

明 細 書

発明の名称：

特定の末端構造を有する重合体を含む熱硬化性樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は新規な重合体を含む熱硬化性樹脂組成物、及び当該熱硬化性樹脂組成物から得られる成形体及び硬化物、並びにＩＣチップなどに代表される半導体デバイスを製造する工程において、被積層物間を接着する接着剤組成物、又はフリップチップボンディングに用いられるアンダーフィル組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、携帯電話機、ＩＣカードなどの電子機器の高機能化及び小型化に伴い、半導体デバイスの高集積化が求められている。その手法として、半導体素子そのものの微細化、半導体素子間を縦方向に積み上げるスタック構造が検討されている。スタック構造の作製においては、半導体素子間の接合に接着剤が使用される。

[0003] スタック構造の作製において、基板上にＩＣチップを実装する方法として、フリップチップボンディングが知られている。これは、ＩＣチップにバンパ（突起状端子）を複数設け、当該バンパと基板の電極端子とを電氣的に接続させる方法である。そして、その基板とＩＣチップとの隙間を埋め、湿気及び外部応力からＩＣチップを保護するために、アンダーフィル剤が使用される。アンダーフィル剤としては、エポキシ樹脂を含む組成物が採用されており（例えば、特許文献１及び特許文献２）、従来は基板とＩＣチップとをバンパ接続後にアンダーフィル剤を注入し（後入れ型アンダーフィル）、熱硬化させる方法が主に用いられていた。しかし、バンパの小型化、狭ピッチ化及びＩＣチップの大型化が進むと、アンダーフィル剤の後入れは困難となる。そのため、ウェハーをダイシングする前に、バンパ付きウェハー上にアンダーフィル剤を予め形成し、その後ダイシングしたＩＣチップをフリップ

チップボンディングさせる先入れ型アンダーフィルが今後主流になると考えられる。

[0004] また、半導体素子を接着させるための接着剤として、エポキシ樹脂を含む接着剤組成物が知られている（例えば、特許文献3）。

[0005] また、別のスタック構造の作成方法として、WOW（ウェハーオンウェハー）構造の半導体装置の製造方法が知られている（例えば、特許文献4）。

[0006] ところで、主鎖に芳香族ベンゾオキサジン環を有する化合物を含む熱硬化性の樹脂組成物が知られている（例えば、特許文献5及び特許文献6）。そして、ベンゾオキサジン樹脂が優れた耐熱性や電気特性を有することも知られている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特許第4887850号公報

特許文献2：特許第4931079号公報

特許文献3：特開2008-201998号公報

特許文献4：国際公開WO2010/032729号

特許文献5：国際公開WO2007/129640号

特許文献6：国際公開WO2009/008468号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかし、上述したフリップチップボンディングでは、アンダーフィル剤のボンディング後、速やかに bumps を接続するため、特許文献3に記載されているような従来の接着剤では、接着剤が未硬化の状態で瞬間的に高温にさらされるため、ボイドの発生を避けることは困難であった。

また、特許文献4に記載されているWOW（ウェハーオンウェハー）構造では、ウェハーとウェハーをボイドが全く発生することなく接着する必要があるため、ボイドの原因となる低分子成分や耐熱性が低く分解する成分の適

用は困難であった。

[0009] 一方、特許文献5及び特許文献6に記載の、主鎖に芳香族ベンゾオキサジン環を有する化合物を含む熱硬化性の樹脂組成物では、架橋密度が低くガラス転移点以上の温度での線膨張係数が高く、熱履歴によるクラックや剥がれなど信頼性の低下が懸念される。

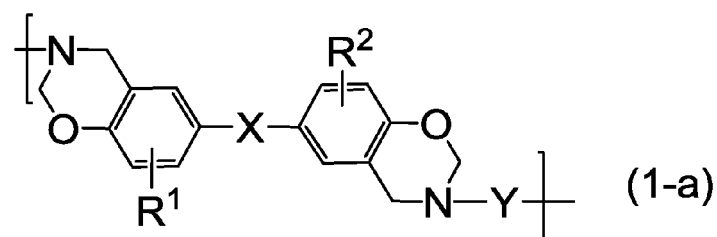
さらに、公知の技術として、ベンゾオキサジン樹脂にエポキシ樹脂を混合し、架橋密度を向上させることが知られている。しかし、上記の混合樹脂は架橋反応が遅く、十分な架橋密度が得られない。そのため、イミダゾール系の化合物に代表される、エポキシ樹脂硬化剤を添加することが広く知られているが、エポキシ樹脂硬化剤は耐熱性が低いため、ボイドの発生に起因する信頼性の低下が懸念される。

[0010] 本発明は、上記の事情に基づいてなされたものであり、耐熱性が高く、優れた電気特性を有しかつエポキシ樹脂の硬化を促進する熱硬化性樹脂組成物、及び当該熱硬化性樹脂組成物から得られる成形体及び硬化物、並びに熱硬化性の接着剤組成物又はアンダーフィル組成物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

[0011] 本発明は、下記式（1-a）：

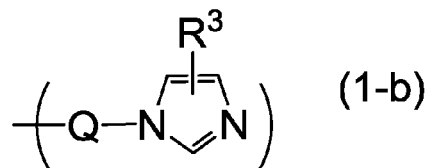
[化1]



（式中、 R^1 及び R^2 はそれぞれ独立に水素原子、炭素原子数1乃至4のアルキル基、フェニル基又は炭素原子数3乃至6の環状アルキル基を表し、Xは単結合又は2価の有機基を表し、Yは2価の有機基を表す。）

で表される繰り返し構造単位及び下記式（1-b）：

[化2]



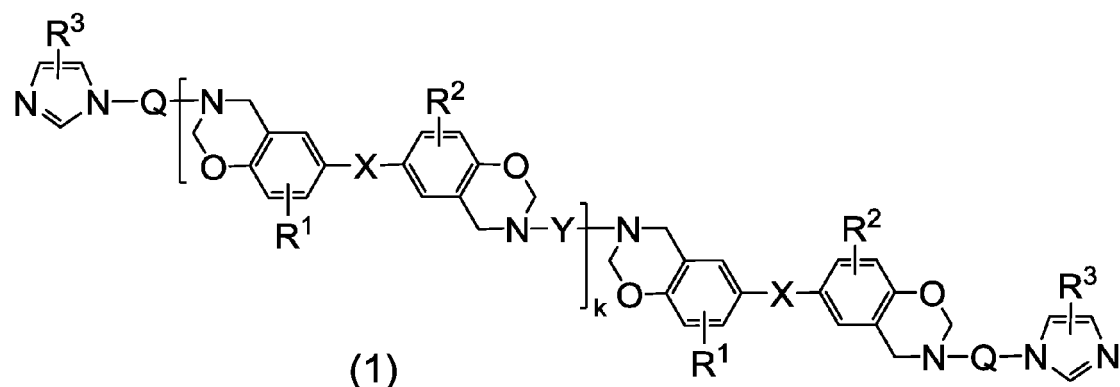
(式中、Qは炭素原子数1乃至5のアルキレン基、水素原子の少なくとも1つがハロゲン原子で置換されていてもよいフェニレン基、又は窒素原子を少なくとも1つ含有する5員環もしくは6員環の2価の飽和複素環基を表し、 R^3 は水素原子又はメチル基を表す。)

で表される末端構造を有する重合体を含む熱硬化性樹脂組成物である。

[0012] 前記重合体の末端が前記式(1-b)で表される末端構造である割合は、当該重合体の原料化合物(モノマー)であるジアミン化合物又はビスフェノール化合物のモル数に対する、前記末端構造の形成に消費されるイミダゾール化合物のモル数の比で表されるものと定義するとき、例えば1mol%乃至100mol%、好ましくは1mol%乃至50mol%、さらに好ましくは5mol%乃至30mol%である。

[0013] 前記重合体の両末端が前記式(1-b)で表される末端構造となる場合、該重合体は、例えば下記式(1)：

[化3]



(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、X及びYは前記式(1-a)における定義と同義であり、Qは前記式(1-b)における定義と同義であり、kは1乃至200の整数を表す。)

で表される。

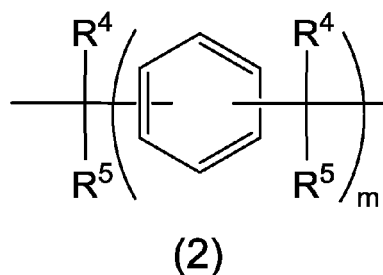
[0014] 前記式（１－ｂ）において、Ｑが窒素原子を少なくとも１つ含有する５員環又は６員環の２価の飽和複素環基を表す場合、飽和複素環として例えば、ピペラジン環、イミダゾリジン環、ピラゾリジン環を挙げることができる。

[0015] 前記式（１－ｂ）において、Ｑが炭素原子数１乃至５のアルキレン基を表し、その炭素原子数が３乃至５の場合、前記アルキレン基は直鎖状に限定されず分岐鎖状でもよい。

[0016] 前記式（１－ａ）においてＸは、例えば、水素原子の少なくとも１つがハロゲン原子で置換されていてもよい炭素原子数１乃至６のアルキレン基、環状アルキレン基、水素原子の少なくとも１つがハロゲン原子で置換されていてもよいアリーレン基、スルホニル基、カルボニル基、－Ｏ－基又は－ＣＯ－基を含む２価の有機基を表す。

[0017] 前記式（１－ａ）においてＸは、例えば下記式（２）：

[化４]

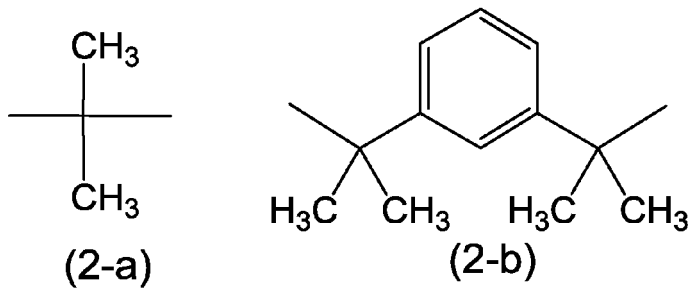


（式中、 R^4 及び R^5 はそれぞれ独立に、水素原子、又は水素原子の少なくとも１つがハロゲン原子で置換されていてもよいメチル基を表し、 m は０又は１を表す。）

で表される２価の有機基を表す。

[0018] 前記式（２）で表される２価の有機基は、例えば下記式（２－ａ）又は式（２－ｂ）：

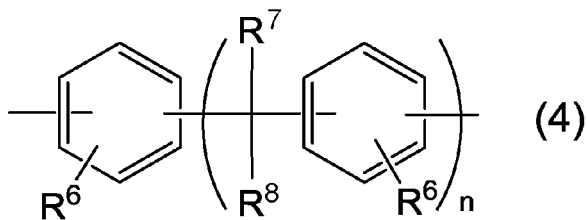
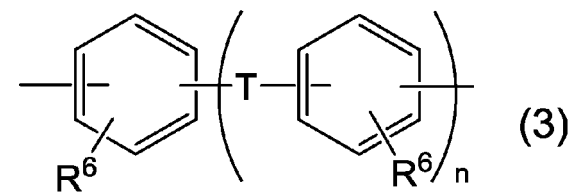
[化5]



で表される。

[0019] 前記式(1-a)においてYは、例えば下記式(3)又は式(4)：

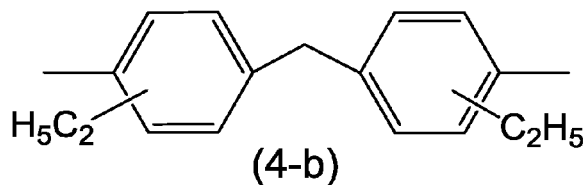
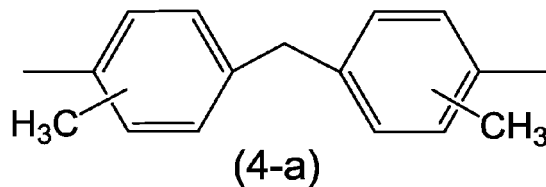
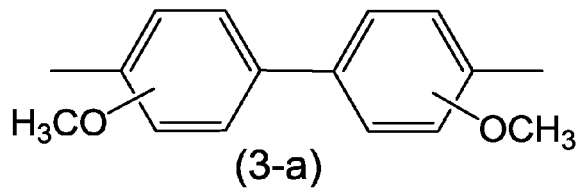
[化6]



(式中、Tは単結合、スルホニル基又は－O－基を表し、 R^7 及び R^8 はそれぞれ独立に、水素原子、又は水素原子の少なくとも1つがハロゲン原子で置換されていてもよいメチル基を表し、2つの R^6 はそれぞれ独立に水素原子、メチル基、エチル基又はメトキシ基を表し、 n は0又は1を表す。)で表される2価の有機基を表す。

[0020] 前記式(3)又は式(4)で表される2価の有機基は、例えば下記式(3-a)、式(4-a)又は式(4-b)：

[化7]



で表される。

[0021] 前記重合体の重量平均分子量は、例えば1,000乃至100,000である。

[0022] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、溶剤、シランカップリング剤、及び無機フィラーのうち少なくとも1つをさらに含むことができる。

[0023] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、例えば接着剤組成物又はアンダーフィル組成物である。

発明の効果

[0024] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、200℃以下という比較的低温で硬化させることができ、また、エポキシ樹脂の硬化反応を促進することができる。本発明の熱硬化性樹脂組成物から形成された膜は、ボイドが発生することなく良好な接着性を具備し、接着後に剥離が生じにくく、さらに耐熱性に優れると共に、良好な電気特性を示す。また、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、エポキシ樹脂が混合されることで、架橋密度が向上する。したがって、本発明の熱硬化性樹脂組成物はエポキシ硬化促進剤、接着剤又はアンダーフィル剤として有用である。

発明を実施するための形態

[0025] 本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる重合体は、例えば、ビスフェノール化合物、ジアミン化合物、及びアルデヒド化合物を溶媒に溶解させた溶液を、加熱しながら所定の時間反応させることによって得られたポリマーを含む溶液に、1分子に1つのアミノ基又はヒドロキシフェニル基を有するイミダゾール化合物と、アルデヒド化合物とを加え、加熱しながら所定の時間反応させることによって得られる。

本明細書においてビスフェノール化合物とは、1分子に2つのヒドロキシフェニル基を有する化合物であり、例えば、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン〔ビスフェノールA〕、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン〔ビスフェノールS〕、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン〔ビスフェノールAF〕、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン〔ビスフェノールF〕、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン〔ビスフェノールE〕、1, 3-ビス[2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-プロピル]ベンゼン〔ビスフェノールM〕、1, 4-ビス[2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-プロピル]ベンゼン〔ビスフェノールP〕、2, 2'-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、フェノールフタレイン、4, 4'-ビフェノール、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)シクロヘキサン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)フルオレン、1, 1-ビス(3-シクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、2, 2-ビス(3-シクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、及び2, 2-ビス(2-ヒドロキシ-5-ビフェニル)プロパンを挙げることができる。

ジアミン化合物としては、例えば、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジメチルジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジエチルジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノ-3, 3', 5, 5'-テトラメチルジフェ

ニルメタン、*o*-ジアニシジン、*o*-フェニレンジアミン、*m*-フェニレンジアミン、*p*-フェニレンジアミン、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、3, 3'-スルホニルジアニリン、及び4, 4'-スルホニルジアニリンを挙げることができる。

アルデヒド化合物としては、例えば、パラホルムアルデヒド及びホルムアルデヒドを挙げることができる。

上記化合物を溶解させる溶媒としては、例えば、トルエン、キシレン、ジオキサン、テトラヒドロフラン、クロロホルム、ジクロロメタン、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、メチルエチルケトン、及び*N*-メチル-2-ピロリドンを挙げることができる。

1分子に1つのアミノ基又はヒドロキシフェニル基を有するイミダゾール化合物としては、例えば、1-(3-アミノプロピル)イミダゾール、4-(2-メチル-1-イミダゾリル)フェニルアミン、4-(1-イミダゾリル)アニリン、3-クロロ-4-(1-イミダゾリル)アニリン、及び*p*-(1-イミダゾリル)フェノールを挙げることができる。

[0026] 本発明の熱硬化性樹脂組成物が、前記重合体とエポキシ樹脂とを含む場合、当該エポキシ樹脂としては、分子内に少なくとも1個のエポキシ基を有する化合物を使用することができる。そのようなエポキシ樹脂として、例えば、1, 4-ブタンジオールジグリシジルエーテル、1, 2-エポキシ-4-(エポキシエチル)シクロヘキサノン、グリセロールトリグリシジルエーテル、ジエチレングリコールジグリシジルエーテル、2, 6-ジグリシジルフェニルグリシジルエーテル、1, 1, 3-トリス[*p*-(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニル]プロパン、1, 2-シクロヘキサンジカルボン酸ジグリシジルエステル、4, 4'-メチレンビス(*N*, *N*-ジグリシジルアニリン)、トリメチロールエタントリグリシジルエーテル、トリグリシジル-*p*-アミノフェノール、テトラグリシジルメタキシレンジアミン、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、テトラグリシジル-1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサノン、ビスフェノール-A-ジグリシジルエーテル、ビスフ

エノールーS-ジグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールテトラグリシジ
ルエーテルレゾルシノールジグリシジルエーテル、フタル酸ジグリシジル
エステル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレン
グリコールジグリシジルエーテル、テトラブロモビスフェノールーA-ジグ
リシジルエーテル、ビスフェノールヘキサフルオロアセトンジグリシジルエ
ーテル、ペンタエリスリトールジグリシジルエーテル、トリスー(2, 3-
エポキシプロピル)イソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌ
レート、ジグリセロールポリジグリシジルエーテル、ペンタエリスリトール
ポリグリシジルエーテル、1, 4-ビス(2, 3-エポキシプロポキシパー
フルオロイソプロピル)シクロヘキサン、ソルビトールポリグリシジルエー
テル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、レゾルシンジグリ
シジルエーテル、1, 6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ポリエ
チレングリコールジグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、p
-ターシャリーブチルフェニルグリシジルエーテル、アジピン酸ジグリシジ
ルエーテル、o-フタル酸ジグリシジルエーテル、ジブロモフェニルグリシ
ジルエーテル、1, 2, 7, 8-ジエポキシオクタン、1, 6-ジメチロー
ルパーフルオロヘキサンジグリシジルエーテル、4, 4'-ビス(2, 3-
エポキシプロポキシパーフルオロイソプロピル)ジフェニルエーテル、2,
2-ビス(4-グリシジルオキシフェニル)プロパン、3', 4'-エポキ
シシクロヘキシルメチルー3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレー
ト、3, 4-エポキシシクロヘキシルオキシラン、2-(3, 4-エポキシ
シクロヘキシル)-3', 4'-エポキシ-1, 3-ジオキサン-5-スピ
ロシクロヘキサン、1, 2-エチレンジオキシービス(3, 4-エポキシシ
クロヘキシルメタン)、4', 5'-エポキシ-2'-メチルシクロヘキシ
ルメチルー4, 5-エポキシ-2-メチルシクロヘキサンカルボキシレート
、エチレングリコールービス(3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシ
レート)、ビスー(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、
ビス(2, 3-エポキシシクロペンチル)エーテル、ε-カプロラクトン変

性テトラ（３，４－エポキシシクロヘキシルメチル）ブタンテトラカルボキシレート、 ϵ －カプロラクトン変性３’，４’－エポキシシクロヘキシルメチル－３，４－エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、１，２－エポキシ－４－ビニルシクロヘキサン、１，２－エポキシ－４－（２－メチルオキシラニル）－１－メチルシクロヘキサン、２，２－ビス（ヒドロキシメチル）－１－ブタノールの１，２－エポキシ－４－（２－オキシラニル）シクロヘキサン付加物、ナフタレン型エポキシ樹脂、エポキシ化ポリブタジエン、３，４－エポキシシクロヘキシルメチルメタアクリレート、ポリグリシジルメタクリレート、スチレン－ブタジエンブロック共重合体のエポキシ化物、及び多核フェノールグリシジルエーテル誘導樹脂を挙げることができる。

[0027] 上記エポキシ樹脂は、一種のみを使用することができ、また、二種以上を組み合わせ用いることもできる。本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる重合体に対して、１質量％乃至８０質量％、又は５質量％乃至６０質量％、又は１０質量％乃至５０質量％のエポキシ樹脂を使用することができる。

[0028] 本発明の熱硬化性樹脂組成物が溶剤を含む場合、当該溶剤としては、半導体デバイス製造工程で使用できる有機溶剤であれば特に限定はない。そのような有機溶剤として、例えば、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、テトラヒドロフラン、メチルイソアミルケトン、２－ブタノン、２－ヘプタノン等のケトン類；エチレングリコール、エチレングリコールモノアセテート、ジエチレングリコール、ジエチレングリコールモノアセテート、プロピレングリコール、プロピレングリコールモノアセテート、ジプロピレングリコール、ジプロピレングリコールモノアセテート、並びにこれらのモノメチルエーテル、モノエチルエーテル、モノプロピルエーテル、モノブチルエーテル、モノフェニルエーテル等の多価アルコール類及びその誘導体；ジオキサン等の環式エーテル類；及び乳酸メチル、乳酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、ピルビン酸メチル、ピルビン酸エチル、メトキシプロピオン酸メチル、エトキシプロピオン酸エチル等のエステル類を用いることが好ましい。これらの有機溶剤は一種のみを用いてもよく、二種以上を混合して

用いてもよい。本発明の熱硬化性樹脂組成物から上記有機溶剤を除いた成分を固形分とすると、当該組成物に対する固形分の割合は、例えば1質量%乃至70質量%である。

[0029] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、必要に応じてフェノール樹脂、無機フィラー、シランカップリング剤、界面活性剤、レオロジー調整剤、架橋剤などの添加剤をさらに含有していてもよい。

[0030] 上記フェノール樹脂としては、特に制限はないが、フェノールノボラック、オルソクレゾールノボラック等の、フェノール類とアルデヒド類のノボラックを挙げることができる。

[0031] 上記無機フィラーとしては、例えば、粒子径が1nm以上700nm以下の、シリカ、窒化アルミ、窒化ボロン、ジルコニア、アルミナなどのゾルを挙げることができる。当該無機フィラーに含まれる粒子は、後述するシランカップリング剤で表面処理されていてもよい。

[0032] 上記シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシジルプロピルトリメトキシシラン、3-グリシジルプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリエトキシシラン、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、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリエトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、3-フェニルアミノプロピルトリエトキシシラン、3-トリエトキシシリルプロピルこはく酸無水物、3-トリメトキシシリルプロピルこはく酸無水物及びN-(3-トリエトキシシリルプロピル)-4,5-ジヒドロイミダゾールを挙げることができる。

[0033] 上記レオロジー調整剤としては、例えば、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジイソブチルフタレート、ジヘキシルフタレート、ブチルイソデシルフタレート等のフタル酸誘導体、ジノルマルブチルアジペート、ジイソブチルアジペート、ジイソオクチルアジペート、オクチルデシルアジペート等のアジピン酸誘導体、ジノルマルブチルマレート、ジエチルマレート、ジノニルマレート等のマレイン酸誘導体、メチルオレート、ブチルオレート、テトラヒドロフルフリルオレート等のオレイン酸誘導体、及びノルマルブチルステアレート、グリセリルステアレート等のステアリン酸誘導体を挙げることができる。

[0034] 上記界面活性剤としては、例えば、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルエーテル、ポリオキシエチレンセチルエーテル、ポリオキシエチレンオレイルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル類、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックコポリマー類、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタンモノステアレート、ソルビタンモノオレエート、ソルビタントリオレエート、ソルビタントリステアレート等のソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンモノステアレート、ポリオキシエチレンソルビタントリオレエート、ポリオキシエチレンソルビタントリステアレート等のポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル類等のノニオン系界面活性剤、エフトップ（登録商標）E F 3 0 1、同E F 3 0 3、同E F 3 5 2（三菱マテリアル電子化成（株）製）、メガファック（登録商標）F 1 7 1、同F 1 7 3、同R 3 0、同R 3 0 N、同R 4 0、同R 4 0 - L M（D I C（株）製）、フロラードF C 4 3 0、同F C 4 3 1（住友スリーエム（株）製）、アサヒガード（登録商標）A G 7 1 0、サーフロン（登録商標）S - 3 8 2、同S C 1 0 1、同S C 1 0 2、同S C 1 0 3、同S C

104、同SC105、同SC106（旭硝子（株）製）等のフッ素系界面活性剤、及びオルガノシロキサンポリマーKP341（信越化学工業（株）製）を挙げることができる。これらの界面活性剤は一種のみを添加してもよいし、二種以上の組合せで添加することもできる。

[0035] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は必ずしも上記架橋剤を必要としないが、もし使用するなら、当該架橋剤としては、例えば、メトキシメチル基、エトキシメチル基、ブトキシメチル基、ヘキシルオキシメチル基等のアルコキシメチル基又はヒドロキシメチル基で置換された窒素原子を有する含窒素化合物を挙げることができる。さらに、フェノール基含有化合物、アリル基含有化合物、アリル基含有ポリマー、イソシアネート基含有化合物又はイソシアネート基含有ポリマーを架橋剤として用いることができる。

[0036] 上記含窒素化合物としては、例えば、ヘキサメトキシメチルメラミン、テトラメトキシメチルベンゾグアナミン、1, 3, 4, 6-テトラキス（ブトキシメチル）グリコールウリル、1, 3, 4, 6-テトラキス（ヒドロキシメチル）グリコールウリル、1, 3-ビス（ヒドロキシメチル）尿素、1, 1, 3, 3-テトラキス（ブトキシメチル）尿素、1, 1, 3, 3-テトラキス（メトキシメチル）尿素、1, 3-ビス（ヒドロキシメチル）-4, 5-ジヒドロキシー-2-イミダゾリノン、1, 3-ビス（メトキシメチル）-4, 5-ジメトキシ-2-イミダゾリノン等の含窒素化合物が挙げられる。上記架橋剤としては、また、日本サイテックインダストリーズ（株）製メトキシメチルタイプメラミン化合物（商品名：CYMEL（登録商標）300、同301、同303、同350）、ブトキシメチルタイプメラミン化合物（商品名：マイコート（登録商標）506、同508）、グリコールウリル化合物（商品名：CYMEL（登録商標）1170、POWDERLINK（登録商標）1174）、メチル化尿素樹脂（商品名：UFR65）、ブチル化尿素樹脂（商品名：UFR300、U-VAN10S60、U-VAN10R、U-VAN11HV）、DIC（株）製尿素／ホルムアルデヒド系樹脂（高縮合型、商品名：ベッカミン（登録商標）J-300S、同P-9

55、同N)の市販されている化合物を挙げることができる。

[0037] 上記架橋剤は、一種の化合物のみを使用することができ、また、二種以上の化合物を組み合わせて用いることもできる。本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる重合体に対して、1質量%乃至50質量%、又は8質量%乃至40質量%、又は15質量%乃至30質量%の架橋剤を使用することができる。

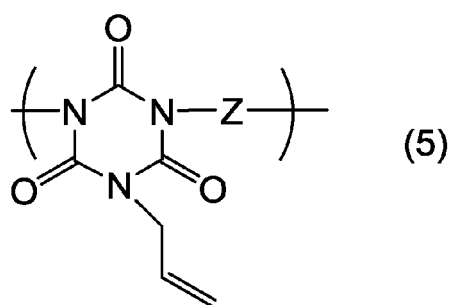
[0038] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、上記架橋剤と共に架橋触媒を含むことができる。架橋触媒を使用することにより、上記架橋剤の反応が促進される。架橋触媒としては、例えば、p-トルエンスルホン酸、トリフルオロメタンスルホン酸、メタンスルホン酸、ピリジニウム-p-トルエンスルホナート、サリチル酸、カンファースルホン酸、5-スルホサリチル酸、クエン酸、安息香酸、ヒドロキシ安息香酸、4-クロロベンゼンスルホン酸、4-ヒドロキシベンゼンスルホン酸、ベンゼンジスルホン酸及び1-ナフタレンスルホン酸を挙げることができる。上記架橋触媒は、一種のみを使用することができ、また、二種以上を組み合わせて用いることもできる。本発明の熱硬化性樹脂組成物に含まれる重合体に対して0.01質量%乃至10質量%、又は0.05質量%乃至8質量%、又は0.1質量%乃至5質量%、又は0.3質量%乃至3質量%、又は0.5質量%乃至1質量%の架橋触媒を使用することができる。

[0039] 本発明の熱硬化性樹脂組成物は、接着剤組成物又はアンダーフィル組成物として使用することができる。本発明の熱硬化性樹脂組成物を接着剤組成物又はアンダーフィル組成物として使用する場合、本発明における本質的な特性を損なわない範囲で、さらに、混和性のある添加剤、例えば接着剤の性能を改良するための付加的樹脂、粘着付与剤、可塑剤、接着助剤、安定剤、着色剤、消泡材、フラックスなどの慣用されている添加剤を含有することができる。

[0040] 接着剤の性能を改良するための付加的樹脂（ポリマー）としては、ポリエステル、ポリスチレン、ポリイミド、アクリルポリマー、メタクリルポリマ

一、ポリビニルエーテル、フェノールノボラック、ナフトールノボラック、ポリエーテル、ポリアミド、ポリカーボネート等の付加重合ポリマー又は縮重合ポリマーを使用することができ、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、トリアジン環、キノリン環、キノキサリン環等の芳香環を有するポリマーが好ましく使用される。前記トリアジン環を有するポリマーとして、例えば下記式（５）で表される構造単位を有するポリエステルを挙げることができる。

[化8]



（式中、Zは2価の有機基を表す。）

[0041] 上記のような付加的樹脂（ポリマー）としては、例えば、ベンジルアクリレート、ベンジルメタクリレート、フェニルアクリレート、ナフチルアクリレート、アントリルメタクリレート、アントリルメチルメタクリレート、スチレン、ヒドロキシスチレン、ベンジルビニルエーテル、N-フェニルマレイミド等の付加重合性モノマーをその構造単位として含む付加重合ポリマー、及びフェノールノボラック、ナフトールノボラック等の縮重合ポリマーを挙げることができる。また、付加的樹脂（ポリマー）としては芳香環を有さないポリマーを使用することもできる。そのようなポリマーとしては、例えば、アルキルアクリレート、アルキルメタクリレート、ビニルエーテル、アルキルビニルエーテル、アクリロニトリル、マレイミド、N-アルキルマレイミド、マレイン酸無水物等の芳香環を有さない付加重合性モノマーのみをその構造単位として含む付加重合ポリマーを挙げることができる。付加的樹脂（ポリマー）として付加重合ポリマーが使用される場合、そのポリマーは単独重合体でもよく共重合体であってもよい。

[0042] 本発明の熱硬化性樹脂組成物を使用した接着剤組成物又はアンダーフィル組成物に添加される付加的樹脂（ポリマー）の重量平均分子量は、例えば、1,000乃至1,000,000、又は3,000乃至300,000、又は5,000乃至200,000、又は10,000乃至100,000である。本発明の接着剤組成物又はアンダーフィル組成物に付加的樹脂（ポリマー）が含まれる場合、その含有量としては、固形分中で例えば40質量%以下、又は20質量%以下、又は1乃至19質量%である。

[0043] 上記粘着付与剤は、弾性率、粘性及び表面状態の制御のために添加される。かかる粘着付与剤の種類は、粘性を考慮して定めることが好ましいが、例えば、脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族・芳香族共重合系石油樹脂、脂環族系水添石油樹脂、アルキルフェノール樹脂、キシレン樹脂、クマロンインデン樹脂、テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、水素化テルペン樹脂、ロジン系樹脂、水添ロジン系樹脂、不均化ロジン系樹脂、二量化ロジン系樹脂、及びエステル化ロジン系樹脂から選択される一種又は二種以上の組み合わせが挙げられる。この粘着付与剤は、本発明の接着剤組成物又はアンダーフィル組成物に含まれる重合体に対して、例えば100質量%以下、又は50質量%以下の割合で含有することができる。

実施例

[0044] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

[0045] 以下に記載する合成例で得られた重合体のGPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）分析は、下記の装置を用い、測定条件は下記のとおりである。

装置：一体型高速GPCシステム HLC-8220GPC 東ソー（株）製

カラム：KF-G, KF-804L

カラム温度：40℃

溶媒：テトラヒドロフラン（THF）

流量：1.0 mL／分

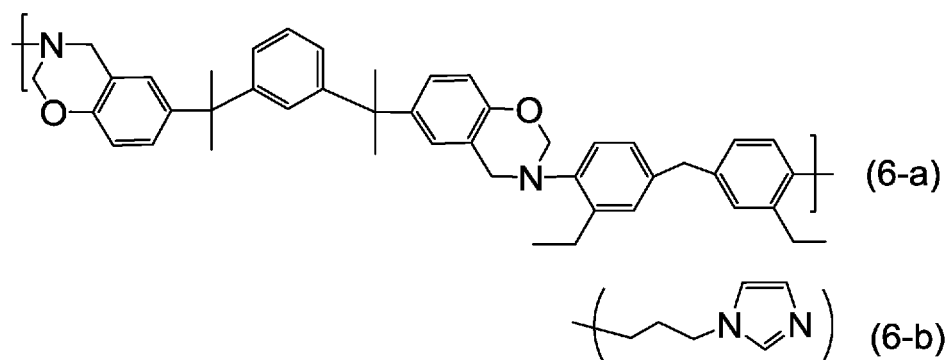
標準試料：ポリスチレン

ディテクター：RI

[0046] ＜合成例1＞

4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジエチルジフェニルメタン（日本化薬（株）製、KAYAHARD A-A）45.79 g、ビスフェノールM（三井化学ファイン（株）製）69.29 g、パラホルムアルデヒド（東京化成工業（株）製）22.81 g及びトリエチルアミン4.05 gをN-メチル-2-ピロリドン331.18 gに溶解させた後、窒素置換し90℃で20時間反応させポリマーを含む溶液を得た。その後、室温まで冷却し、得られた溶液に、1-(3-アミノプロピル)イミダゾール（東京化成工業（株）製）6.26 g、パラホルムアルデヒド（東京化成工業（株）製）6.34 g、トリエチルアミン0.40 g及び、N-メチル-2-ピロリドン30.33 gを加えた後、窒素置換し90℃で8時間反応させた。更に得られた溶液をメタノールに滴下し、再沈殿させた。その後、ブフナーロートで吸引ろ過し、メタノールにて2回洗浄し、得られた粉体を減圧乾燥機で12時間乾燥させ重合体を得た。得られた重合体のGPC分析を行ったところ、標準ポリスチレン換算にて重量平均分子量は4,000であった。なお、得られた重合体は、下記式（6-a）で表される繰り返し構造単位及び下記式（6-b）で表される末端構造を有し、当該重合体の末端が下記式（6-b）で表される末端構造である割合は、原料化合物であるビスフェノールMのモル数に対して、20mol％であると推定される。

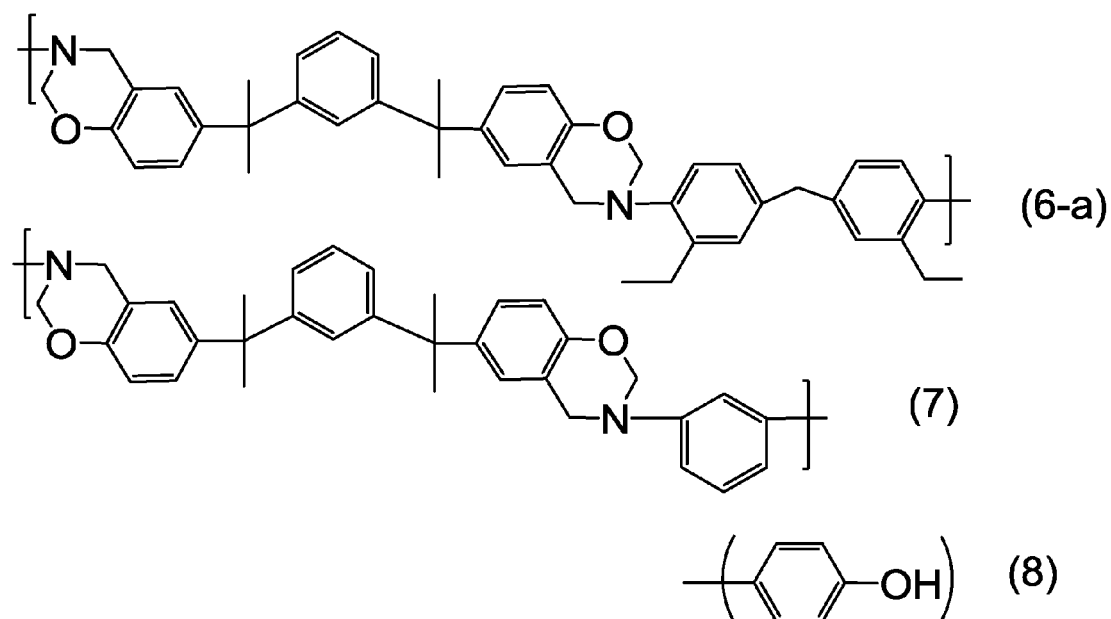
[化9]



[0047] <合成例2>

1, 3-フェニレンジアミン（東京化成工業（株）製）1.95 g、4, 4'-ジアミノ-3, 3'-ジエチルジフェニルメタン（日本化薬（株）製、KAYAHARD A-A）41.20 g、ビスフェノールM（三井化学ファイン（株）製）69.30 g、パラホルムアルデヒド（東京化成工業（株）製）22.87 g及びトリエチルアミン4.05 gをN-メチル-2-ピロリドン320.48 gに溶解させた後、窒素置換し90℃で20時間反応させポリマーを含む溶液を得た。その後、得られた溶液をメタノールに滴下し、再沈殿させた。その後、ブフナーロートで吸引ろ過し、メタノールにて2回洗浄し、得られた粉体を減圧乾燥機で12時間乾燥させ重合体を得た。得られた重合体のGPC分析を行ったところ、標準ポリスチレン換算にて重量平均分子量は9,900であった。なお、得られた重合体は、下記式（6-a）で表される繰り返し構造単位及び下記式（7）で表される繰り返し構造単位、並びに下記式（8）で表される末端を有すると推定され、上記式（6-b）で表されるようなイミダゾール環を含む末端構造を有さない。

[化10]



[0048] ＜比較例 1＞

エポキシ樹脂硬化剤である 1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール（東京化成工業（株）製）を用意した。

[0049] ＜比較例 2＞

エポキシ樹脂硬化剤である 2-エチル-4-メチルイミダゾール（東京化成工業（株）製）を用意した。

[0050] ＜比較例 3＞

エポキシ樹脂硬化剤である 4-メチル-2-フェニルイミダゾール（東京化成工業（株）製）を用意した。

[0051] [耐熱性評価]

合成例 1 で得られた重合体、並びに比較例 1 乃至比較例 3 で用意されたイミダゾール系のエポキシ樹脂硬化剤の耐熱性について、TG-DTA（NETZSCH 社製、TG/DTA 2010 SR）にて、試料を 10℃/分で昇温し 5 質量%の重量減少を生ずる温度（以下、本明細書では 5 質量%重量減温度と略称する。）を測定した結果から評価した。5 質量%重量減温度の測定結果を下記表 1 に示す。

[0052]

[表1]

表 1

	5 質 量 % 重 量 減 温 度 (°C)
合 成 例 1	3 8 3
比 較 例 1	2 3 1
比 較 例 2	1 1 2
比 較 例 3	2 0 7

[0053] 合成例 1 で得られた重合体の 5 質量%重量減温度は 3 8 3 °C となり、比較例 1 乃至比較例 3 で用意されたイミダゾール系のエポキシ樹脂硬化剤と比較して高い耐熱性を示した。

[0054] [熱硬化性樹脂組成物の調製]

<実施例 1>

合成例 1 で得られた重合体 1 0 g をテトラヒドロフラン 4 0 g に溶解させ、その後、孔径 0. 2 μ m のポリテトラフルオロエチレン（以下、本明細書では P T F E と略称する。）製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形分を 2 0 質量%含有する組成物を調製した。

[0055] <実施例 2>

合成例 1 で得られた重合体 5 g とエポキシ樹脂であるエポリド G T 4 0 1（株式会社ダイセル製）5 g をテトラヒドロフラン 4 0 g に溶解させ、その後、孔径 0. 2 μ m の P T F E 製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形分を 2 0 質量%含有する組成物を調製した。

[0056] <実施例 3>

合成例 1 で得られた重合体 5 0 g をシクロペンタノン 5 0 g に溶解させ、その後、孔径 5. 0 μ m の P T F E 製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形分を 5 0 質量%含有する組成物を調製した。

[0057] <実施例 4>

合成例 1 で得られた重合体 2 5 g とエポキシ樹脂であるエポリド G T 4 0 1（株式会社ダイセル製）2 5 g をシクロペンタノン 5 0 g に溶解させ、その後、孔径 5. 0 μ m の P T F E 製マイクロフィルターを用いてろ過し、固

形分を50質量%含有する組成物を調製した。

[0058] <実施例5>

合成例1で得られた重合体3g、フェノールノボラック樹脂であるKAYAHARD GPH-65（日本化薬（株）製）2g、エポキシ樹脂であるエポリドGT401（株式会社ダイセル製）5g及び3-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン（東京化成工業（株）製）2gをテトラヒドロフラン65.5gに溶解させ、その後、無機フィラーであるオルガノシリカゾル〔3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシランで表面処理したシリカのメチルエチルケトン分散液、前記シリカの一次粒子径40nm乃至50nm、固形分30.8質量%、比重（20℃）1.007、粘度（20℃）2.5mPa・s、水分0.08質量%〕32.5gを混和させ、固形分を20質量%含有する組成物を調製した。

[0059] <実施例6>

合成例1で得られた重合体3g、フェノールノボラック樹脂であるKAYAHARD GPH-65（日本化薬（株）製）2g、エポキシ樹脂であるエポリドGT401（株式会社ダイセル製）5g、3-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン（東京化成工業（株）製）2gをシクロペンタノン22gに溶解させ、その後、無機フィラーであるオルガノシリカゾル〔3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシランで表面処理したシリカのメチルエチルケトン分散液、前記シリカの一次粒子径40nm乃至50nm、固形分30.8質量%、比重（20℃）1.007、粘度（20℃）2.5mPa・s、水分0.08質量%〕32.5gを混和させた。その後エバポレーターを用いて濃縮を行い、固形分を50質量%含有する組成物を調製した。

[0060] <比較例4>

合成例2で得られた重合体5gとエポキシ樹脂であるエポリドGT401（株式会社ダイセル製）5gをテトラヒドロフラン40gに溶解させ、その後、孔径0.2μmのPTFE製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形

分を20質量%含有する組成物を調製した。

[0061] <比較例5>

合成例2で得られた重合体25gとエポキシ樹脂であるエポリドGT401（株式会社ダイセル製）25gをシクロペンタノン50gに溶解させ、その後、孔径5.0 μ mのPTFE製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形分を50質量%含有する組成物を調製した。

[0062] <比較例6>

合成例2で得られた重合体25g、比較例1の1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール0.5g及びエポキシ樹脂であるエポリドGT401（株式会社ダイセル製）25.5gをシクロペンタノン51.0gに溶解させ、その後、孔径5.0 μ mのPTFE製マイクロフィルターを用いてろ過し、固形分を50質量%含有する組成物を調製した。

[0063] [硬化性評価]

実施例1、実施例2及び実施例5で調製した組成物1g並びに比較例4で調製した組成物1gを直径40mmの金属製カップにいれ、50℃で60分間ベーク後、65℃で60分間ベークし、更に80℃で30分間ベークしてテトラヒドロフランを蒸発させ、熱硬化性の樹脂膜を形成した。その後、前記樹脂膜の硬化温度を、レオメーター（アントンパール社製、MCR102）を用いて5℃/分で昇温して評価し、硬化温度が190℃未満なら○、190℃以上なら×と判断した。なお、ここで示す硬化温度とは、樹脂膜の硬化反応によって複素粘度が10,000Pa・sとなる温度である。その硬化温度の結果を下記表2に示す。

[0064] [表2]

表 2

	硬化性
実施例 1	○
実施例 2	○
実施例 5	○
比較例 4	×

[0065] 実施例 1、実施例 2 及び実施例 5 で調製した組成物から形成された樹脂膜は、比較例 4 で調製した組成物から形成された樹脂膜と比較して硬化温度が低い結果となり、本発明の熱硬化性樹脂組成物は、エポキシ硬化反応を促進していることが示された。

[0066] [接着性評価]

実施例 3、実施例 4 及び実施例 6 で調製した組成物及び比較例 6 で調製した組成物を、4 インチのシリコンウェハー上に、ベーク後の厚みが $15\ \mu\text{m}$ 乃至 $25\ \mu\text{m}$ となるよう 100°C で 5 分間ベーク後、 130°C で 5 分間ベークしてシクロペンタノン蒸発させ、熱硬化性の樹脂膜を形成した。その後、貼り合せ装置（アユミ工業（株）製、VJ-300）を使用して、真空度 $10\ \text{Pa}$ 以下、温度 140°C 、印加荷重 $300\ \text{kg}$ の条件下で、前記樹脂膜を形成したシリコンウェハーを他の 4 インチガラスウェハーと接着させ、その後、 180°C で 60 分間加熱して樹脂を硬化させた。ボイド無く良好に接着できた場合を○、ボイドが存在し接着不良が見られた場合を×と評価した。その結果を下記表 3 に示す。

[0067] [接着後耐熱性]

上記接着性の評価で良好に接着できたサンプルについて、 200°C で 5 分間の加熱後、 250°C のホットプレートに載せ、剥離発生の有無を確認した。前記ホットプレートにそのサンプルを載せてから 1 時間以上経過しても剥離が発生しない場合を○、1 時間未満にて剥離が発生する場合を×と評価した。その結果を下記表 3 に示す。

[0068] [表3]

表 3

	接 着 性	接 着 後 耐 熱 性
実 施 例 3	○	○
実 施 例 4	○	○
実 施 例 6	○	○
比 較 例 6	×	—

[0069] 実施例 3、実施例 4 及び実施例 6 で調製した組成物は、良好な接着性と接

着後の耐熱性を有することがわかった。一方、既存のエポキシ樹脂硬化剤である１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾールを使用した比較例６で調製した組成物は耐熱性が低く、昇華に起因すると考えられるボイドが発生した。

[0070] [硬化膜の物性評価]

実施例４及び実施例６で調製した組成物並びに比較例５及び比較例６で調製した組成物を、アルミ箔をラミネートしたシリコンウェハー上に、ベーク後の厚みが１５μm乃至２５μmとなるようスピコートし、１００℃で５分間ベーク後、１３０℃で５分間ベークしてシクロペンタノンを蒸発させ、アルミ箔に積層された熱硬化性の樹脂膜を得た。その後、窒素雰囲気中でさらに１８０℃で６０分間ベークして樹脂膜を硬化させた後、６mol/Lの塩酸水溶液に投入してアルミ箔を溶解させ、硬化膜を得た。得られた硬化膜を幅５mmにカットし、 T_g と、 T_g 前温度及び T_g 後温度の線膨張係数（CTE）を、熱機械分析（TMA）装置（NETZSCH社製、TMA4000SA）で５℃/分で室温から２００℃まで昇温したときの硬化膜の伸びを測定することにより評価した。 T_g は１４０℃以上を○、１４０℃未満を×と判断し、 T_g 前温度のCTEは７０ppm/℃未満を○、７０ppm/℃以上を×と判断し、 T_g 後温度のCTEは１０００ppm/℃未満を○、１０００ppm/℃以上を×と判断した。ここでいう T_g は、硬化膜の伸び量の変曲する温度である。測定結果を下記表４に示す。

[0071] [表４]

表 ４

	T_g	T_g 前温度の CTE	T_g 後温度の CTE
実施例 4	○	○	○
実施例 6	○	○	○
比較例 5	×	×	×
比較例 6	×	○	○

[0072] 実施例４及び実施例６で調製した組成物から得られた硬化膜は、エポキシ

樹脂の架橋が十分進み、良好な硬化膜特性が得られた。一方、比較例 5 及び比較例 6 で調製した組成物から得られた硬化膜は、エポキシ樹脂との架橋が不十分と考えられる特性不良を生じた。

[0073] [電気特性評価]

実施例 3、実施例 4 及び実施例 6 で調製した組成物に、シクロペンタノンを加えて希釈し、シリコンウェハー上にスピコートを用いて塗布し、ホットプレート上において 100℃で 2 分間ベーク後、130℃で 2 分間ベークを行い、さらに、窒素置換されたオープン中で、180℃で 60 分間ベークを行い、膜厚 500 nm の硬化膜を形成した。作製したサンプルに対し、C V m a p 92 B (F o u r D i m e n s i o n s 社製) にて 1 M V / c m の電界強度を印加したときのリーク電流密度、及び誘電率を測定した。その結果を下記表 5 に示す。

[0074] [表5]

表 5

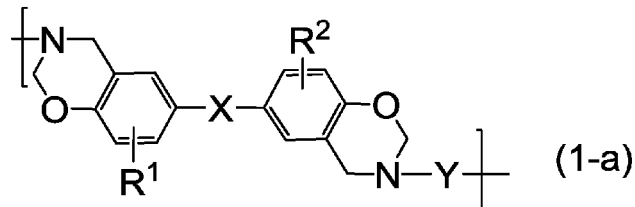
	誘電率	リーク電流密度 (A / c m ²)
実施例 3	2 . 9	0 . 5 × 1 0 ⁻⁹
実施例 4	3 . 3	2 . 5 × 1 0 ⁻⁹
実施例 6	3 . 5	0 . 9 × 1 0 ⁻⁹

[0075] 実施例 3、実施例 4 及び実施例 6 で調製した組成物から得られた硬化膜は、接着剤又はアンダーフィル用途として良好な電気特性を有することがわかった。

請求の範囲

[請求項1] 下記式（1-a）：

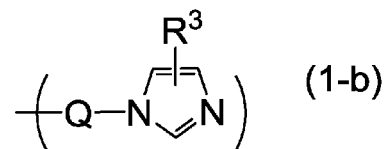
[化1]



（式中、 R^1 及び R^2 はそれぞれ独立に水素原子、炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基、フェニル基又は炭素原子数 3 乃至 6 の環状アルキル基を表し、 X は単結合又は 2 価の有機基を表し、 Y は 2 価の有機基を表す。）

で表される繰り返し構造単位及び下記式（1-b）：

[化2]



（式中、 Q は炭素原子数 1 乃至 5 のアルキレン基、水素原子の少なくとも 1 つがハロゲン原子で置換されていてもよいフェニレン基、又は窒素原子を少なくとも 1 つ含有する 5 員環もしくは 6 員環の 2 価の飽和複素環基を表し、 R^3 は水素原子又はメチル基を表す。）

で表される末端構造を有する重合体を含む熱硬化性樹脂組成物。

[請求項2] 前記重合体の末端が前記式（1-b）で表される末端構造である割合は、当該重合体の原料化合物であるジアミン化合物又はビスフェノール化合物のモル数に対する前記末端構造の形成に消費されるイミダゾール化合物のモル数の比で表されるものと定義するとき、1 mol % 乃至 100 mol % である、請求項 1 に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項3] 前記式（1-b）において Q は炭素原子数 1 乃至 5 のアルキレン基

を表す、請求項 1 又は請求項 2 に記載の熱硬化性樹脂組成物。

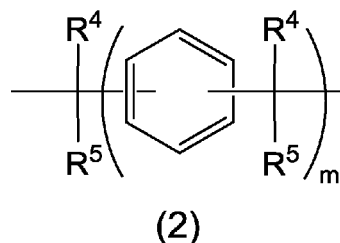
[請求項4]

前記式 (1-a) において X は、水素原子の少なくとも 1 つがハロゲン原子で置換されていてもよい炭素原子数 1 乃至 6 のアルキレン基、環状アルキレン基、水素原子の少なくとも 1 つがハロゲン原子で置換されていてもよいアリーレン基、スルホニル基、カルボニル基、 $-O-$ 基又は $-COO-$ 基を含む 2 価の有機基を表す、請求項 1 乃至請求項 3 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項5]

前記式 (1-a) において X は下記式 (2) :

[化3]



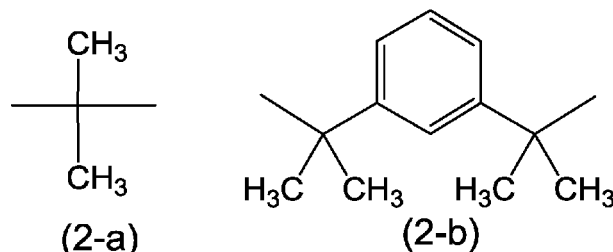
(式中、 R^4 及び R^5 はそれぞれ独立に、水素原子、又は水素原子の少なくとも 1 つがハロゲン原子で置換されていてもよいメチル基を表し、 m は 0 又は 1 を表す。)

で表される 2 価の有機基を表す、請求項 1 乃至請求項 4 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項6]

前記式 (2) で表される 2 価の有機基は下記式 (2-a) 又は式 (2-b) :

[化4]

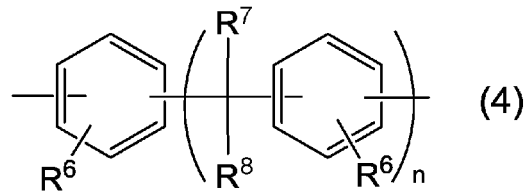
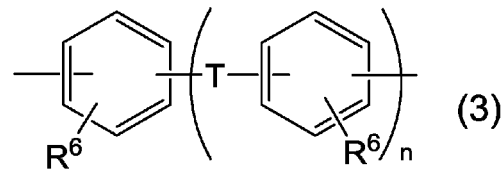


で表される、請求項 5 に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項7]

前記式 (1-a) において、Y は下記式 (3) 又は式 (4) :

[化5]

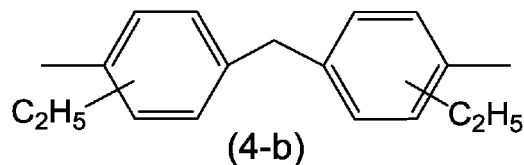
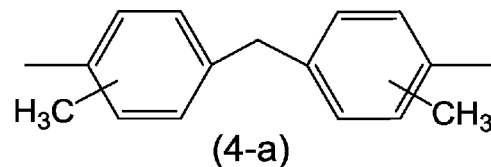
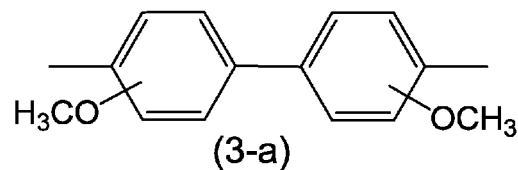


(式中、Tは単結合、スルホニル基又は－O－基を表し、R⁷及びR⁸はそれぞれ独立に、水素原子、又は水素原子の少なくとも1つがハロゲン原子で置換されていてもよいメチル基を表し、2つのR⁶はそれぞれ独立に水素原子、メチル基、エチル基又はメトキシ基を表し、nは0又は1を表す。)

で表される2価の有機基を表す、請求項1乃至請求項5のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項8] 前記式(3)又は式(4)で表される2価の有機基は下記式(3-a)、式(4-a)又は式(4-b)：

[化6]



で表される請求項7に記載の熱硬化性樹脂組成物。

[請求項9] 前記重合体の重量平均分子量は1,000乃至100,000であ

る請求項 1 乃至請求項 8 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
。

- [請求項10] エポキシ樹脂をさらに含む請求項 1 乃至請求項 9 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項11] フェノール樹脂をさらに含む請求項 1 乃至請求項 10 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項12] 溶剤をさらに含む請求項 1 乃至請求項 11 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項13] シランカップリング剤をさらに含む請求項 1 乃至請求項 12 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項14] 無機フィラーをさらに含む請求項 1 乃至請求項 13 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。
- [請求項15] 接着剤組成物又はアンダーフィル組成物である請求項 1 乃至請求項 14 のいずれか一項に記載の熱硬化性樹脂組成物。