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記樹脂材料は、ビスマレイミド化合物を含む。

【0030】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記樹脂材料は、熱可塑性樹脂を含む。

【0031】

本発明に係る樹脂材料のある特定の局面では、前記樹脂材料は、樹脂フィルムである。

【0032】

本発明に係る樹脂材料は、多層プリント配線板において、絶縁層を形成するために好適に用いられる。

【0033】

本発明の広い局面によれば、回路基板と、前記回路基板の表面上に配置された複数の絶縁層と、複数の前記絶縁層間に配置された金属層とを備え、複数の前記絶縁層の内の少なくとも1層が、上述した樹脂材料の硬化物である、多層プリント配線板が提供される。

【発明の効果】

【0034】

本発明に係る樹脂材料は、エポキシ化合物と、無機充填材と、硬化剤とを含み、上記硬化剤は、式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物を含み、樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記無機充填材の含有量が55重量%以上である。本発明に

10

20

30

40

50

係る樹脂材料では、上記の構成が備えられているので、保存安定性に優れ、かつ熱衝撃を受けても硬化物のひび又は割れが生じにくい。

【図面の簡単な説明】

【0035】

【図1】図1は、本発明の一実施形態に係る樹脂材料を用いた多層プリント配線板を模式的に示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0036】

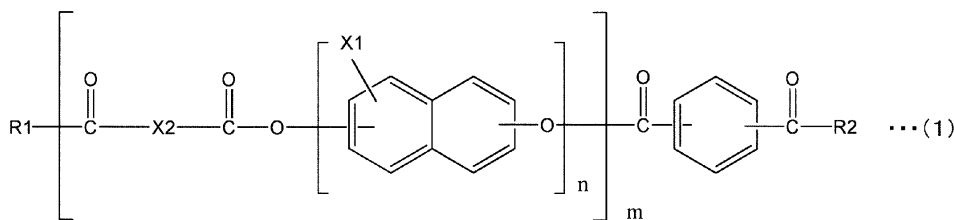
以下、本発明を詳細に説明する。

【0037】

本発明に係る樹脂材料は、エポキシ化合物と、無機充填材と、硬化剤とを含み、上記硬化剤は、下記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物を含み、樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記無機充填材の含有量が55重量%以上である、樹脂材料(但し、繊維基材に含浸して用いられる樹脂材料を除く)である。

【0038】

【化2】



【0039】

上記式(1)中、R1、R2及びX1はそれぞれ、有機基を表し、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

【0040】

本発明に係る樹脂材料では、上記の構成が備えられているので、保存安定性に優れ、かつ熱衝撃を受けても硬化物のひび又は割れが生じにくい。

【0041】

また、本発明に係る樹脂材料では、上記の構成が備えられているので、硬化物の誘電正接を低くすることができる。

【0042】

本発明に係る樹脂材料は、繊維基材に含浸して用いられる樹脂材料とは異なる。樹脂材料が繊維基材に含浸された含浸基材は、例えば、プリプレグである。本発明に係る樹脂材料は、プリプレグと異なる用途に用いることができる。上記繊維基材としては、ガラス繊維等の無機繊維、及びポリエステル繊維等の有機繊維等が挙げられる。したがって、本発明に係る樹脂材料は上記無機繊維及び上記有機繊維に含浸して用いられる樹脂材料とは異なる。

【0043】

本発明に係る樹脂材料は、樹脂組成物であってもよく、樹脂フィルムであってもよい。上記樹脂組成物は、流動性を有する。上記樹脂組成物は、ペースト状であってもよい。上記ペースト状には液状が含まれる。取扱性に優れることから、本発明に係る樹脂材料は、樹脂フィルムであることが好ましい。

【0044】

樹脂材料が樹脂フィルムである場合には、保存安定性がより一層低下しやすい。本発明に係る樹脂材料では、該樹脂材料が樹脂フィルムである場合でも、保存安定性を高めることができる。

【0045】

本発明に係る樹脂材料は、熱硬化性材料であることが好ましい。上記樹脂材料が樹脂フィルムである場合には、該樹脂フィルムは、熱硬化性樹脂フィルムであることが好ましい。

【0046】

以下、本発明に係る樹脂材料に用いられる各成分の詳細、及び本発明に係る樹脂材料の用途などを説明する。

【0047】

〔エポキシ化合物〕

上記樹脂材料は、エポキシ化合物を含む。上記エポキシ化合物は、少なくとも1個のエポキシ基を有する有機化合物をいう。上記エポキシ化合物として、従来公知のエポキシ化合物を使用可能である。上記エポキシ化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0048】

上記エポキシ化合物としては、ビスフェノールA型エポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、ビスフェノールS型エポキシ化合物、フェノールノボラック型エポキシ化合物、ビフェニル型エポキシ化合物、ビフェニルノボラック型エポキシ化合物、ビフェノール型エポキシ化合物、ナフタレン型エポキシ化合物、フルオレン型エポキシ化合物、フェノールアラルキル型エポキシ化合物、ナフトールアラルキル型エポキシ化合物、ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物、アントラセン型エポキシ化合物、アダマンタン骨格を有するエポキシ化合物、トリシクロデカン骨格を有するエポキシ化合物、ナフチレンエーテル型エポキシ化合物、及びトリアジン核を骨格に有するエポキシ化合物等が挙げられる。

【0049】

誘電正接を低くし、かつ硬化物の熱寸法安定性及び難燃性を高める観点からは、上記エポキシ化合物は、芳香族骨格を有するエポキシ化合物を含むことが好ましく、ナフタレン骨格又はフェニル骨格を有するエポキシ化合物を含むことがより好ましく、ナフチレンエーテル骨格を有するエポキシ化合物を含むことが更に好ましい。上記ナフチレンエーテル骨格とは、ナフタレン環を構成している炭素原子に酸素原子が結合している骨格をいう。

【0050】

誘電正接をより一層低くし、かつ硬化物の熱寸法安定性及び難燃性をより一層高める観点からは、上記エポキシ化合物は、ナフトールアラルキル型エポキシ化合物（ナフチレンエーテル骨格を有するエポキシ化合物）を含むことが好ましい。

【0051】

上記ナフトールアラルキル型エポキシ化合物は、上記ナフチレンエーテル骨格を1個以上有することが好ましく、2個以上有することがより好ましく、3個以上有することが更に好ましく、4個以上有することが特に好ましい。上記ナフチレンエーテル骨格の数が上記下限以上であると、誘電正接をより一層低くすることができる。

【0052】

誘電正接をより一層低くし、かつ硬化物の線膨張係数(CTE)を良好にする観点からは、上記エポキシ化合物は、25℃で液状のエポキシ化合物と、25℃で固形のエポキシ化合物とを含むことが好ましい。

【0053】

上記25℃で液状のエポキシ化合物の25℃での粘度は、1000mPa・s以下であることが好ましく、500mPa・s以下であることがより好ましい。

【0054】

上記エポキシ化合物の粘度は、例えば動的粘弾性測定装置（レオロジカ・インスツルメンツ社製「VAR-100」）等を用いて測定することができる。

【0055】

上記エポキシ化合物の分子量は1000以下であることがより好ましい。この場合には、樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、無機充填材の含有量が55重量%以上で

10

20

30

40

50

あっても、絶縁層の形成時に流動性が高い樹脂材料が得られる。このため、樹脂材料の未硬化物又はBステージ化合物を回路基板上にラミネートした場合に、無機充填材を均一に存在させることができる。

【0056】

上記エポキシ化合物の分子量は、上記エポキシ化合物が重合体ではない場合、及び上記エポキシ化合物の構造式が特定できる場合には、当該構造式から算出できる分子量を意味する。また、上記エポキシ化合物の分子量は、上記エポキシ化合物が重合体である場合には、重量平均分子量を意味する。

【0057】

硬化物の熱寸法安定性をより一層高める観点からは、樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記エポキシ化合物の含有量は、好ましくは10重量%以上、より好ましくは15重量%以上であり、好ましくは45重量%未満、より好ましくは40重量%以下である。

【0058】

樹脂材料中の無機充填材及び溶剤を除く成分100重量%中、上記エポキシ化合物の含有量は、好ましくは10重量%以上、より好ましくは15重量%以上、更に好ましくは25重量%以上、特に好ましくは30重量%以上である。樹脂材料中の無機充填材及び溶剤を除く成分100重量%中、上記エポキシ化合物の含有量は、好ましくは60重量%以下、より好ましくは50重量%以下、更に好ましくは45重量%以下、特に好ましくは40重量%以下である。上記エポキシ化合物の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、硬化物の熱寸法安定性をより一層高めることができる。

【0059】

〔無機充填材〕

上記樹脂材料は、無機充填材を含む。上記無機充填材の使用により、硬化物の誘電正接をより一層低くすることができる。また、上記無機充填材の使用により、硬化物の熱による寸法変化がより一層小さくなる。上記無機充填材は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0060】

上記無機充填材としては、シリカ、タルク、クレイ、マイカ、ハイドロタルサイト、アルミナ、酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、及び窒化ホウ素等が挙げられる。

【0061】

硬化物の表面の表面粗さを小さくし、硬化物と金属層との接着強度をより一層高くし、かつ硬化物の表面により一層微細な配線を形成し、かつ硬化物により良好な絶縁信頼性を付与する観点からは、上記無機充填材は、シリカ又はアルミナであることが好ましく、シリカであることがより好ましく、熔融シリカであることが更に好ましい。シリカの使用により、硬化物の熱膨張率がより一層低くなり、また、硬化物の誘電正接がより一層低くなる。また、シリカの使用により、硬化物の表面の表面粗さが効果的に小さくなり、硬化物と金属層との接着強度が効果的に高くなる。シリカの形状は球状であることが好ましい。

【0062】

硬化環境によらず、樹脂の硬化を進め、硬化物のガラス転移温度を効果的に高くし、硬化物の熱線膨張係数を効果的に小さくする観点からは、上記無機充填材は球状シリカであることが好ましい。

【0063】

上記無機充填材の平均粒径は、好ましくは50nm以上、より好ましくは100nm以上、更に好ましくは500nm以上であり、好ましくは5μm以下、より好ましくは3μm以下、更に好ましくは1μm以下である。上記無機充填材の平均粒径が上記下限以上及び上記上限以下であると、エッチング後の表面粗度を小さくし、かつメッキピール強度を高くすることができ、また、絶縁層と金属層との密着性をより一層高めることができる。

【0064】

上記無機充填材の平均粒径として、50%となるメディアン径（ d_{50} ）の値が採用される。上記平均粒径は、レーザー回折散乱方式の粒度分布測定装置を用いて測定可能である。

【0065】

上記無機充填材は、球状であることが好ましく、球状シリカであることがより好ましい。この場合には、硬化物の表面の表面粗さが効果的に小さくなり、更に硬化物と金属層との接着強度が効果的に高くなる。上記無機充填材が球状である場合には、上記無機充填材のアスペクト比は好ましくは2以下、より好ましくは1.5以下である。

【0066】

上記無機充填材は、表面処理されていることが好ましく、カップリング剤による表面処理物であることがより好ましく、シランカップリング剤による表面処理物であることが更に好ましい。上記無機充填材が表面処理されていることにより、粗硬化物の表面の表面粗さがより一層小さくなり、硬化物と金属層との接着強度がより一層高くなる。また、上記無機充填材が表面処理されていることにより、硬化物の表面により一層微細な配線を形成することができ、かつより一層良好な配線間絶縁信頼性及び層間絶縁信頼性を硬化物に付与することができる。

【0067】

上記カップリング剤としては、シランカップリング剤、チタンカップリング剤及びアルミニウムカップリング剤等が挙げられる。上記シランカップリング剤としては、メタクリルシラン、アクリルシラン、アミノシラン、イミダゾールシラン、ビニルシラン、及びエポキシシラン等が挙げられる。

【0068】

樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記無機充填材の含有量は55重量%以上である。

【0069】

樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記無機充填材の含有量は、好ましくは60重量%以上、より好ましくは65重量%以上、特に好ましくは68重量%以上、好ましくは90重量%以下、より好ましくは85重量%以下、更に好ましくは80重量%以下、特に好ましくは75重量%以下である。上記無機充填材の含有量が上記下限以上であると、誘電正接が効果的に低くなる。上記無機充填材の含有量が上記上限以下であると、樹脂材料の保存安定性を高めることができ、また、硬化物の熱寸法安定性を高めることができる。上記無機充填材の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、硬化物の表面の表面粗さをより一層小さくすることができ、かつ硬化物の表面により一層微細な配線を形成することができる。さらに、この無機充填材の含有量であれば、硬化物の熱膨張率を低くすることと同時に、スミア除去性を良好にすることも可能である。

【0070】

〔硬化剤〕

上記樹脂材料は、硬化剤を含む。上記硬化剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0071】

<第1の活性エステル化合物>

上記樹脂材料は、硬化剤として、下記式（1）で表される構造を有する活性エステル化合物（以下、「第1の活性エステル化合物」と記載することがある）を含む。上記第1の活性エステル化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0072】

10

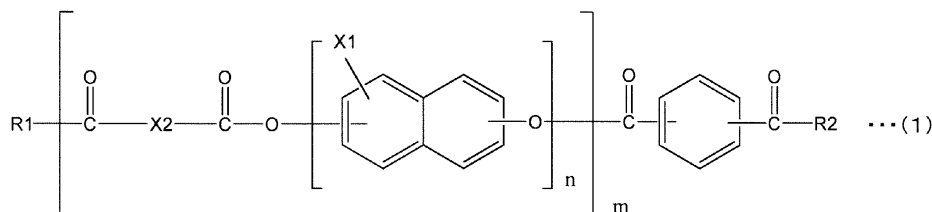
20

30

40

50

【化 3】



【0073】

上記式（1）中、R1、R2及びX1はそれぞれ、有機基を表し、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

【0074】

上記式（1）中、mは、好ましくは2以上、好ましくは4以下である。

【0075】

上記式（1）中、nは、好ましくは3以下である。

【0076】

上記式（1）中、X1は、同一の構造単位が繰り返された基であってもよい。上記式（1）中、X1が同一の構造単位が繰り返された基である場合、該構造単位の繰り返し数は、1以上6以下であることが好ましい。

【0077】

上記式（1）中、X1は、炭素数が5以上の有機基であることが好ましく、炭素数が7以上の有機基であることがより好ましく、炭素数が10以上の有機基であることが更に好ましい。上記式（1）中、X1は、炭素数が50以下の有機基であることが好ましく、炭素数が40以下の有機基であることがより好ましく、炭素数が30以下の有機基であることが更に好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを効果的に抑えることができる。

【0078】

上記式（1）中、X1は、芳香族骨格を有する基であることが好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを効果的に抑えることができる。

【0079】

上記芳香族骨格を有する基としては、置換基を有していてもよいベンゼン環を有する基、及び置換基を有していてもよいナフタレン環を有する基等が挙げられる。

【0080】

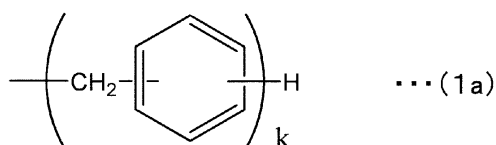
上記式（1）中、X1は、芳香族骨格を2個以上有する基であることが好ましく、芳香族骨格を3個以上有する基であることがより好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れをより一層効果的に抑えることができる。

【0081】

上記式（1）中、X1は、下記式（1a）で表される基であることが好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0082】

【化 4】



10

20

30

40

50

【0083】

上記式(1a)中、kは1以上6以下の整数を表す。

【0084】

上記式(1a)中、kは、好ましくは2以上、より好ましくは3以上、好ましくは5以下である。

【0085】

上記式(1)中、X1は、反応性基を有さない基であることが好ましい。この場合には、樹脂材料の保存安定性を高めることができ、また、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0086】

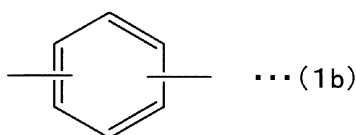
上記反応性基とは、ビニル基等の炭素-炭素不飽和結合を有する基、水酸基、グリシジル基、イソシアネート基、アミノ基、カルボキシル基、酸無水物基、及び活性エステル構造を有する基等を意味する。

【0087】

上記式(1)中、X2は、芳香族骨格を含む基であることが好ましく、下記式(1b)で表される基であることがより好ましい。

【0088】

【化5】



【0089】

上記式(1)中、R1とR2とは、同一の基であってもよく、異なる基であってもよい。

【0090】

上記式(1)中、R1又はR2は、複素芳香環骨格を有する基であることが好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0091】

上記複素環とは、2種以上の元素により構成される環を意味し、例えば、ピリジン環、ピロール環、イミダゾール環、ジシクロペンタジエン環及びチオフェン環等が挙げられる。

【0092】

上記式(1)中、R1又はR2は、イミド骨格を有する基であることが好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0093】

上記式(1)中、R1又はR2は、ナフタレン骨格を有する基であることが好ましい。この場合には、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0094】

上記式(1)中、R1、R2、X1及びX2はそれぞれ、リン原子を有さない基であることが好ましい。すなわち、上記第1の活性エステル化合物は、リン原子を有さないことが好ましい。この場合には、樹脂材料の保存安定性を高めることができ、また、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0095】

上記式(1)中、R1、R2、X1及びX2はそれぞれ、炭素数が2以上4以下である脂肪族炭化水素鎖を有さない基であることが好ましく、炭素数が2以上である脂肪族炭化水素鎖を有さない基であることがより好ましい。すなわち、上記第1の活性エステル化合

10

20

30

40

50

物は、炭素数が2以上4以下である脂肪族炭化水素鎖を有さないことが好ましく、炭素数が2以上である脂肪族炭化水素鎖を有さないことがより好ましい。この場合には、樹脂材料の保存安定性を高めることができ、また、熱衝撃を受けた際の硬化物のひび又は割れを更により一層効果的に抑えることができる。

【0096】

上記第1の活性エステル化合物の活性エステル当量は、好ましくは200eq/g以上、より好ましくは210eq/g以上、更に好ましくは220eq/g以上、好ましくは500eq/g以下、より好ましくは400eq/g以下、更に好ましくは350eq/g以下である。上記活性エステル当量が上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。

10

【0097】

上記エポキシ化合物100重量部に対する上記第1の活性エステル化合物の含有量は、好ましくは70重量部以上、より好ましくは85重量部以上、好ましくは250重量部以下、より好ましくは220重量部以下、更に好ましくは150重量部以下、特に好ましくは120重量部以下である。上記第1の活性エステル化合物の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、硬化性により一層優れ、熱寸法安定性をより一層高め、残存未反応成分の揮発をより一層抑制できる。

【0098】

上記硬化剤100重量%中、上記第1の活性エステル化合物の含有量は、好ましくは、30重量%以上、より好ましくは50重量%以上、最も好ましくは100重量%（全量）である。上記第1の活性エステル化合物の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。

20

【0099】

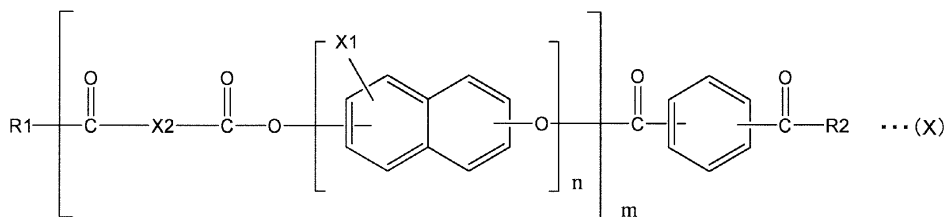
<硬化剤X>

上記樹脂材料は、下記式(X)で表される構造を有さない硬化剤（以下、「硬化剤X」と記載することがある）を含んでいてもよい。上記硬化剤Xは、上記第1の活性エステル化合物とは異なる硬化剤である。上記硬化剤Xは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0100】

【化6】

30



【0101】

上記式(X)中、R1、R2及びX1はそれぞれ、有機基を表し、X2は、脂肪族鎖骨格を含む基、脂肪族骨格を含む基又は芳香族骨格を含む基を表し、mは1以上6以下の整数を表し、nは1以上5以下の整数を表す。

40

【0102】

上記硬化剤Xとしては、シアネートエステル化合物（シアネートエステル硬化剤）、アミン化合物（アミン硬化剤）、チオール化合物（チオール硬化剤）、イミダゾール化合物、ホスフィン化合物、ジシアンジアミド、フェノール化合物（フェノール硬化剤）、酸無水物、上記式(X)で表される構造を有さない活性エステル化合物（活性エステル硬化剤）、カルボジイミド化合物（カルボジイミド硬化剤）、及びベンゾオキサジン化合物（ベンゾオキサジン硬化剤）等が挙げられる。上記硬化剤Xは、上記エポキシ化合物のエポキシ基と反応可能な官能基を有することが好ましい。

50

【0103】

なお、本明細書において、「上記式（X）で表される構造を有さない活性エステル化合物」を「第2の活性エステル化合物」と記載することがある。

【0104】

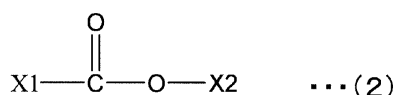
上記硬化剤Xは、上記第2の活性エステル化合物又は上記カルボジイミド化合物であることが好ましい。上記硬化剤は、上記第2の活性エステル化合物を含むことが好ましく、上記カルボジイミド化合物を含むことが好ましい。

【0105】

上記第2の活性エステル化合物は、エステル結合を少なくとも1つ含み、かつエステル結合の両側に、脂肪族鎖、脂肪族環又は芳香族環が結合している化合物である。上記第2の活性エステル化合物は、例えばカルボン酸化合物又はチオカルボン酸化合物と、ヒドロキシ化合物又はチオール化合物との縮合反応によって得られる。上記第2の活性エステル化合物の例としては、下記式（2）で表される化合物が挙げられる。

【0106】

【化7】



【0107】

上記式（2）中、X1は、脂肪族鎖を含む基、脂肪族環を含む基又は芳香族環を含む基を表し、X2は、芳香族環を含む基を表す。上記芳香族環を含む基の好ましい例としては、置換基を有していてもよいベンゼン環、及び置換基を有していてもよいナフタレン環等が挙げられる。上記X1は、ナフタレン環であることが好ましい。上記置換基としては、炭化水素基が挙げられる。該炭化水素基の炭素数は、好ましくは12以下、より好ましくは6以下、更に好ましくは4以下である。

【0108】

上記式（2）中、X1及びX2の組み合わせとしては、置換基を有していてもよいベンゼン環と、置換基を有していてもよいベンゼン環との組み合わせ、置換基を有していてもよいベンゼン環と、置換基を有していてもよいナフタレン環との組み合わせが挙げられる。さらに、X1及びX2の組み合わせとしては、置換基を有していてもよいナフタレン環と、置換基を有していてもよいナフタレン環との組み合わせが挙げられる。

【0109】

上記第2の活性エステル化合物は特に限定されない。熱寸法安定性及び難燃性を高める観点からは、上記第2の活性エステル化合物は、2個以上の芳香族骨格を有する活性エステル化合物であることが好ましい。硬化物の誘電正接を低くし、かつ硬化物の熱寸法安定性を高める観点から、上記第2の活性エステル化合物の主鎖骨格中にナフタレン環を有することがより好ましい。

【0110】

上記第2の活性エステル化合物は、側鎖を有さない活性エステル化合物であることが好ましい。上記硬化剤は、側鎖を有さない活性エステル化合物を含むことが好ましい。この場合には、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。

【0111】

なお、上記第1の活性エステル化合物は、側鎖（上記式（1）中、X1で表される基）を有するため、側鎖を有さない活性エステル化合物は、上記第2の活性エステル化合物である。

【0112】

上記第2の活性エステル化合物の市販品としては、DIC社製「HPC-8000-65T」、「EXB9416-70BK」、「EXB8100-65T」及び「HPC-8

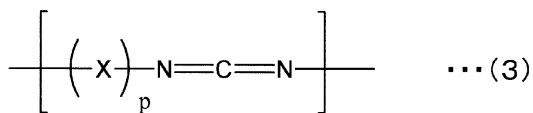
「150-60T」等が挙げられる。

【0113】

上記カルボジイミド化合物は、下記式(3)で表される構造単位を有する化合物である。下記式(3)において、右端部及び左端部は、他の基との結合部位である。上記カルボジイミド化合物は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0114】

【化8】



10

【0115】

上記式(3)中、Xは、アルキレン基、アルキレン基に置換基が結合した基、シクロアルキレン基、シクロアルキレン基に置換基が結合した基、アリーレン基、又はアリーレン基に置換基が結合した基を表し、pは1以上5以下の整数を表す。Xが複数存在する場合、複数のXは同一であってもよく、異なってもよい。

【0116】

上記式(3)中、少なくとも1つのXは、アルキレン基、アルキレン基に置換基が結合した基、シクロアルキレン基、又はシクロアルキレン基に置換基が結合した基であることが好ましい。

20

【0117】

上記カルボジイミド化合物の市販品としては、日清紡ケミカル社製「カルボジライト V-02B」、「カルボジライト V-03」、「カルボジライト V-04K」、「カルボジライト V-07」、「カルボジライト V-09」、「カルボジライト 10M-SP」、及び「カルボジライト 10M-SP(改)」、並びに、ラインケミー社製「スタバクゾールP」、「スタバクゾールP400」、及び「ハイカジル510」等が挙げられる。

【0118】

上記フェノール化合物としては、ノボラック型フェノール、ビフェノール型フェノール、ナフタレン型フェノール、ジシクロペンタジエン型フェノール、アラルキル型フェノール及びジシクロペンタジエン型フェノール等が挙げられる。

30

【0119】

上記フェノール化合物の市販品としては、ノボラック型フェノール(DIC社製「TD-2091」)、ビフェニルノボラック型フェノール(明和化成社製「MEH-7851」)、アラルキル型フェノール化合物(明和化成社製「MEH-7800」)、並びにアミノトリアジン骨格を有するフェノール(DIC社製「LA1356」及び「LA3018-50P」)等が挙げられる。

【0120】

上記シアネートエステル化合物としては、ノボラック型シアネートエステル樹脂、ビスフェノール型シアネートエステル樹脂、並びにこれらが一部三量化されたプレポリマー等が挙げられる。上記ノボラック型シアネートエステル樹脂としては、フェノールノボラック型シアネートエステル樹脂及びアルキルフェノール型シアネートエステル樹脂等が挙げられる。上記ビスフェノール型シアネートエステル樹脂としては、ビスフェノールA型シアネートエステル樹脂、ビスフェノールE型シアネートエステル樹脂及びテトラメチルビスフェノールF型シアネートエステル樹脂等が挙げられる。

40

【0121】

上記シアネートエステル化合物の市販品としては、フェノールノボラック型シアネートエステル樹脂(ロンザジャパン社製「PT-30」及び「PT-60」)、並びにビスフェノール型シアネートエステル樹脂が三量化されたプレポリマー(ロンザジャパン社製「

50

BA-230S」、「BA-3000S」、「BTP-1000S」及び「BTP-6020S」)等が挙げられる。

【0122】

上記酸無水物としては、テトラヒドロフタル酸無水物、及びアルキルスチレンー無水マレイン酸共重合体等が挙げられる。

【0123】

上記酸無水物の市販品としては、新日本理化社製「リカシッド TDA-100」等が挙げられる。

【0124】

上記エポキシ化合物100重量部に対する上記硬化剤Xの含有量は、好ましくは70重量部以上、より好ましくは85重量部以上、好ましくは150重量部以下、より好ましくは120重量部以下である。上記硬化剤Xの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、硬化性により一層優れ、熱寸法安定性をより一層高め、残存未反応成分の揮発をより一層抑制できる。

【0125】

〔硬化促進剤〕

上記樹脂材料は、硬化促進剤を含むことが好ましい。上記硬化促進剤の使用により、硬化速度がより一層速くなる。樹脂材料を速やかに硬化させることで、硬化物における架橋構造が均一になると共に、未反応の官能基数が減り、結果的に架橋密度が高くなる。上記硬化促進剤は特に限定されず、従来公知の硬化促進剤を使用可能である。上記硬化促進剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0126】

上記硬化促進剤としては、例えば、イミダゾール化合物等のアニオン性硬化促進剤、アミン化合物等のカチオン性硬化促進剤、リン化合物及び有機金属化合物等のアニオン性及びカチオン性硬化促進剤以外の硬化促進剤、並びに過酸化物等のラジカル性硬化促進剤等が挙げられる。

【0127】

上記イミダゾール化合物としては、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-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-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、1,2-ジメチルイミダゾール、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-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、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-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテイト、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテイト、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、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジンイソシアヌル酸付加物、2-フェニルイミダゾールイソシアヌル酸付加物、2-メチルイミダゾールイソシアヌル酸付加物、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール及び2-フェニル-4-メチル-5-ジヒドロキシメチルイミダゾール等が挙げられる。

【0128】

上記アミン化合物としては、ジエチルアミン、トリエチルアミン、ジエチレントトラミン、トリエチレントトラミン及び4,4-ジメチルアミノピリジン等が挙げられる。

【0129】

上記リン化合物としては、トリフェニルホスフィン化合物等が挙げられる。

【0130】

上記有機金属化合物としては、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバルト、オクチル酸スズ

10

20

30

40

50

、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）及びトリスアセチルアセトナートコバルト（ⅠⅠⅠ）等が挙げられる。

【0131】

上記過酸化物としてはジクミルペルオキシド、及びパーヘキシル25B等が挙げられる。

【0132】

硬化温度をより一層低く抑え、硬化物の反りを効果的に抑える観点からは、上記硬化促進剤は、上記アニオン性硬化促進剤を含むことが好ましく、上記イミダゾール化合物を含むことがより好ましい。

【0133】

硬化温度をより一層低く抑え、硬化物の反りを効果的に抑える観点からは、上記硬化促進剤100重量%中、上記アニオン性硬化促進剤の含有量は、好ましくは20重量%以上、より好ましくは50重量%以上、更に好ましくは70重量%以上、最も好ましくは100重量%（全量）である。したがって、上記硬化促進剤は、上記アニオン性硬化促進剤であることが最も好ましい。

【0134】

上記硬化促進剤の含有量は特に限定されない。樹脂材料中の上記無機充填材及び溶剤を除く成分100重量%中、上記硬化促進剤の含有量は、好ましくは0.01重量%以上、より好ましくは0.05重量%以上、好ましくは5重量%以下、より好ましくは3重量%以下である。上記硬化促進剤の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、樹脂材料が効率的に硬化する。上記硬化促進剤の含有量がより好ましい範囲であれば、樹脂材料の保存安定性がより一層高くなり、かつより一層良好な硬化物が得られる。

【0135】

〔ビスマレイミド化合物〕

上記樹脂材料は、ビスマレイミド化合物を含むことが好ましい。上記ビスマレイミド化合物は特に限定されない。上記ビスマレイミド化合物は、マレイミド基を有する。上記ビスマレイミド化合物として、従来公知のビスマレイミド化合物を使用可能である。なお、上記ビスマレイミド化合物には、シトラコンイミド化合物が含まれる。上記シトラコンイミド化合物とは、マレイミド基における炭素原子間の二重結合を構成する炭素原子の一方にメチル基が結合した化合物である。上記ビスマレイミド化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0136】

上記ビスマレイミド化合物は、主鎖の両末端に上記ダイマージアミンに由来する骨格を有することが好ましい。この場合、上記ビスマレイミド化合物は、主鎖の両末端及び主鎖の両末端以外の骨格内に上記ダイマージアミンに由来する骨格を有していてもよく、主鎖の両末端にのみ上記ダイマージアミンに由来する骨格を有していてもよい。上記ダイマージアミンに由来する骨格を有する場合には、該ダイマージアミンに由来する骨格同士が会合しやすく、相分離構造を形成することで樹脂材料の硬化物のガラス転移温度を効果的に高くすることができる。このため、硬化物の熱寸法安定性をより一層高めることができ、また、絶縁層と金属層との密着性をより一層高めることができる。

【0137】

上記ビスマレイミド化合物としては、芳香族ビスマレイミド化合物、及び脂肪族ビスマレイミド化合物等が挙げられる。

【0138】

上記脂肪族ビスマレイミド化合物としては、N-アルキルビスマレイミド化合物等が挙げられる。

【0139】

誘電正接を低くし、硬化温度を低く抑える観点からは、上記ビスマレイミド化合物は、N-アルキルビスマレイミド化合物であることが好ましい。

【0140】

硬化物の誘電正接をより一層低くし、かつ絶縁層と金属層との密着性をより一層高める

10

20

30

40

50

観点からは、上記N-アルキルビスマレイミド化合物は、マレイミド基における窒素原子に脂肪族骨格が結合した構造を有することが好ましい。また、エッチング性能を高める観点からは、N-アルキルビスマレイミド化合物は、イミド結合又はダイマージアミン骨格を有することが好ましく、イミド結合とダイマージアミン骨格との双方を有することが好ましい。

【0141】

誘電正接をより一層低くする観点からは、上記N-アルキルビスマレイミド化合物は、ダイマージアミンに由来する骨格を有するN-アルキルビスマレイミド化合物であることがより好ましい。ダイマージアミンに由来する骨格を有するN-アルキルビスマレイミド化合物において、ダイマージアミン骨格は、部分骨格として存在する。

10

【0142】

上記ビスマレイミド化合物は、例えば、テトラカルボン酸二無水物とジアミン化合物とを反応させて反応物を得た後、該反応物と無水マレイン酸とを反応させて得ることができる。

【0143】

また、主鎖の両末端にのみ上記ダイマージアミンに由来する骨格を有するビスマレイミド化合物は、例えば、以下のようにして得ることができる。テトラカルボン酸二無水物と、ダイマージアミンと、ダイマージアミン以外のジアミン化合物とを反応させて第1の反応物を得る。得られた第1の反応物とダイマージアミンとを反応させて第2の反応物を得る。得られた第2の反応物と無水マレイン酸とを反応させる。

20

【0144】

また、上記ダイマージアミンに由来する骨格を有するN-アルキルビスマレイミド化合物は、例えば、テトラカルボン酸二無水物とダイマージアミンとを反応させて反応物を得た後、該反応物と無水マレイン酸とを反応させて得ることができる。

【0145】

上記テトラカルボン酸二無水物としては、例えば、ピロメリット酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、1, 4, 5, 8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルエーテルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ジメチルジフェニルシランテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-テトラフェニルシランテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 3, 4-フランテトラカルボン酸二無水物、4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルスルフィド二無水物、4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルスルホン二無水物、4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルプロパン二無水物、3, 3', 4, 4'-パーフルオロイソプロピリデンジフタル酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、ビス(フタル酸)フェニルホスフィンオキサイド二無水物、p-フェニレン-ビス(トリフェニルフタル酸)二無水物、m-フェニレン-ビス(トリフェニルフタル酸)二無水物、ビス(トリフェニルフタル酸)-4, 4'-ジフェニルエーテル二無水物、及びビス(トリフェニルフタル酸)-4, 4'-ジフェニルメタン二無水物等が挙げられる。

30

40

【0146】

上記ジアミン化合物としては、1, 3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、1, 4-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、ビス(アミノメチル)ノルボルナン、3(4), 8(9)-ビス(アミノメチル)トリシクロ[5.2.1.0^{2,6}]デカン、1, 3-シクロヘキサジアミン、1, 4-シクロヘキサジアミン、イソホロンジアミン、4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルアミン)、4, 4'-メチレンビス(2-メチルシクロヘキシルアミン)、1, 4-ジアミノブタン、1, 10-ジアミノデカン、1, 12-ジアミノドデカン、1, 7-ジアミノヘプタン、1, 6-ジアミノヘキサン、1, 5-ジアミノペンタン、1, 8-ジアミノオクタン、1, 3-ジアミノプロパン、1, 11-ジアミノウンデカン、2-メチル-1, 5-ジアミノペンタン、及びダイマージアミン等

50

が挙げられる。

【0147】

本発明の効果により一層優れることから、上記ジアミン化合物は、脂環族骨格を有するジアミン化合物であることが好ましい。この場合に、上記ビスマレイミド化合物は、テトラカルボン酸二無水物と脂肪族骨格を有するジアミン化合物との反応物に由来する骨格を有していてもよく、テトラカルボン酸二無水物と、脂肪族骨格を有するジアミン化合物と、脂肪族骨格を有するジアミン化合物とは異なるアミン化合物との反応物に由来する骨格を有していてもよい。また、上記ビスマレイミド化合物は、両末端のジアミン骨格が上記脂肪族骨格を有するジアミン化合物に由来したジアミン骨格を有し、かつ両末端以外のジアミン骨格が芳香族骨格を有するジアミン化合物に由来したジアミン骨格を有してもよい。

10

【0148】

上記ダイマージアミンとしては、例えば、バーサミン551（商品名、BASFジャパン社製、3，4ービス（1ーアミノヘプチル）ー6ーヘキシルー5ー（1ーオクテニル）シクロヘキセン）、バーサミン552（商品名、コグニクスジャパン社製、バーサミン551の水添物）、並びにPRIAMINE1075、及びPRIAMINE1074（商品名、いずれもクロージャパン社製）等が挙げられる。

【0149】

上記Nーアルキルビスマレイミド化合物の市販品としては、Designer Molecules Inc. 社製「BMIー1500」、及び「BMIー1700」、「BMIー3000」等が挙げられる。

20

【0150】

上記ビスマレイミド化合物の分子量は、好ましくは500以上、より好ましくは1000以上であり、好ましくは20000未満、より好ましくは15000未満である。上記ビスマレイミド化合物の分子量が上記下限以上及び上記上限未満であると、硬化物の誘電正接をより一層低くし、かつ絶縁層と金属層との密着性をより一層高めることができる。上記ビスマレイミド化合物の分子量が上記上限未満であると、基板等の凹凸に対する樹脂材料の埋め込み性をより一層高めることができる。

【0151】

上記ビスマレイミド化合物の分子量は、上記ビスマレイミド化合物が重合体ではない場合、及び上記ビスマレイミド化合物の構造式が特定できる場合には、当該構造式から算出できる分子量を意味する。また、上記ビスマレイミド化合物の分子量は、上記ビスマレイミド化合物が重合体である場合には、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により測定されたポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

30

【0152】

上記樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中、上記ビスマレイミド化合物の含有量は、好ましくは3重量%以上、より好ましくは5重量%以上であり、好ましくは25重量%以下、より好ましくは20重量%以下、特に好ましくは15重量%以下である。上記ビスマレイミド化合物の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、海島構造をより一層容易に形成させることができ、誘電正接をより一層低くし、熱寸法安定性、弾性率及び絶縁層と金属層との密着性をより一層高めることができる。

40

【0153】

上記樹脂材料中の無機充填材及び溶剤を除く成分100重量%中、上記ビスマレイミド化合物の含有量は、好ましくは15重量%以上、より好ましくは20重量%以上であり、好ましくは65重量%以下、より好ましくは50重量%以下、特に好ましくは40重量%以下である。上記ビスマレイミド化合物の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、海島構造をより一層容易に形成させることができ、誘電正接をより一層低くし、熱寸法安定性、弾性率及び絶縁層と金属層との密着性をより一層高めることができる。

【0154】

〔熱可塑性樹脂〕

上記樹脂材料は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましい。熱可塑性樹脂としては、ポリビ

50

ニルアセタール樹脂、ポリイミド樹脂及びフェノキシ樹脂等が挙げられる。熱可塑性樹脂は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0155】

硬化環境によらず、誘電正接を効果的に低くし、かつ、金属配線の密着性を効果的に高める観点からは、熱可塑性樹脂は、フェノキシ樹脂であることが好ましい。フェノキシ樹脂の使用により、樹脂フィルムの回路基板の穴又は凹凸に対する埋め込み性の悪化及び無機充填材の不均一化が抑えられる。また、フェノキシ樹脂の使用により、熔融粘度を調整可能であるために無機充填材の分散性が良好になり、かつ硬化過程で、意図しない領域に樹脂組成物又はBステージ化物が濡れ拡がり難くなる。

【0156】

上記樹脂材料に含まれているフェノキシ樹脂は特に限定されない。上記フェノキシ樹脂として、従来公知のフェノキシ樹脂を使用可能である。上記フェノキシ樹脂は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0157】

上記フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA型の骨格、ビスフェノールF型の骨格、ビスフェノールS型の骨格、ビフェニル骨格、ノボラック骨格、ナフタレン骨格及びイミド骨格等の骨格を有するフェノキシ樹脂等が挙げられる。

【0158】

上記フェノキシ樹脂の市販品としては、例えば、新日鐵住金化学社製の「YP50」、「YP55」及び「YP70」、並びに三菱化学社製の「1256B40」、「4250」、「4256H40」、「4275」、「YX6954BH30」及び「YX8100BH30」等が挙げられる。

【0159】

ハンドリング性、低粗度でのメッキピール強度及び絶縁層と金属層との密着性を高める観点から、熱可塑性樹脂は、ポリイミド樹脂（ポリイミド化合物）であることが好ましい。

【0160】

溶解性を良好にする観点からは、上記ポリイミド化合物は、テトラカルボン酸二無水物とダイマージアミンとを反応させる方法によって得られたポリイミド化合物であることが好ましい。

【0161】

上記テトラカルボン酸二無水物としては、例えば、ピロメリット酸二無水物、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3,3',4,4'-ビフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2,3,6,7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、3,3',4,4'-ビフェニルエーテルテトラカルボン酸二無水物、3,3',4,4'-ジメチルジフェニルシランテトラカルボン酸二無水物、3,3',4,4'-テトラフェニルシランテトラカルボン酸二無水物、1,2,3,4-フランテトラカルボン酸二無水物、4,4'-ビス(3,4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルスルフィド二無水物、4,4'-ビス(3,4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルスルホン二無水物、4,4'-ビス(3,4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルプロパン二無水物、3,3',4,4'-パーフルオロイソプロピリデンジフタル酸二無水物、3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、ビス(フタル酸)フェニルホスフィンオキサイド二無水物、p-フェニレン-ビス(トリフェニルフタル酸)二無水物、m-フェニレン-ビス(トリフェニルフタル酸)二無水物、ビス(トリフェニルフタル酸)-4,4'-ジフェニルエーテル二無水物、及びビス(トリフェニルフタル酸)-4,4'-ジフェニルメタン二無水物等が挙げられる。

【0162】

上記ダイマージアミンとしては、例えば、バーサミン551（商品名BASFジャパン社製、3,4-ビス(1-アミノヘプチル)-6-ヘキシル-5-(1-オクテニル)シクロヘキセン）、バーサミン552（商品名、コグニクスジャパン社製、バーサミン551の水添物）、PRIAMINE1075、PRIAMINE1074（商品名、いずれ

10

20

30

40

50

もクロージャパン社製）等が挙げられる。

【0163】

なお、上記ポリイミド化合物は末端に、酸無水物構造、マレイミド構造、シトラコンイミド構造を有していてもよい。この場合には、上記ポリイミド化合物とエポキシ樹脂とを反応させることができる。上記ポリイミド化合物とエポキシ樹脂とを反応させることにより、硬化物の熱寸法安定性を高めることができる。

【0164】

保存安定性により一層優れた樹脂材料を得る観点からは、熱可塑性樹脂、上記ポリイミド樹脂及び上記フェノキシ樹脂の重量平均分子量は、好ましくは5000以上、より好ましくは10000以上、好ましくは100000以下、より好ましくは50000以下である。

10

【0165】

熱可塑性樹脂、上記ポリイミド樹脂及び上記フェノキシ樹脂の上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により測定されたポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

【0166】

熱可塑性樹脂、上記ポリイミド樹脂及び上記フェノキシ樹脂の含有量は特に限定されない。樹脂材料中の無機充填材及び上記溶剤を除く成分100重量%中、熱可塑性樹脂の含有量（熱可塑性樹脂がポリイミド樹脂又はフェノキシ樹脂である場合には、ポリイミド樹脂又はフェノキシ樹脂の含有量）は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは2重量%以上、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。熱可塑性樹脂の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、樹脂材料の回路基板の穴又は凹凸に対する埋め込み性が良好になる。熱可塑性樹脂の含有量が上記下限以上であると、樹脂フィルムがより一層容易になり、より一層良好な絶縁層が得られる。熱可塑性樹脂の含有量が上記上限以下であると、硬化物の熱膨張率がより一層低くなる。熱可塑性樹脂の含有量が上記上限以下であると、硬化物の表面の表面粗さがより一層小さくなり、硬化物と金属層との接着強度がより一層高くなる。

20

【0167】

〔溶剤〕

上記樹脂材料は、溶剤を含まないか又は含む。上記溶剤の使用により、樹脂材料の粘度を好適な範囲に制御でき、樹脂材料の塗工性を高めることができる。また、上記溶剤は、上記無機充填材を含むスラリーを得るために用いられてもよい。上記溶剤は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

30

【0168】

上記溶剤としては、アセトン、メタノール、エタノール、ブタノール、2-プロパノール、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール、1-メトキシ-2-プロパノール、2-アセトキシ-1-メトキシプロパン、トルエン、キシレン、メチルエチルケトン、N,N-ジメチルホルムアミド、メチルイソブチルケトン、N-メチルピロリドン、n-ヘキサン、シクロヘキサン、シクロヘキサノン及び混合物であるナフサ等が挙げられる。

40

【0169】

上記溶剤の多くは、上記樹脂組成物をフィルム状に成形するときに、除去されることが好ましい。従って、上記溶剤の沸点は好ましくは200℃以下、より好ましくは180℃以下である。上記樹脂組成物中の上記溶剤の含有量は特に限定されない。上記樹脂組成物の塗工性などを考慮して、上記溶剤の含有量は適宜変更可能である。

【0170】

上記樹脂材料がBステージフィルムである場合には、上記Bステージフィルム100重量%中、上記溶剤の含有量は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは2重量%以上、好ましくは10重量%以下、より好ましくは5重量%以下である。

【0171】

50

〔他の成分〕

耐衝撃性、耐熱性、樹脂の相溶性及び作業性等の改善を目的として、上記樹脂材料は、レベリング剤、難燃剤、カップリング剤、着色剤、酸化防止剤、紫外線劣化防止剤、消泡剤、増粘剤、揺変性付与剤及びエポキシ化合物以外の他の熱硬化性樹脂等を含んでいてもよい。

【0172】

上記カップリング剤としては、シランカップリング剤、チタンカップリング剤及びアルミニウムカップリング剤等が挙げられる。上記シランカップリング剤としては、ビニルシラン、アミノシラン、イミダゾールシラン及びエポキシシラン等が挙げられる。

【0173】

上記他の熱硬化性樹脂としては、ポリフェニレンエーテル樹脂、ジビニルベンジルエーテル樹脂、ポリアリレート樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、ベンゾオキサゾール樹脂、及びアクリレート樹脂等が挙げられる。

【0174】

（樹脂材料の他の詳細）

上記樹脂材料の100℃における溶融粘度は、好ましくは5 Pa・s以上、より好ましくは10 Pa・s以上、好ましくは500 Pa・s以下、より好ましくは400 Pa・s以下である。上記溶融粘度が上記下限以上及び上記上限以下であると、保存安定性をより一層高めることができる。

【0175】

上記樹脂材料の100℃における溶融粘度は、Rheometer装置（例えば、TAインスツルメント社製「AR-2000」）を用いて、周波数6.28 rad/sec、開始温度60℃、測定間隔温度2.5℃、昇温速度5℃/分、及び歪み21.8%の条件で動的粘弾性を測定することにより求められる。

【0176】

（樹脂フィルム）

上述した樹脂組成物をフィルム状に成形することにより樹脂フィルム（Bステージ化物／Bステージフィルム）が得られる。上記樹脂材料は、樹脂フィルムであることが好ましい。樹脂フィルムは、Bステージフィルムであることが好ましい。

【0177】

樹脂組成物をフィルム状に成形して、樹脂フィルムを得る方法としては、以下の方法が挙げられる。押出機を用いて、樹脂組成物を溶融混練し、押出した後、Tダイ又はサーキュラーダイ等により、フィルム状に成形する押出成形法。溶剤を含む樹脂組成物をキャストティングしてフィルム状に成形するキャストティング成形法。従来公知のその他のフィルム成形法。薄型化に対応可能であることから、押出成形法又はキャストティング成形法が好ましい。フィルムにはシートが含まれる。

【0178】

樹脂組成物をフィルム状に成形し、熱による硬化が進行し過ぎない程度に、例えば50℃～150℃で1分間～10分間加熱乾燥させることにより、Bステージフィルムである樹脂フィルムを得ることができる。

【0179】

上述のような乾燥工程により得ることができるフィルム状の樹脂組成物をBステージフィルムと称する。上記Bステージフィルムは、半硬化状態にある。半硬化物は、完全に硬化しておらず、硬化がさらに進行され得る。

【0180】

上記樹脂フィルムは、金属箔又は基材フィルムと、該金属箔又は基材フィルムの表面に積層された樹脂フィルムとを備える積層フィルムの形態で用いることができる。上記金属箔は銅箔であることが好ましい。

【0181】

上記積層フィルムの上記基材フィルムとしては、ポリエチレンテレフタレートフィルム

10

20

30

40

50

及びポリブチレンテレフタレートフィルム等のポリエステル樹脂フィルム、ポリエチレンフィルム及びポリプロピレンフィルム等のオレフィン樹脂フィルム、並びにポリイミド樹脂フィルム等が挙げられる。上記基材フィルムの表面は、必要に応じて、離型処理されていてもよい。

【0182】

樹脂フィルムの硬化度をより一層均一に制御する観点からは、上記樹脂フィルムの厚さは、好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $200\mu\text{m}$ 以下である。上記樹脂フィルムを回路の絶縁層として用いる場合、上記樹脂フィルムにより形成された絶縁層の厚さは、回路を形成する導体層（金属層）の厚さ以上であることが好ましい。上記絶縁層の厚さは、好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $200\mu\text{m}$ 以下である。

10

【0183】

（半導体装置、プリント配線板、銅張積層板及び多層プリント配線板）

上記樹脂材料は、半導体装置において半導体チップを埋め込むモールド樹脂を形成するために好適に用いられる。

【0184】

上記樹脂材料は、プリント配線板において絶縁層を形成するために好適に用いられる。

【0185】

上記プリント配線板は、例えば、上記樹脂材料を加熱加圧成形することにより得られる。

【0186】

上記樹脂フィルムに対して、片面又は両面に金属層を表面に有する積層対象部材を積層できる。金属層を表面に有する積層対象部材と、上記金属層の表面上に積層された樹脂フィルムとを備え、上記樹脂フィルムが、上述した樹脂材料である、積層構造体を好適に得ることができる。上記樹脂フィルムと上記金属層を表面に有する積層対象部材とを積層する方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、平行平板プレス機又はロールラミネーター等の装置を用いて、加熱しながら又は加熱せずに加圧しながら、上記樹脂フィルムを、金属層を表面に有する積層対象部材に積層可能である。

20

【0187】

上記金属層の材料は銅であることが好ましい。

【0188】

上記金属層を表面に有する積層対象部材は、銅箔等の金属箔であってもよい。

30

【0189】

上記樹脂材料は、銅張積層板を得るために好適に用いられる。上記銅張積層板の一例として、銅箔と、該銅箔の一方の表面に積層された樹脂フィルムとを備える銅張積層板が挙げられる。

【0190】

上記銅張積層板の上記銅箔の厚さは特に限定されない。上記銅箔の厚さは、 $1\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。また、上記樹脂材料の硬化物と銅箔との接着強度を高めるために、上記銅箔は微細な凹凸を表面に有することが好ましい。凹凸の形成方法は特に限定されない。上記凹凸の形成方法としては、公知の薬液を用いた処理による形成方法等が挙げられる。

40

【0191】

上記樹脂材料は、多層基板を得るために好適に用いられる。

【0192】

上記多層基板の一例として、回路基板と、該回路基板上に積層された絶縁層とを備える多層基板が挙げられる。この多層基板の絶縁層が、上記樹脂材料により形成されている。また、多層基板の絶縁層が、積層フィルムを用いて、上記積層フィルムの上記樹脂フィルムにより形成されていてもよい。上記絶縁層は、回路基板の回路が設けられた表面上に積層されていることが好ましい。上記絶縁層の一部は、上記回路間に埋め込まれていることが好ましい。

【0193】

50

上記多層基板では、上記絶縁層の上記回路基板が積層された表面とは反対側の表面が粗化処理されていることが好ましい。

【0194】

粗化処理方法は、従来公知の粗化処理方法を用いることができ、特に限定されない。上記絶縁層の表面は、粗化処理の前に膨潤処理されていてもよい。

【0195】

また、上記多層基板は、上記絶縁層の粗化処理された表面に積層された銅めっき層をさらに備えることが好ましい。

【0196】

また、上記多層基板の他の例として、回路基板と、該回路基板の表面上に積層された絶縁層と、該絶縁層の上記回路基板が積層された表面とは反対側の表面に積層された銅箔とを備える多層基板が挙げられる。上記絶縁層が、銅箔と該銅箔の一方の表面に積層された樹脂フィルムとを備える銅張積層板を用いて、上記樹脂フィルムを硬化させることにより形成されていることが好ましい。さらに、上記銅箔はエッチング処理されており、銅回路であることが好ましい。

【0197】

上記多層基板の他の例として、回路基板と、該回路基板の表面上に積層された複数の絶縁層とを備える多層基板が挙げられる。上記回路基板上に配置された上記複数層の絶縁層の内の少なくとも1層が、上記樹脂材料を用いて形成される。上記多層基板は、上記樹脂フィルムを用いて形成されている上記絶縁層の少なくとも一方の表面に積層されている回路をさらに備えることが好ましい。

【0198】

多層基板のうち多層プリント配線板においては、低い誘電正接が求められ、絶縁層による高い絶縁信頼性が求められる。本発明に係る樹脂材料では、誘電正接を低くし、かつ熱衝撃を受けても硬化物のひび又は割れが生じにくいいため、絶縁信頼性を効果的に高めることができる。従って、本発明に係る樹脂材料は、多層プリント配線板において、絶縁層を形成するために好適に用いられる。

【0199】

上記多層プリント配線板は、例えば、回路基板と、上記回路基板の表面上に配置された複数の絶縁層と、複数の上記絶縁層間に配置された金属層とを備える。上記絶縁層の内の少なくとも1層が、上記樹脂材料の硬化物である。

【0200】

図1は、本発明の一実施形態に係る樹脂材料を用いた多層プリント配線板を模式的に示す断面図である。

【0201】

図1に示す多層プリント配線板11では、回路基板12の上面12aに、複数層の絶縁層13～16が積層されている。絶縁層13～16は、硬化物層である。回路基板12の上面12aの一部の領域には、金属層17が形成されている。複数層の絶縁層13～16のうち、回路基板12側とは反対の外側の表面に位置する絶縁層16以外の絶縁層13～15には、上面の一部の領域に金属層17が形成されている。金属層17は回路である。回路基板12と絶縁層13の間、及び積層された絶縁層13～16の各層間に、金属層17がそれぞれ配置されている。下方の金属層17と上方の金属層17とは、図示しないビアホール接続及びスルーホール接続の内の少なくとも一方により互いに接続されている。

【0202】

多層プリント配線板11では、絶縁層13～16が、上記樹脂材料の硬化物により形成されている。本実施形態では、絶縁層13～16の表面が粗化処理されているので、絶縁層13～16の表面に図示しない微細な孔が形成されている。また、微細な孔の内部に金属層17が至っている。また、多層プリント配線板11では、金属層17の幅方向寸法（L）と、金属層17が形成されていない部分の幅方向寸法（S）とを小さくすることができる。また、多層プリント配線板11では、図示しないビアホール接続及びスルーホール

10

20

30

40

50

接続で接続されていない上方の金属層と下方の金属層との間に、良好な絶縁信頼性が付与されている。

【0203】

(粗化处理及び膨潤処理)

上記樹脂材料は、粗化处理又はデスミア処理される硬化物を得るために用いられることが好ましい。上記硬化物には、更に硬化が可能な予備硬化物も含まれる。

【0204】

上記樹脂材料を予備硬化させることにより得られた硬化物の表面に微細な凹凸を形成するために、硬化物は粗化处理されることが好ましい。粗化处理の前に、硬化物は膨潤処理されることが好ましい。硬化物は、予備硬化の後、かつ粗化处理される前に、膨潤処理されており、さらに粗化处理の後に硬化されていることが好ましい。ただし、硬化物は、必ずしも膨潤処理されなくてもよい。

10

【0205】

上記膨潤処理の方法としては、例えば、エチレングリコールなどを主成分とする化合物の水溶液又は有機溶媒分散溶液などにより、硬化物を処理する方法が用いられる。膨潤処理に用いる膨潤液は、一般にpH調整剤などとして、アルカリを含む。膨潤液は、水酸化ナトリウムを含むことが好ましい。具体的には、例えば、上記膨潤処理は、40重量%エチレングリコール水溶液等を用いて、処理温度30℃～85℃で1分間～30分間、硬化物を処理することにより行なわれる。上記膨潤処理の温度は50℃～85℃の範囲内であることが好ましい。上記膨潤処理の温度が低すぎると、膨潤処理に長時間を要し、更に硬化物と金属層との接着強度が低くなる傾向がある。

20

【0206】

上記粗化处理には、例えば、マンガン化合物、クロム化合物又は過硫酸化合物などの化学酸化剤等が用いられる。これらの化学酸化剤は、水又は有機溶剤が添加された後、水溶液又は有機溶媒分散溶液として用いられる。粗化处理に用いられる粗化液は、一般にpH調整剤などとしてアルカリを含む。粗化液は、水酸化ナトリウムを含むことが好ましい。

【0207】

上記マンガン化合物としては、過マンガン酸カリウム及び過マンガン酸ナトリウム等が挙げられる。上記クロム化合物としては、重クロム酸カリウム及び無水クロム酸カリウム等が挙げられる。上記過硫酸化合物としては、過硫酸ナトリウム、過硫酸カリウム及び過硫酸アンモニウム等が挙げられる。

30

【0208】

硬化物の表面の算術平均粗さRaは、好ましくは10nm以上であり、好ましくは300nm未満、より好ましくは200nm未満、更に好ましくは150nm未満である。この場合には、硬化物と金属層との接着強度が高くなり、更に絶縁層の表面により一層微細な配線が形成される。上記算術平均粗さRaは、JIS B0601:1994に準拠して測定される。

【0209】

(デスミア処理)

上記樹脂材料を予備硬化させることにより得られた硬化物に、貫通孔が形成されることがある。上記多層基板などでは、貫通孔として、ビア又はスルーホール等が形成される。例えば、ビアは、CO₂レーザー等のレーザーの照射により形成できる。ビアの直径は特に限定されないが、60μm～80μm程度である。上記貫通孔の形成により、ビア内の底部には、硬化物に含まれている樹脂成分に由来する樹脂の残渣であるスミアが形成されることが多い。

40

【0210】

上記スミアを除去するために、硬化物の表面は、デスミア処理されることが好ましい。デスミア処理が粗化处理を兼ねることもある。

【0211】

上記デスミア処理には、上記粗化处理と同様に、例えば、マンガン化合物、クロム化合

50

物又は過硫酸化合物等の化学酸化剤等が用いられる。これらの化学酸化剤は、水又は有機溶剤が添加された後、水溶液又は有機溶媒分散溶液として用いられる。デスマア処理に用いられるデスマア処理液は、一般にアルカリを含む。デスマア処理液は、水酸化ナトリウムを含むことが好ましい。

【0212】

上記樹脂材料の使用により、デスマア処理された硬化物の表面の表面粗さが十分に小さくなる。

【0213】

以下、実施例及び比較例を挙げることにより、本発明を具体的に説明する。本発明は、以下の実施例に限定されない。

【0214】

以下の材料を用意した。

【0215】

(エポキシ化合物)

ビフェニル型エポキシ化合物 (日本化薬社製「NC-3000」、25℃で固形)

ナフトールアラルキル型エポキシ化合物 (新日鐵住金化学社製「ESN-475V」、25℃で固形)

ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物 (ADEKA社製「EP-4088S」、25℃での粘度230 mPa・s)

グリシジルアミン型エポキシ化合物 (日本化薬社製「GAN」、25℃での粘度130 mPa・s)

【0216】

(無機充填材)

シリカ含有スラリー (シリカ75重量%：アドマテックス社製「SC4050-HOA」、平均粒径1.0 μm、アミノシラン処理、シクロヘキサノン25重量%)

【0217】

(硬化剤)

<第1の活性エステル化合物>

活性エステル化合物1 (活性エステル当量270 eq/g)

活性エステル化合物2 (活性エステル当量305 eq/g)

活性エステル化合物3 (活性エステル当量265 eq/g)

活性エステル化合物4 (活性エステル当量315 eq/g)

活性エステル化合物5 (活性エステル当量290 eq/g)

活性エステル化合物6 (活性エステル当量288 eq/g)

【0218】

活性エステル化合物1は、下記の合成例1に従って合成した。

【0219】

<合成例1>

温度計、滴下ロート、冷却管、分留管、攪拌機を取り付けたフラスコに、2,7-ジヒドロキシナフタレンを320 g (2.0 mol)、シクロヘキシルメチルブロミドを301 g (1.7 mol)、パラトルエンスルホン酸・1水和物を5.0 g入れ、室温下、窒素を吹き込みながら攪拌した。その後、150℃に昇温し、生成した水を系外に留去しながら4時間攪拌した。反応終了後、メチルイソブチルケトン900 g、20%水酸化ナトリウム水溶液を5.4 g添加して中和した後、分液により水層を除去し、水280 gで3回水洗を行い、メチルイソブチルケトンを減圧下除去してシクロヘキシルメチル変性ナフタレン化合物を470 g得た。得られたシクロヘキシルメチル変性ナフタレン化合物は黒色固体であった。また、得られたシクロヘキシルメチル変性ナフタレン化合物の水酸基当量は185 g/当量であった。

【0220】

温度計、滴下ロート、冷却管、分留管、攪拌機を取り付けたフラスコに、イソフタル酸

10

20

30

40

50

クロリドを203.0 g (酸クロリド基のモル数: 2.0 モル) とトルエンを1400 g 入れ、系内を減圧窒素置換し溶解させた。次いで、ベンジルアルコールを72.4 g (0.67 モル)、得られたシクロヘキシル変性ナフタレン化合物を246 g (フェノール性水酸基のモル数: 1.33 モル) 添加し、系内を減圧窒素置換し溶解させた。その後、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.70 g を溶解させ、窒素ガスパージを施しながら、系内を60℃以下に制御して、400 g の20%水酸化ナトリウム水溶液を3時間かけて滴下した。次いで、この条件下で1.0時間攪拌を続けた。反応終了後、静置分液し、水層を取り除いた。次いで、反応物が溶解しているトルエン層に水を投入して15分間攪拌混合し、静置分液して水層を取り除いた。水層のpHが7になるまでこの操作を繰り返した。その後、デカンタ脱水で水分を除去し不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物1を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は1200 mPa・s (25℃) であった。また、乾燥後の軟化点は146℃であった。

10

【0221】

得られた活性エステル化合物1は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物1には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ベンジル基、X1が芳香族骨格を有さずかつ炭素数が6である有機基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが1である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

【0222】

活性エステル化合物2は、下記の合成例2に従って合成した。

20

【0223】

<合成例2>

合成例1と同様にして、シクロヘキシルメチル変性ナフタレン化合物を得た。

【0224】

72.4 g (0.67 モル) のベンジルアルコールを、96.0 g (0.67 モル) のα-ナフトールに変更したこと以外は合成例1と同様にして、不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物2を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は1500 mPa・s (25℃) であった。また、乾燥後の軟化点は150℃であった。

【0225】

得られた活性エステル化合物2は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物2には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ナフチル基、X1が芳香族骨格を有さずかつ炭素数が6である有機基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが1である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

30

【0226】

活性エステル化合物3は、下記の合成例3に従って合成した。

【0227】

<合成例3>

301 g (1.7 モル) のシクロヘキシルメチルブロミドを、290 g (1.7 モル) のベンジルブロミドに変更してベンジル変性ナフタレン化合物を得たこと以外は合成例2と同様(フェノール性水酸基のモル数をあわせる)にして、不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物3を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は1600 mPa・s (25℃) であった。また、乾燥後の軟化点は157℃であった。

40

【0228】

得られた活性エステル化合物3は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物3には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ナフチル基、X1がベンジル基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが1である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

50

【0229】

活性エステル化合物4は、下記の合成例4に従って合成した。

【0230】

<合成例4>

301g (1.7モル)のシクロヘキシルメチルブロミドを、376g (1.7モル)の1-ナフチルメチルブロミドに変更したこと以外は合成例2と同様(フェノール性水酸基のモル数をあわせる)にして、不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物4を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は17000mPa・s、軟化点は163℃であった。

【0231】

得られた活性エステル化合物4は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物4には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ナフチル基、X1がナフチル基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが1である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

【0232】

活性エステル化合物5は、下記の合成例5に従って合成した。

【0233】

<合成例5>

301g (1.7モル)のシクロヘキシルメチルブロミドを、335g (1.7モル)の3-(ブロモメチル)スチレンに変更したこと以外は合成例2と同様(フェノール性水酸基のモル数をあわせる)にして、不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物5を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は16000mPa・s、軟化点は152℃であった。

【0234】

得られた活性エステル化合物5は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物5には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ナフチル基、X1がスチリル基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが2である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

【0235】

活性エステル化合物6は、下記の合成例6に従って合成した。

【0236】

<合成例6>

301g (1.7モル)のシクロヘキシルメチルブロミドを、233g (1.7モル)の1-ブロモブタンに変更したこと以外は合成例2と同様(フェノール性水酸基のモル数をあわせる)にして、不揮発分65重量%のトルエン溶液状態にある活性エステル化合物7を得た。この不揮発分65重量%のトルエン溶液の粘度は14000mPa・s、軟化点は135℃であった。

【0237】

得られた活性エステル化合物6は、上記式(1)で表される構造を有する活性エステル化合物であった。得られた活性エステル化合物6には、上記式(1)中、R1及びR2がそれぞれ、ナフチル基、X1がブチル基、X2がナフタレン骨格を有する基、mが2、nが1である活性エステル化合物が含まれることを確認した。

【0238】

<硬化剤X>

側鎖を有さない活性エステル化合物(DIC社製「HPC-8000-65T」)

アミノトリアジンフェノール(DIC社製「LA1356」)

カルボジイミド化合物含有液(日清紡ケミカル社製「V-03」、固形分50重量%)

【0239】

(硬化促進剤)

イミダゾール化合物(2-フェニル-4-メチルイミダゾール、四国化成工業社製「2

10

20

30

40

50

P 4 M Z」、アニオン性硬化促進剤)

【0240】

(ビスマレイミド化合物)

ビスマレイミド化合物(デジグナーモレキュールズインコーポレイテッド(DMI)社製「BMI-3000J」)

【0241】

(熱可塑性樹脂)

フェノキシ樹脂(三菱化学社製「YX-6954」)

下記の合成例Aに従って合成したポリイミド樹脂

【0242】

(合成例A)

攪拌機、分水器、温度計及び窒素ガス導入管を備えた反応容器に、テトラカルボン酸二無水物(SABICジャパン合同会社製「BisDA-1000」)300.0gと、シクロヘキサノン665.5gとを入れ、容器中の溶液を60℃まで加熱した。ついで、4,4'-メチレンビス(2-メチルシクロヘキシルアミン)(東京化成工業社製、脂肪族構造の炭素数15)137.4gを滴下した。その後、メチルシクロヘキサン121.0gと、エチレングリコールジメチルエーテル423.5gとを入れ、140℃で10時間かけてイミド化反応を行い、ポリイミド樹脂含有溶液(不揮発分26.6重量%)を得た。得られたポリイミド樹脂の分子量(重量平均分子量)は20000であった。なお、酸成分/アミン成分のモル比は1.04であった。

【0243】

合成例Aで合成したポリイミド樹脂の分子量は、以下のようにして求めた。

【0244】

GPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィー)測定:

島津製作所社製高速液体クロマトグラフシステムを使用し、テトラヒドロフラン(THF)を展開媒として、カラム温度40℃、流速1.0ml/分で測定を行った。検出器として「SPD-10A」を用い、カラムはShodex社製「KF-804L」(排除限界分子量400,000)を2本直列につないで使用した。標準ポリスチレンとして、東ソー社製「TSKスタンダードポリスチレン」を用い、重量平均分子量Mw=354,000、189,000、98,900、37,200、17,100、9,830、5,870、2,500、1,050、500の物質を使用して校正曲線を作成し、分子量の計算を行った。

【0245】

(参考例1~6、実施例7、参考例8、9、実施例10、参考例11~15、比較例1~4)

下記の表1~3に示す成分を下記の表1~3に示す配合量(単位は固形分重量部)で配合し、均一な溶液となるまで常温で攪拌し、樹脂材料を得た。

【0246】

樹脂フィルムの作製:

アプリケーションを用いて、離型処理されたPETフィルム(東レ社製「XG284」、厚み25μm)の離型処理面上に得られた樹脂材料を塗工した後、100℃のギヤオープン内で2分30秒間乾燥し、溶剤を揮発させた。このようにして、PETフィルム上に、厚さが40μmである樹脂フィルム(Bステージフィルム)が積層されている積層フィルム(PETフィルムと樹脂フィルムとの積層フィルム)を得た。

【0247】

(評価)

(1) 保存安定性

(1-1) 100℃における溶融粘度(保存前の溶融粘度及び溶融粘度の保存安定性)

得られた樹脂フィルムの100℃における溶融粘度Rheometer装置(TAインスツルメント社製「AR-2000」)を用いて、周波数6.28rad/sec、開始

10

20

30

40

50

温度 60℃、測定間隔温度 2.5℃、昇温速度 5℃/分、及び歪み 21.8% の条件で動的粘弾性を測定することにより求めた。得られた溶融粘度を保存前の溶融粘度とした。

【0248】

得られた樹脂フィルムを 25℃ で 50 時間保存した。保存後の樹脂フィルムの溶融粘度を上記と同様にして測定した。得られた溶融粘度を保存後の溶融粘度とした。

【0249】

保存後の溶融粘度の保存前の溶融粘度に対する比（保存後の溶融粘度／保存前の溶融粘度）を求めた。

【0250】

〔保存前の溶融粘度の判定基準〕

A：保存前の溶融粘度が 5 Pa・s 以上 500 Pa・s 以下

B：保存前の溶融粘度が 5 Pa・s 未満、又は、500 Pa・s を超える

【0251】

〔溶融粘度の保存安定性の判定基準〕

A：比（保存後の溶融粘度／保存前の溶融粘度）が 2 未満

B：比（保存後の溶融粘度／保存前の溶融粘度）が 2 以上 3 未満

C：比（保存後の溶融粘度／保存前の溶融粘度）が 3 以上

【0252】

なお、保存前の溶融粘度については、A の結果は B の結果よりも比較的良好である。溶融粘度の保存安定性については、A の結果は B の結果よりも比較的良好であり、B の結果は C の結果よりも比較的良好である。

【0253】

（1-2）パターン埋め込み性

銅張り積層板（厚さ 150 μm のガラスエポキシ基板と厚さ 35 μm の銅箔との積層体）を用意した。銅箔をエッチング処理し、L/S が 50 μm/50 μm 及び長さが 1 cm である銅パターンを 26 本作製し、凹凸基板を得た。得られた凹凸基板の両面に、名機製作所社製「バッチ式真空ラミネーター MVL P-500/600-III A」を用いて、積層フィルムの樹脂フィルム（B ステージフィルム）側を銅張積層板上に重ねてラミネートした。ラミネートの条件は、30 秒減圧して気圧を 13 hPa 以下とし、その後 30 秒間、100℃ 及び圧力 0.4 MPa でプレスする条件とした。このようにして、凹凸基板上に樹脂フィルムが積層されている積層体を得た。PET フィルムを剥離した後、光学顕微鏡を用いて、凹凸基板における凹部分を観察し、凹部分において樹脂フィルムの浮きの有無を確認した。

【0254】

また、25℃ で 50 時間保存した樹脂フィルムについても、同様の評価を行った。

【0255】

〔パターン埋め込み性の判定基準〕

○：保存前及び保存後の樹脂フィルムにおいて、浮きが発生していない

△：保存前及び保存後の樹脂フィルムにおいて、浮きが 3 個以下で発生

×：保存前又は保存後の樹脂フィルムにおいて、浮きが 3 個を超えて発生

【0256】

（1-3）FLS（Fine Line and Space（微細配線形成性））

1）ラミネート工程：

両面銅張積層板（各面の銅箔の厚み 18 μm、基板の厚み 0.7 mm、基板サイズ 100 mm×100 mm、日立化成社製「MCL-E679FG」）を用意した。この両面銅張積層板の銅箔面の両面をメック社製「Cz8101」に浸漬して、銅箔の表面を粗化処理した。粗化処理された銅張積層板の両面に、名機製作所社製「バッチ式真空ラミネーター MVL P-500/600-III A」を用いて、積層フィルムの樹脂フィルム（B ステージフィルム）側を銅張積層板上に重ねてラミネートした。ラミネートの条件は、30 秒減圧して気圧を 13 hPa 以下とし、その後 30 秒間、100℃ 及び圧力 0.4 MPa で

10

20

30

40

50

プレスする条件とした。PETフィルムを剥がした後130℃で60分間加熱し、樹脂フィルムを半硬化（予備硬化）させた。このようにして、CCL基板に樹脂フィルムの半硬化物が積層されている積層体（1）を得た。

【0257】

2) ピアホール形成工程：

CO₂レーザー加工機（ビアメカニクス社製「LC-4KF212」）を用いて、バーストモード、エネルギー0.4mJ、パルス27μsec、3ショットの条件で、直径約60μmのピアホールを形成した。

【0258】

3) デスマリア処理及び粗化处理：

3-1) 膨潤処理：

60℃の膨潤液（アテックジャパン社製「スウェリングディップセキュリガントP」）に、得られた積層体（1）を入れて、10分間揺動させた。その後、純水で洗浄した。

【0259】

3-2) 過マンガン酸塩処理（粗化处理及びデスマリア処理）：

80℃の過マンガン酸カリウム（アテックジャパン社製「コンセントレートコンパクトCP」）粗化水溶液に、膨潤処理後の積層体（1）を入れて、30分間揺動させた。次に、25℃の洗浄液（アテックジャパン社製「リダクションセキュリガントP」）を用いて2分間処理した後、純水で洗浄を行い、粗化处理後の積層体（1）を得た。

【0260】

4) 無電解めっき処理：

粗化处理後の積層体（1）の硬化物の表面を、60℃のアルカリクリーナ（アテックジャパン社製「クリーナーセキュリガント902」）で5分間処理し、脱脂洗浄した。洗浄後、上記硬化物を25℃のプリディップ液（アテックジャパン社製「プリディップネオガントB」）で2分間処理した。その後、上記硬化物を40℃のアクチベーター液（アテックジャパン社製「アクチベーターネオガント834」）で5分間処理し、パラジウム触媒を付けた。次に、30℃の還元液（アテックジャパン社製「リデューサーネオガントWA」）により、硬化物を5分間処理した。

【0261】

次に、上記硬化物を化学銅液（アテックジャパン社製「ベーシックプリントガントMSK-DK」、「銅プリントガントMSK」、「スタビライザープリントガントMSK」、及び「リデューサーCu」）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、残留している水素ガスを除去するため、120℃の温度で30分間アニール処理した。なお、無電解めっきの工程までの全ての工程は、ピーカースケールで処理液を2Lとし、硬化物を揺動させながら実施した。

【0262】

5) レジスト形成：

ドライフィルムレジスト（日立化成社製「RY5125」）を、ホットロールラミネーターを用いて貼り付けた。ラミネート条件は、温度100℃、圧力0.4MPa及びラミネート速度1.5m/分とする条件とし、その後、15分ホールドした。次いで、UV露光機（オーク製作所社製「EXA-1201」）にて、L/S=10μm、L/S=20μmのパターンマスクを介して、85mJ/cm²で露光した後、1重量%の炭酸ナトリウム水溶液を27℃で、スプレー圧1.2MPa、30秒間スプレー処理して現像を行った。

【0263】

6) 電解めっき処理：

次に、無電解めっき処理された硬化物に、電解めっきをめっき厚さが25μmとなるまで実施した。電解銅めっきとして硫酸銅溶液（和光純薬工業社製「硫酸銅五水和物」、和光純薬工業社製「硫酸」、アテックジャパン社製「ベーシックレベラーカパラシドHL」、アテックジャパン社製「補正剤カパラシドGS」）を用いて、0.6A/cm²

10

20

30

40

50

の電流を流しめつき厚さが25 μm程度となるまで電解めっきを実施した。

【0264】

7) DFR剥離及びエッチング処理：

3重量%の水酸化ナトリウム水溶液を用いてスプレー処理することによりドライフィルムレジスト (DFR) を剥離した。次いで、過水硫酸系の酸性エッチング液 (JCU社製「SACプロセス」) にてクイックエッチングを行った。

【0265】

8) 本硬化工程：

190℃で1.5時間加熱した。

【0266】

このようにして、樹脂フィルムの硬化物上に配線が形成された評価サンプルAを作製した。

【0267】

また、25℃で50時間保存した樹脂フィルムについても、上記1)～8)の工程を行い、保存後の樹脂フィルムの硬化物上に配線が形成された評価サンプルBを作製した。

【0268】

走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、評価サンプルA及び評価サンプルBの配線の形成性を観察した。

【0269】

[FLSの判定基準]

○：評価サンプルA及び評価サンプルBにおいて、 $L/S = 10 \mu m$ の形成が可能

△：評価サンプルA及び評価サンプルBにおいて、 $L/S = 10 \mu m$ の形成が不可能であるが、 $L/S = 20 \mu m$ の形成が可能

×：評価サンプルA又は評価サンプルBにおいて、 $L/S = 20 \mu m$ の形成が不可能

【0270】

(2) 誘電正接

得られた樹脂フィルムを幅2mm、長さ80mmの大きさに裁断して5枚を重ね合わせて、厚み200 μmの積層体を得た。得られた積層体を190℃で90分間加熱して、硬化物を得た。得られた硬化物について、関東電子応用開発社製「空洞共振摂動法誘電率測定装置CP521」及びキーサイトテクノロジー社製「ネットワークアナライザーN5224A PNA」を用いて、空洞共振法で常温 (23℃) にて、周波数1.0 GHzにて誘電正接を測定した。

【0271】

[誘電正接の判定基準]

○：誘電正接が0.005以下

△：誘電正接が0.005を超え0.01未満

×：誘電正接が0.01を超える

【0272】

(3) 熱衝撃試験

得られた積層フィルムのPETフィルムを剥がして、樹脂フィルムの両面を厚み35 μmの銅箔と厚み1mmの銅板とで挟み、温度200℃、圧力3 MPaの条件で真空プレスすることにより積層体を作製した。得られた積層体における銅箔をエッチングすることにより、直径2cmの円形に銅箔をパターンニングして、テストサンプルを得た。得られたテストサンプルを用いて、槽式熱衝撃試験機 (ESPEC社製「TSB-51」) を用いて、-40℃で5分間保持した後、120℃まで昇温し、120℃で5分間保持した後-40℃まで降温する過程を1サイクルとする冷熱サイクル試験を実施した。1000サイクル後、及び2000サイクル後にそれぞれテストサンプルを取り出した。光学顕微鏡 (オリンパス社製「STM6」) を用いて、樹脂フィルムの硬化物のひび又は割れの有無を観察した。

【0273】

10

20

30

40

50

〔熱衝撃試験の判定基準〕

○：２０００サイクル後に硬化物のひび又は割れの発生が無し

△：１０００サイクル後に硬化物のひび又は割れの発生が無し、かつ２０００サイクル後に硬化物のひび又は割れの発生が有り

×：１０００サイクル後に硬化物のひび又は割れの発生が有り

【０２７４】

組成及び結果を下記の表１～３に示す。

【０２７５】

【表１】

		参考例 1	参考例 2	参考例 3	参考例 4	参考例 5	参考例 6
エポキシ 化合物	ビフェニル型エポキシ化合物	NC-3000	重量部 9	重量部 9	重量部 9	重量部 9	重量部 9
	ナフトールアラキル型エポキシ化合物	ESN-475V	重量部 1	重量部 1	重量部 1	重量部 1	重量部 1
	ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物	EP-4088S	重量部 1	重量部 1	重量部 1	重量部 1	重量部 1
	グリシジルアミン型エポキシ化合物	GAN	重量部 70	重量部 70	重量部 70	重量部 70	重量部 70
	シリカ（平均粒径1.0μm）	SC4050-H0A	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
硬化剤	活性エステル化合物1	合成例1	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	活性エステル化合物2	合成例2	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	活性エステル化合物3	合成例3	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	活性エステル化合物4	合成例4	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	活性エステル化合物5	合成例5	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	活性エステル化合物6	合成例6	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	側鎖を有さない活性エステル化合物	HPQ-8000-65T	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	硬化剤X	LA1356	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	カルボジイミド化合物	V-03	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	イミダゾール化合物	2P4MZ	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中の無機充填材の含有量	ビスマレイミド化合物	BMI-3000J	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	フェノキシ樹脂	YX-6954	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	熱可塑性樹脂	ポリイミド樹脂	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
	ポリイミド樹脂	合成例A	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20	重量部 20
評価	保存前の溶融粘度	判定	A	A	A	A	A
	溶融粘度の保存安定性	判定	A	A	A	A	A
	バターン埋め込み性	判定	O	O	O	O	O
	FLS	判定	O	O	O	O	O
	誘電正接	判定	O	O	O	O	O
	熱衝撃試験	判定	O	O	O	O	O
	熱衝撃試験	判定	O	O	O	O	O

【０２７６】

【表 2】

		実施例 7	参考例 8	参考例 9	実施例 10	参考例 11	参考例 12	参考例 13	参考例 14	参考例 15
エポキシ 化合物	ビフェニル型エポキシ化合物			9	9	9	9	9		
	ナフトールアラキル型エポキシ化合物								9	9
	ジシクロペンタジエン型エポキシ化合物	1	1	1	1	1	1	1	1	
	グリシジルアミン型エポキシ化合物									
無機充填材	シリカ (平均粒径1.0μm)	70	70	70	70	70	70	70	70	1
	活性エステル化合物1									
	活性エステル化合物2									
	活性エステル化合物3									
	活性エステル化合物4	15	19.7	15	15	19	19	19	20	20
	活性エステル化合物5									
	活性エステル化合物6									
	側鎖を有さない活性エステル化合物	5								
	硬化剤X			4.7						
	カルボジイミド化合物				4.7					
硬化促進剤	イミダゾール化合物		0.3	0.3	0.3					
	ビスマレイミド化合物					1		1		
	フェノキシ樹脂					1				
	ポリイミド樹脂						1			
樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中の無機充填材の含有量		70	70	70	70	70	70	70	70	70
評価	保存前の溶融粘度	判定	A	A	A	A	A	A	A	A
	保存安定性	判定	A	A	A	A	A	A	A	A
	溶融粘度の保存安定性	判定	○	○	○	○	○	○	○	○
	パターン埋め込み性	判定	○	○	○	○	○	○	○	○
	FLS	判定	○	○	○	○	○	○	○	○
	誘電正接	判定	○	○	○	○	○	○	○	○
熱衝撃試験		判定	○	○	○	○	○	○	○	○

【0 2 7 7】

10

20

30

40

50

【表 3】

			比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
エポキシ 化合物	ビフェニル型エポキシ化合物	NC-3000	重量部	9	30	15
	ナフトールアラキル型エポキシ化合物	ESN-475V	重量部			9
	ジクロロペンタジエン型エポキシ化合物	EP-4088S	重量部	1	3	1.5
	グリシジルアミン型エポキシ化合物	GAN	重量部			1
無機充填材	シリカ（平均粒径1.0μm）	SC4050-H0A	重量部	70		50
硬化剤	第1の活性 エステル 化合物	活性エステル化合物1	重量部			70
		活性エステル化合物2	重量部			
		活性エステル化合物3	重量部			
		活性エステル化合物4	重量部			
		活性エステル化合物5	重量部			
		活性エステル化合物6	重量部			
	硬化剤X	側鎖を有さない活性エステル化合物	重量部	20	67.00	33.50
		アミノトリアジンフェノール	重量部			20.0
		カルボジイミド化合物	重量部			
		イミダゾール化合物	重量部			
硬化促進剤	ビスマレイミド化合物	BMI-3000J	重量部			
熱可塑性樹脂	フェノキシ樹脂	YX-6954	重量部			
	ポリイミド樹脂	合成例A	重量部			
樹脂材料中の溶剤を除く成分100重量%中の無機充填材の含有量		重量%	70	0	50	70
評価	保存 安定性	保存前の溶融粘度	判定	A	B	A
		溶融粘度の保存安定性	判定	A	C	C
		パターン埋め込み性	判定	O	x	O
		FLS	判定	O	x	x
	誘電正接 熱衝撃試験		判定	O	x	O
			判定	x	x	x

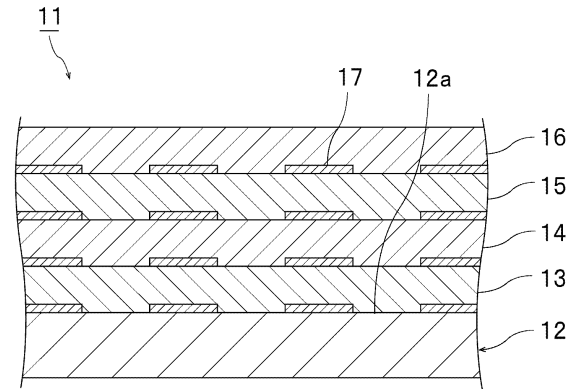
【符号の説明】

【0 2 7 8】

- 1 1 … 多層プリント配線板
- 1 2 … 回路基板
- 1 2 a … 上面
- 1 3 ~ 1 6 … 絶縁層
- 1 7 … 金属層

【図面】

【図 1】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類	F I		
C 0 8 K	5/29 (2006.01)	C 0 8 K	5/29
H 0 5 K	1/03 (2006.01)	H 0 5 K	1/03 6 1 0 L
H 0 5 K	3/46 (2006.01)	H 0 5 K	1/03 6 1 0 R
B 3 2 B	15/08 (2006.01)	H 0 5 K	1/03 6 1 0 H
B 3 2 B	27/38 (2006.01)	H 0 5 K	3/46 T
		B 3 2 B	15/08 J
		B 3 2 B	27/38

茨城県つくば市和台32 積水化学工業株式会社内

(72)発明者 新井 祥人
大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内
審査官 三宅 澄也

(56)参考文献 特開2018-044040 (JP, A)
特開2018-093120 (JP, A)
特開2006-131599 (JP, A)
特開2018-199797 (JP, A)
特開2018-125378 (JP, A)
特開2018-152556 (JP, A)
国際公開第2012/002119 (WO, A1)
国際公開第2016/098488 (WO, A1)
特開2017-088544 (JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
C 0 8 L
C 0 8 G
C 0 8 K
H 0 5 K
B 3 2 B