



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I406097B1

(45)公告日：中華民國 102 (2013) 年 08 月 21 日

(21)申請案號：099145551

(22)申請日：中華民國 99 (2010) 年 12 月 23 日

(51)Int. Cl. : G03F7/039 (2006.01)

C08L79/08 (2006.01)

C08L77/12 (2006.01)

C07F7/08 (2006.01)

(30)優先權：2009/12/28 日本

2009-296800

(71)申請人：東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)

日本

(72)發明人：宮部倫次 MIYABE, TOMOTSUGU (JP) ; 藤田陽二 FUJITA, YOJI (JP)

(74)代理人：詹銘文；葉璟宗

(56)參考文獻：

JP 2004-124054A

JP 2005-43883A

JP 2008-83124A

審查人員：游瀚霆

申請專利範圍項數：5 項 圖式數：0 共 70 頁

(54)名稱

正型感光性樹脂組成物

POSITIVE PHOTO-SENSITIVE RESIN COMPOSITION

(57)摘要

本發明提供一種保存穩定性，特別是感光度穩定性優異，可形成與 350°C 以上的高溫加熱處理後、或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性優異的硬化膜的正型感光性樹脂組成物。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有(a)將特定的聚醯亞胺前驅物作為主成分的聚合物及/或將特定的聚醯亞胺作為主成分的聚合物，(b)醌二疊氮化合物，(c)具有特定的苯乙烯基的矽烷偶合劑，(d)具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑，以及(e)溶劑。

This invention provides a positive photo-sensitive resin composition having storage stability, especially excellent in photo-sensitive stability, and the composition can form a curing film having excellent adhesive property with a substrate after a high temperature heating process of 350°C or more, or after a heating process in the air. The positive photo-sensitive resin composition of this invention includes: (a) a polymer having a specific polyimide precursor and/or a polymer having a specific polyimide, (b) a quinine diazide compound, (c) a silane coupling agent having a specific styryl group, (d) a silane coupling agent, and (e) solvent.

公告本

## 發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：99145551

G03F 7/039 (2006.01)

※申請日：99.12.23

※IPC 分類：C08C 29/08 (2006.01)

77/12 C2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

C07F 7/08 C2006.01)

正型感光性樹脂組成物

POSITIVE

PHOTO-SENSITIVE

RESIN

COMPOSITION

## 二、中文發明摘要：

本發明提供一種保存穩定性，特別是感光度穩定性優異，可形成與 350°C 以上的高溫加熱處理後、或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性優異的硬化膜的正型感光性樹脂組成物。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有 (a) 將特定的聚醯亞胺前驅物作為主成分的聚合物及/或將特定的聚醯亞胺作為主成分的聚合物，(b) 醌二疊氮化合物，(c) 具有特定的苯乙烯基的矽烷偶合劑，(d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑，以及 (e) 溶劑。

### 三、英文發明摘要：

This invention provides a positive photo-sensitive resin composition having storage stability, especially excellent in photo-sensitive stability, and the composition can form a curing film having excellent adhesive property with a substrate after a high temperature heating process of 350°C or more, or after a heating process in the air. The positive photo-sensitive resin composition of this invention includes: (a) a polymer having a specific polyimide precursor and/or a polymer having a specific polyimide, (b) a quinine diazide compound, (c) a silane coupling agent having a specific styryl group, (d) a silane coupling agent, and (e) solvent.

**四、指定代表圖：**

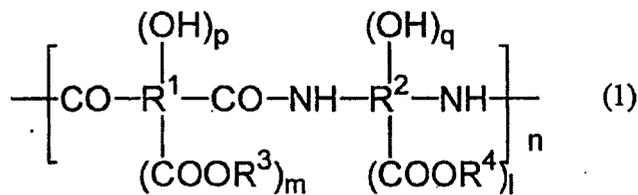
(一)本案指定代表圖為：無。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無。

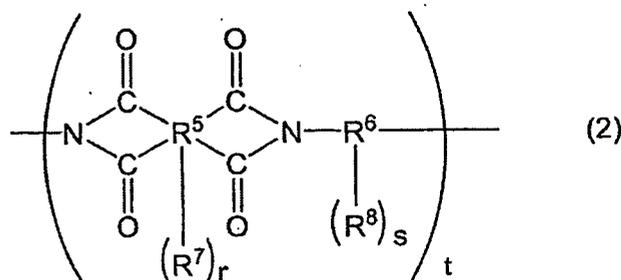
**五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：**

[化 1]



(上述通式(1)中， $R^1$ 及 $R^2$ 分別獨立地表示碳數為2以上的2價~8價的有機基； $R^3$ 及 $R^4$ 分別獨立地表示氫或碳數為1~20的1價的有機基； $n$ 表示10~100,000的範圍； $l$ 及 $m$ 分別獨立地表示0~2的整數， $p$ 及 $q$ 分別獨立地表示0~4的整數；其中， $p+q>0$ )

[化 2]



(上述通式(2)中， $R^5$ 表示4價~10價的有機基， $R^6$ 表示2價~8價的有機基； $R^7$ 及 $R^8$ 表示酚性羥基、磺酸基或硫醇基，且分別可為單一的基，亦可混合存在不同的基； $t$ 表示3~100,000的範圍； $r$ 及 $s$ 表示0~6的整數)。

## 六、發明說明：

### 【發明所屬之技術領域】

本發明是有關於一種正型感光性樹脂組成物。更詳細而言，本發明是有關於一種適合於半導體元件的表面保護膜、層間絕緣膜，有機電場發光元件的絕緣層等且經曝光的部分溶解於鹼性顯影液的正型的感光性樹脂組成物。

### 【先前技術】

聚醯亞胺或聚苯并噁唑等耐熱性樹脂因具有優異的耐熱性、電絕緣性，故被用於 LSI (Large Scale Integration, 大規模積體電路) 等半導體元件的表面保護膜、層間絕緣膜等。伴隨半導體元件的微細化，對於表面保護膜、層間絕緣膜等亦要求幾  $\mu\text{m}$  的解析度。因此，於此種用途中，使用可進行微細加工的正型的感光性聚醯亞胺組成物或感光性聚苯并噁唑組成物。當將聚醯亞胺或聚苯并噁唑等耐熱性樹脂用於表面保護膜或層間絕緣膜時，熱硬化後的樹脂作為永久皮膜而殘留於元件內，因此熱硬化後的樹脂組成物與用作元件的基材的基板的密接性非常重要。

迄今為止，為了提昇與高溫加熱處理或高氧濃度環境下的加熱處理後的基材的黏接性，已提出有含有耐熱性樹脂前驅物與具有芳香族環的特定結構的矽烷偶合劑的耐熱性樹脂前驅物組成物 (例如，參照專利文獻 1)。另外，作為使感光度穩定性、耐化學品性與黏接性並存的正型感光性樹脂組成物，已提出有含有耐熱性樹脂前驅物、醌二疊氮化合物、含烷氧基甲基的化合物、具有特定結構的胺基

矽烷化合物、以及溶劑的正型感光性樹脂組成物（例如，參照專利文獻 2）。另一方面，作為曝光後的感光度或解析度的穩定性優異的感光性樹脂前驅物組成物，已提出有含有耐熱性樹脂前驅物、兩種以上的光酸產生劑及含烷氧基甲基的化合物的感光性樹脂前驅物組成物（例如，參照專利文獻 3）。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻 1]日本專利特開 2004-124054 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開 2008-83124 號公報

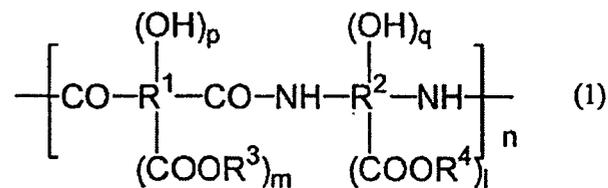
[專利文獻 3]日本專利特開 2005-43883 號公報

上述先前公知的感光性樹脂組成物雖然可提昇與加熱處理後的基板的密接性，但保存穩定性並不充分，尤其感光度的下降是問題。另外，一般的矽烷偶合劑多為胺基等官能基與烷氧基矽烷基藉由脂肪族烴基而鍵結的矽烷偶合劑，易於因在空氣中的加熱處理或高溫加熱處理而分解。因此，由含有上述矽烷偶合劑的正型感光性樹脂組成物所形成的硬化膜存在與高溫加熱處理或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性大幅下降的問題。因此，本發明的目的在於提供一種保存穩定性、特別是感光度穩定性優異，可形成與 350°C 以上的高溫加熱處理後、或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性優異的硬化膜的正型感光性樹脂組成物。

【發明內容】

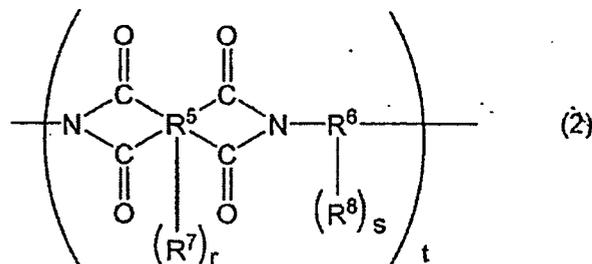
本發明是一種正型感光性樹脂組成物，其含有 (a) 將由下述通式 (1) 所表示的結構作為主成分的聚合物及/或將由下述通式 (2) 所表示的結構作為主成分的聚合物，(b) 醃二疊氮化合物，(c) 具有由下述通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑，(d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醃氧基、丙烯醃氧基、胺基、醃胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑，以及 (e) 溶劑。

[化 1]



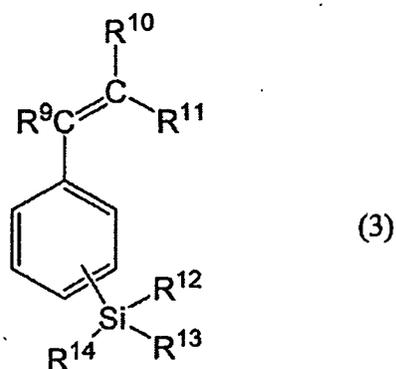
上述通式 (1) 中， $R^1$  及  $R^2$  分別獨立地表示碳數為 2 以上的 2 價~8 價的有機基。 $R^3$  及  $R^4$  分別獨立地表示氫或碳數為 1~20 的 1 價的有機基。 $n$  表示 10~100,000 的範圍。 $l$  及  $m$  分別獨立地表示 0~2 的整數， $p$  及  $q$  分別獨立地表示 0~4 的整數。其中， $p+q>0$ 。

[化 2]



上述通式(2)中， $R^5$ 表示4價~10價的有機基， $R^6$ 表示2價~8價的有機基。 $R^7$ 及 $R^8$ 表示酚性羥基、磺酸基或硫醇基，且分別可為單一的基，亦可混合存在不同的基。 $t$ 表示3~100,000的範圍。 $r$ 及 $s$ 表示0~6的整數。

[化3]



上述通式(3)中， $R^9$ ~ $R^{11}$ 表示氫或碳數為1~3的烷基。 $R^{12}$ ~ $R^{14}$ 分別獨立地表示碳數為1~6的烷基、碳數為2~4的烯基、苯基、取代苯基或碳數為1~6的烷氧基，且至少一個是碳數為1~6的烷氧基。

[發明的效果]

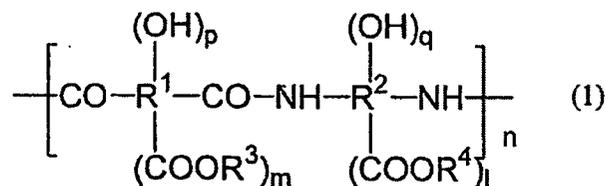
根據本發明，可獲得保存穩定性、特別是感光度穩定性優異的正型感光性樹脂組成物。另外，藉由本發明的正型感光性樹脂組成物，可獲得與350°C以上的高溫加熱處理後、或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性優異的硬化膜。

【實施方式】

本發明的正型感光性樹脂組成物含有(a)將由下述通

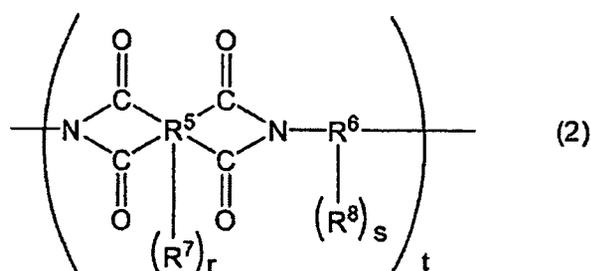
式(1)所表示的結構作為主成分的聚合物及/或將由下述通式(2)所表示的結構作為主成分的聚合物。較佳為聚醯亞胺樹脂、聚醯亞胺前驅物的聚醯胺酸或聚醯胺酸酯、聚苯并噁唑前驅物的聚羥基醯胺，耐熱性、耐溶劑性優異。此處，所謂將由下述通式(1)所表示的結構作為主成分的聚合物中的主成分，是指含有聚合物的總結構單元的 50 莫耳%以上的下述通式(1)中作為 n 個重複單元所表示的 ( ) 內的結構單元。較佳為含有 70 莫耳%以上，更佳為含有 90 莫耳%以上。另外，所謂將由下述通式(2)所表示的結構作為主成分的聚合物中的主成分，是指含有聚合物的總結構單元的 50 莫耳%以上的下述通式(2)中作為 t 個重複單元所表示的 ( ) 內的結構單元。較佳為含有 70 莫耳%以上，更佳為含有 90 莫耳%以上。

[化 4]



上述通式(1)中， $R^1$ 及 $R^2$ 分別獨立地表示碳數為 2 以上的 2 價~8 價的有機基。 $R^3$ 及 $R^4$ 分別獨立地表示氫或碳數為 1~20 的 1 價的有機基。 $n$ 表示 10~100,000 的範圍。 $l$ 及 $m$ 分別獨立地表示 0~2 的整數， $p$ 及 $q$ 分別獨立地表示 0~4 的整數。其中， $p+q>0$ 。

[化 5]



上述通式 (2) 中， $R^5$  表示 4 價～10 價的有機基， $R^6$  表示 2 價～8 價的有機基。 $R^7$  及  $R^8$  表示酚性羥基、磺酸基或硫醇基，且分別可為單一的基，亦可混合存在不同的基。 $t$  表示 3～100,000 的範圍。 $r$  及  $s$  表示 0～6 的整數。

本發明的感光性樹脂組成物中所使用的 (a) 成分的聚合物可為僅包含由通式 (1) 或通式 (2) 所表示的結構單元的聚合物，亦可併用兩種。

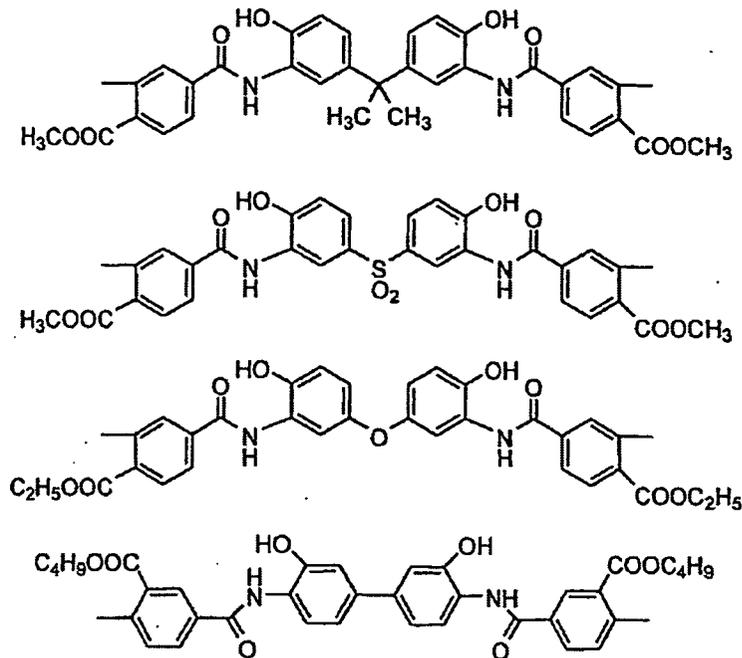
另外，若由通式 (1) 或通式 (2) 所表示的結構單元中具有氟原子，則當利用鹼性水溶液進行顯影時，對膜的界面賦予斥水性，抑制界面的滲入等，故較佳。為了充分地獲得界面的滲入防止效果，分別相對於具有由通式 (1) 所表示的結構單元的聚醯亞胺、及具有由通式 (2) 所表示的結構單元的聚醯亞胺前驅物的氟原子含量較佳為 10 wt% (重量百分比) 以上，另外，就對於鹼性水溶液的溶解性的觀點而言，較佳為 20 wt% 以下。

上述通式 (1) 中， $R^1$  表示碳數為 2 以上的 2 價～8 價的有機基，並表示酸的結構成分。作為  $R^1$  成為 2 價的酸，

可列舉：對苯二甲酸、間苯二甲酸、二苯醚二羧酸、萘二羧酸、雙(羧基苯基)丙烷等芳香族二羧酸，環己烷二羧酸、己二酸等脂肪族二羧酸等。作為  $R^1$  成為 3 價的酸，可列舉：偏苯三甲酸、均苯三甲酸等三羧酸等。作為  $R^1$  成為 4 價的酸，可列舉：均苯四甲酸、二苯甲酮四羧酸、聯苯四羧酸、二苯醚四羧酸、二苯基砜四羧酸等芳香族四羧酸，或者丁烷四羧酸、環戊烷四羧酸等脂肪族四羧酸，使該些酸的 2 個羧基的氫原子變成甲基或乙基而成的二酯化合物等。另外，亦可列舉：羥基鄰苯二甲酸、羥基偏苯三甲酸等具有羥基的酸。亦可使用兩種以上的該些酸成分，但較佳為包含 1 莫耳%~40 莫耳%的四羧酸的殘基。另外，就對於鹼性顯影液的溶解性或感光性的觀點而言，較佳為包含 50 莫耳%以上的具有羥基的酸的殘基。

就耐熱性的觀點而言， $R^1$  較佳為具有芳香族環，更佳為碳數為 6~30 的 3 價或 4 價的有機基。作為通式 (1) 的  $R^1(COOR^3)_m(OH)_p$  的結構的較佳例，可列舉下述所示的結構。

[化 6]

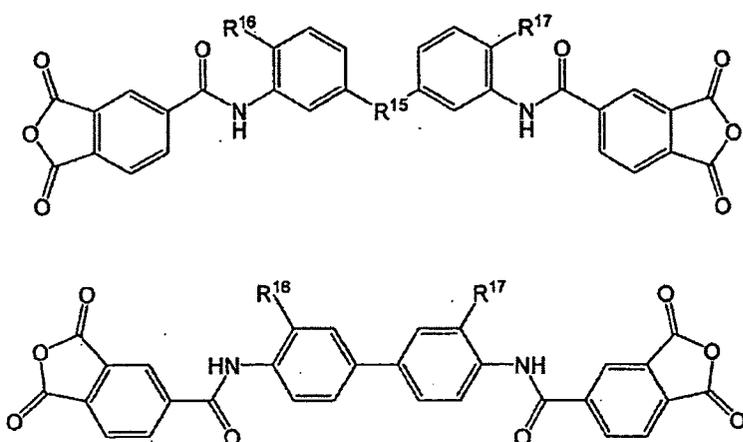


上述通式 (2) 中， $R^5$  表示酸二酐的殘基，為 4 價～10 價的有機基。其中，較佳為含有芳香族環或環狀脂肪族基的碳原子數為 5～40 的有機基。

作為酸二酐，具體而言，可列舉：均苯四甲酸二酐、3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐、2,3,3',4'-聯苯四羧酸二酐、2,2',3,3'-聯苯四羧酸二酐、3,3',4,4'-二苯甲酮四羧酸二酐、2,2',3,3'-二苯甲酮四羧酸二酐、2,2-雙(3,4-二羧基苯基)丙烷二酐、2,2-雙(2,3-二羧基苯基)丙烷二酐、1,1-雙(3,4-二羧基苯基)乙烷二酐、1,1-雙(2,3-二羧基苯基)乙烷二酐、雙(3,4-二羧基苯基)甲烷二酐、雙(2,3-二羧基苯基)甲烷二酐、雙(3,4-二羧基苯基)砜二酐、雙(3,4-二羧基苯基)醚二酐、1,2,5,6-萘四羧酸二酐、9,9-雙(3,4-二羧基苯基)芴二酐、9,9-雙{4-(3,4-二羧基苯氧基)苯基}芴二酐、2,3,6,7-萘四羧酸二酐、2,3,5,6-吡啶四羧酸二酐、3,4,9,10-芘四羧酸二酐、2,2-

雙(3,4-二羧基苯基)六氟丙烷二酐等芳香族四羧酸二酐，或者丁烷四羧酸二酐、1,2,3,4-環戊烷四羧酸二酐等脂肪族的四羧酸二酐，3,3',4,4'-二苯基砜四羧酸二酐及下述所示的結構的酸二酐等。該些可單獨使用、或者組合使用兩種以上。

[化 7]

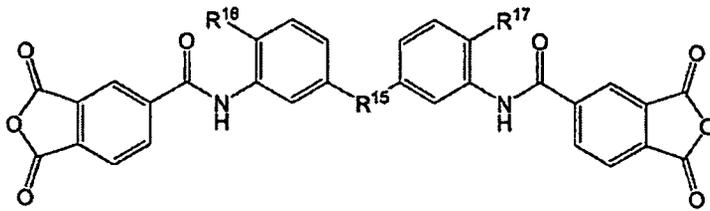


$R^{15}$  表示氧原子、 $C(CF_3)_2$ 、 $C(CH_3)_2$  或  $SO_2$ ， $R^{16}$  及  $R^{17}$  表示氫原子、羥基或硫醇基。

該些之中，較佳為 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐、2,3,3',4'-聯苯四羧酸二酐、2,2',3,3'-聯苯四羧酸二酐、3,3',4,4'-二苯甲酮四羧酸二酐、2,2',3,3'-二苯甲酮四羧酸二酐、2,2-雙(3,4-二羧基苯基)丙烷二酐、2,2-雙(2,3-二羧基苯基)丙烷二酐、1,1-雙(3,4-二羧基苯基)乙烷二酐、1,1-雙(2,3-二羧基苯基)乙烷二酐、雙(3,4-二羧基苯基)甲烷二酐、雙(2,3-二羧基苯基)甲烷二酐、雙(3,4-二羧基苯基)砜二酐、雙(3,4-二羧基苯基)醚二酐、2,2-雙(3,4-二羧基苯基)六氟丙烷二酐、

3,3',4,4'-二苯基砒四羧酸二酐、9,9-雙(3,4-二羧基苯基)第二酐、9,9-雙{4-(3,4-二羧基苯氧基)苯基}第二酐及下述所示的結構的酸二酐。

[化 8]

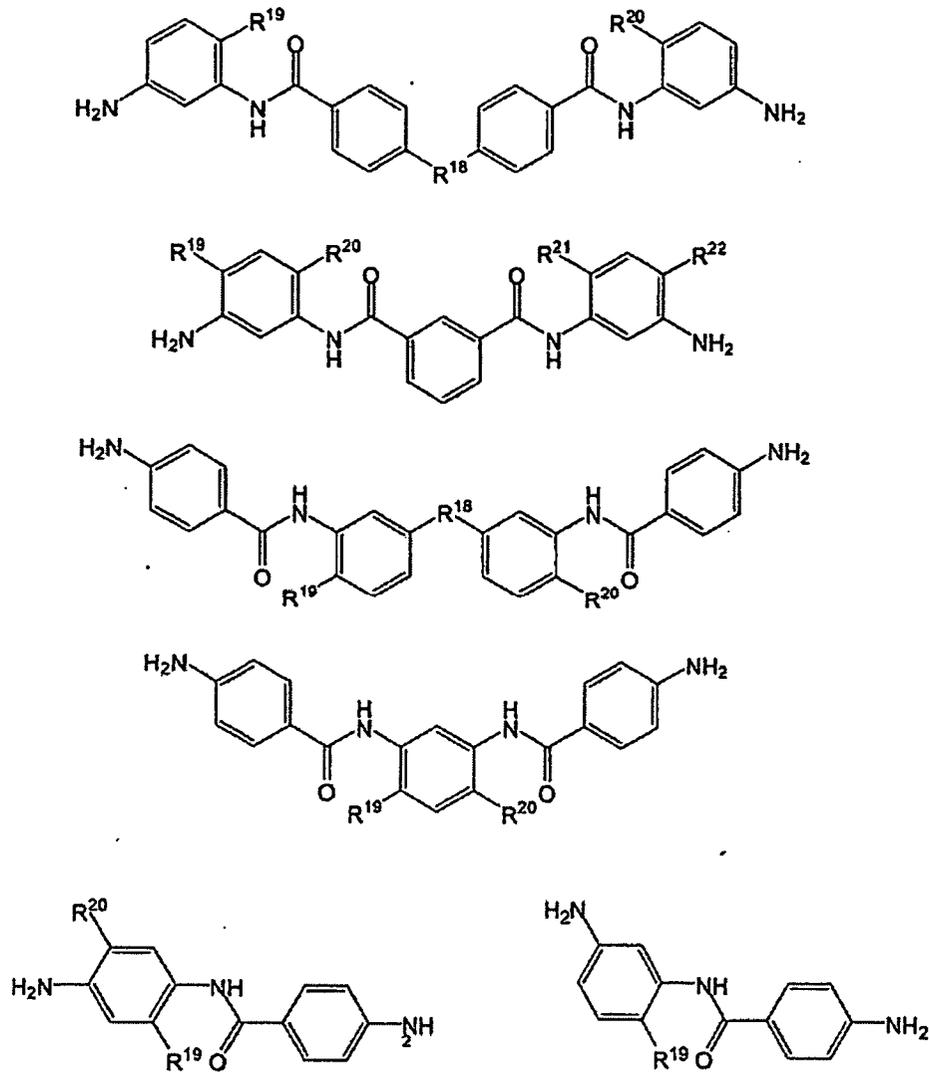


$R^{15}$  表示氧原子、 $C(CF_3)_2$ 、 $C(CH_3)_2$  或  $SO_2$ ， $R^{16}$  及  $R^{17}$  表示氫原子、羥基或硫醇基。

通式 (1) 中的  $R^2$ 、通式 (2) 中的  $R^6$  表示碳數為 2 個以上的 2 價~8 價的有機基，並表示二胺的結構成分。就耐熱性的觀點而言， $R^2$  較佳為具有芳香族環。作為二胺的具體例，可列舉：3,4'-二胺基二苯基硫醚，4,4'-二胺基二苯基硫醚，石油精，1,5-萘二胺，2,6-萘二胺，雙(4-胺基苯氧基)聯苯，雙{4-(4-胺基苯氧基)苯基}醚，1,4-雙(4-胺基苯氧基)苯，2,2'-二甲基-4,4'-二胺基聯苯，2,2'-二乙基-4,4'-二胺基聯苯，3,3'-二甲基-4,4'-二胺基聯苯，3,3'-二乙基-4,4'-二胺基聯苯，2,2',3,3'-四甲基-4,4'-二胺基聯苯，3,3',4,4'-四甲基-4,4'-二胺基聯苯，2,2'-二(三氟甲基)-4,4'-二胺基聯苯，9,9-雙(4-胺基苯基)蒽，間苯二胺、對苯二胺等苯二胺，3,4'-二胺基二苯醚、4,4'-二胺基二苯醚等二胺基二苯醚，1,4-雙(4-胺基苯氧基)苯等胺基苯氧基苯，3,4'-二胺基二苯

甲烷、4,4'-二胺基二苯甲烷等二胺基二苯甲烷，3,4'-二胺基二苯基砜、4,4'-二胺基二苯基砜等二胺基二苯基砜，雙(三氟甲基)聯苯胺，雙(胺基苯氧基苯基)丙烷，雙(4-胺基苯氧基苯基)砜、雙(3-胺基苯氧基苯基)砜等雙(胺基苯氧基苯基)砜，雙(胺基-羥基-苯基)六氟丙烷，二胺基二羥基嘧啶，二胺基二羥基吡啶，羥基-二胺基-嘧啶，二胺基苯酚，二羥基聯苯胺，二胺基苯甲酸，二胺基對苯二甲酸，藉由烷基或鹵素原子取代該些的芳香族環的氫的至少一部分而成的化合物，或者脂肪族的環己二胺，亞甲基雙環己胺，六亞甲基二胺，下述所示的結構的二胺。

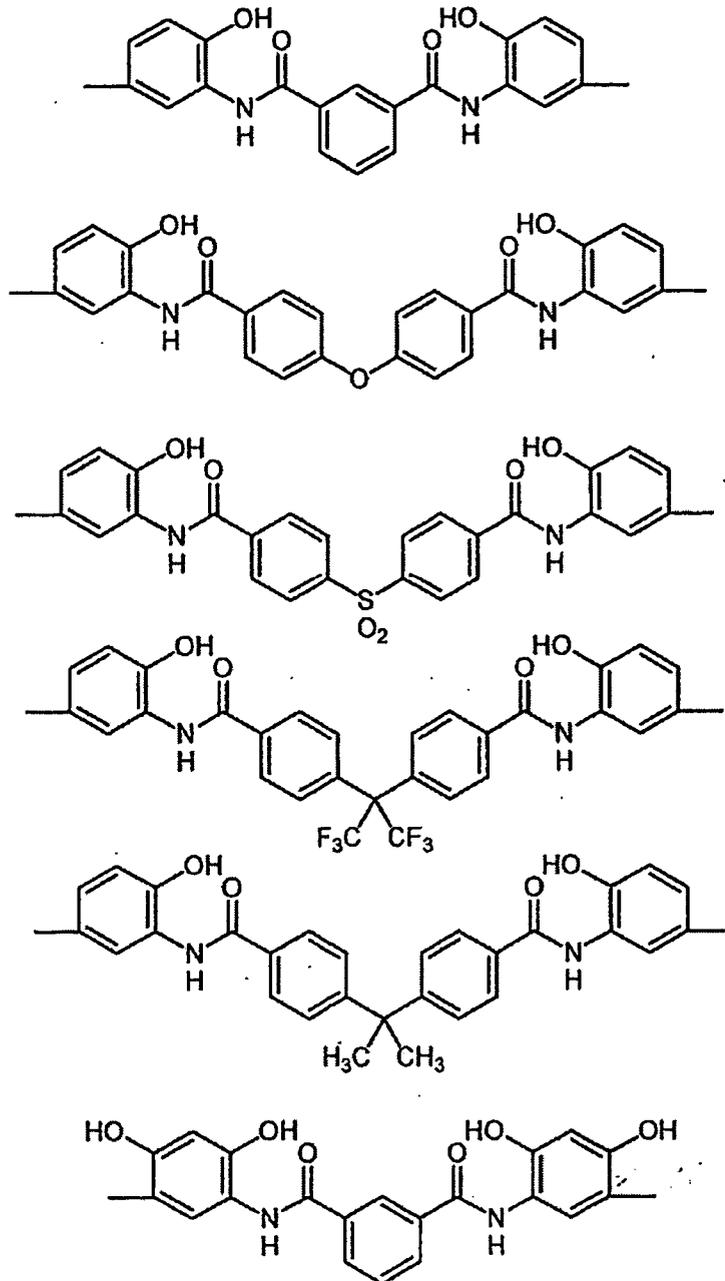
[化 9]



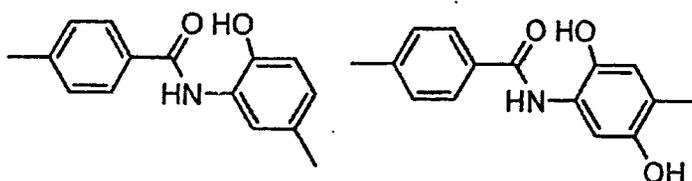
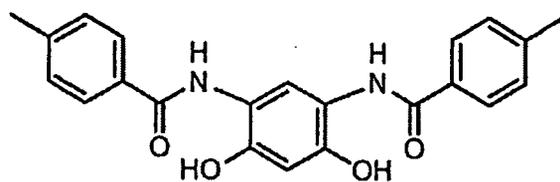
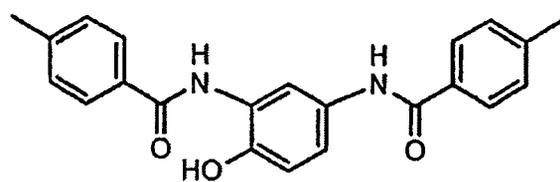
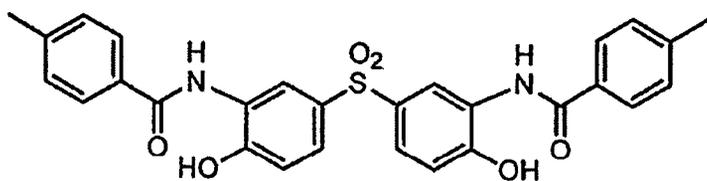
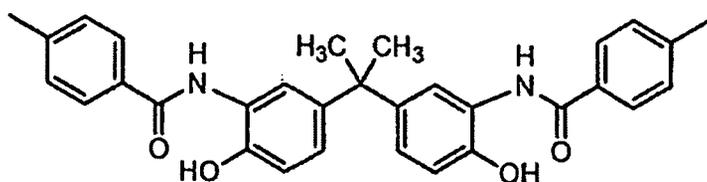
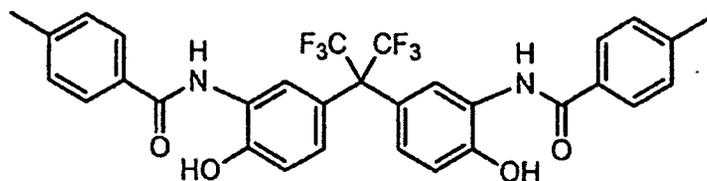
$R^{18}$  表示氧原子、 $C(CF_3)_2$ 、 $C(CH_3)_2$  或  $SO_2$ ， $R^{19} \sim R^{22}$  表示氫原子、羥基或硫醇基。

另外，亦可列舉通式 (1) 的  $R^2(COOR^4)_l(OH)_q$  由下述結構所表示的二胺。該些之中，較佳為通式 (1) 的  $R^2(COOR^4)_l(OH)_q$  由下述結構所表示的二胺。亦可使用兩種以上的該些二胺成分，但就對於鹼性顯影液的溶解性的觀點而言，較佳為含有 60 莫耳%以上的具有羥基的二胺的殘基。

## [化 10]



## [化 11]



通式(1)的  $R^3$  及  $R^4$  分別可相同，亦可不同，表示氫或碳數為 1~20 的 1 價的有機基。就對於鹼性顯影液的溶解性與所獲得的感光性樹脂組成物的溶液穩定性的觀點而言，較佳為  $R^3$  及  $R^4$  各自的 10 莫耳%~90 莫耳%為氫。進而，更佳為  $R^3$  及  $R^4$  分別含有至少一個以上的碳數為 1~

16 的 1 價的烴基，且其他為氫原子。

另外，通式 (1) 的  $l$  及  $m$  表示羧基或酯基的數量，分別獨立地表示 0~2 的整數。較佳為 1 或 2。通式 (1) 的  $p$  及  $q$  分別獨立地表示 0~4 的整數，且  $p+q>0$ 。通式 (1) 的  $n$  表示聚合物的結構單元的重複數，且為 10~100,000 的範圍。若  $n$  未滿 10，則存在聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性變得過大，無法獲得曝光部與未曝光部的對比度，而無法形成所期望的圖案的情況。另一方面，若  $n$  大於 100,000，則聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性變得過小，曝光部無法溶解，而無法形成所期望的圖案。就聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性方面而言， $n$  較佳為 1,000 以下，更佳為 100 以下。另外，就伸長率提昇方面而言， $n$  較佳為 20 以上。

另外，於通式 (2) 中， $R^7$  及  $R^8$  表示酚性羥基、磺酸基或硫醇基， $r$ 、 $s$  分別表示  $R^7$ 、 $R^8$  的數量。就所獲得的感光性樹脂組成物溶液的穩定性方面而言， $r$  及  $s$  較佳為 4 以下。另外，就聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性方面而言，較佳為  $r+s>0$ 。

通式 (2) 的  $t$  表示聚合物的結構單元的重複數，較佳為 3 以上，更佳為 5 以上。若  $t$  未滿 3，則存在聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性變得過大，無法獲得曝光部與未曝光部的對比度，而無法形成所期望的圖案的情況。另一方面，若  $t$  大於 100,000，則聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性變得過小，曝光部無法溶解，而無法形成所期望的圖

案。就聚合物的對於鹼性顯影液的溶解性方面而言， $t$  較佳為 200 以下，更佳為 100 以下。若為該範圍，則本發明的感光性樹脂組成物可用於厚膜，且可賦予對於鹼性顯影液的充分的溶解性。

通式 (1) 的  $n$  及通式 (2) 的  $t$  可藉由利用凝膠滲透色譜法 (Gel Permeation Chromatography, GPC) 或光散射法、X 射線小角度散射法 (Small-Angle X-ray Scattering) 等測定重量平均分子量 ( $M_w$ ) 而容易地算出。若將重複單元的分子量設定為  $M$ ，將聚合物的重量平均分子量設定為  $M_w$ ，則  $n = M_w/M$ 。本發明中的重複數  $n$  及  $t$  是指藉由利用最簡便的聚苯乙烯換算的 GPC 測定所算出的值。

進而，為了提昇與基板的黏接性，亦可於不使耐熱性下降的範圍內，使通式 (1) 的  $R^1$  及/或  $R^2$ 、以及通式 (2) 的  $R^5$  及/或  $R^6$  與具有矽氧烷結構的脂肪族的基共聚。具體而言，作為二胺成分，可列舉共聚有 1 莫耳%~10 莫耳%的雙(3-胺基丙基)四甲基二矽氧烷、雙(對胺基-苯基)八甲基五矽氧烷等的二胺等。

另外，可使封端劑與將由通式 (1) 及通式 (2) 所表示的結構作為主成分的聚合物的末端進行反應。藉由具有選自由羥基、羧基、磺酸基及硫醇基所組成的組群中的官能基的單胺對聚合物的末端進行封端，藉此可將樹脂的對於鹼性水溶液的溶解速度調整至較佳的範圍。另外，藉由酸酐、單醯氯、一元羧酸、單活性酯化合物對聚合物的末端進行封端，藉此可將對於鹼性水溶液的溶解速度調整至

較佳的範圍。

可用作封端劑的單胺較佳為 5-胺基-8-羥基喹啉、1-羥基-7-胺基萘、1-羥基-6-胺基萘、1-羥基-5-胺基萘、1-羥基-4-胺基萘、2-羥基-7-胺基萘、2-羥基-6-胺基萘、2-羥基-5-胺基萘、1-羧基-7-胺基萘、1-羧基-6-胺基萘、1-羧基-5-胺基萘、2-羧基-7-胺基萘、2-羧基-6-胺基萘、2-羧基-5-胺基萘、2-胺基苯甲酸、3-胺基苯甲酸、4-胺基苯甲酸、4-胺基水楊酸、5-胺基水楊酸、6-胺基水楊酸、2-胺基苯磺酸、3-胺基苯磺酸、4-胺基苯磺酸、3-胺基-4,6-二羥基嘓啶、2-胺基苯酚、3-胺基苯酚、4-胺基苯酚、2-胺基硫酚、3-胺基硫酚、4-胺基硫酚等。該些可單獨使用、或者組合使用兩種以上。

可用作封端劑的酸酐、一元羧酸、單醯氯化合物、單活性酯化合物較佳為鄰苯二甲酸酐、順丁烯二酸酐、耐地酸、環己烷二羧酸酐、3-羥基鄰苯二甲酸酐等酸酐，3-羧基苯酚、4-羧基苯酚、3-羧基硫酚、4-羧基硫酚、1-羥基-7-羧基萘、1-羥基-6-羧基萘、1-羥基-5-羧基萘、1-巯基-7-羧基萘、1-巯基-6-羧基萘、1-巯基-5-羧基萘、3-羧基苯磺酸、4-羧基苯磺酸等一元羧酸類，以及該些的羧基經醯氯化而成的單醯氯化合物及對苯二甲酸、鄰苯二甲酸、順丁烯二酸、環己烷二羧酸、1,5-二羧基萘、1,6-二羧基萘、1,7-二羧基萘、2,6-二羧基萘等二羧酸類的僅單羧基經醯氯化而成的單醯氯化合物，藉由單醯氯化合物與 N-羥基苯并三唑或 N-羥基-5-降冰片烯-2,3-二羧基醯亞胺的反應所獲得的

活性酯化合物等。該些可單獨使用、或者組合使用兩種以上。

單胺、酸酐、單醯氯、一元羧酸、單活性酯化合物等封端劑的含量相對於所有胺成分，較佳為 5 莫耳%~50 莫耳%。亦可藉由使多種封端劑反應而導入多個不同的末端基。

導入至聚合物中的封端劑可藉由以下的方法而容易地檢測。例如，使導入有封端劑的聚合物溶解於酸性溶液中，而分解成作為聚合物的構成單位的胺成分與酸酐成分，然後藉由氣相層析法（Gas Chromatography, GC）或核磁共振（Nuclear Magnetic Resonance, NMR）對其進行測定，藉此可容易地檢測封端劑。除此以外，亦可直接藉由熱裂解氣相層析法（Pyrolysis Gas Chromatography, PGC）或紅外光譜測定及  $^{13}\text{C}$ -NMR 光譜測定來檢測導入有封端劑的聚合物。

將由通式(1)所表示的結構作為主成分的聚合物是藉由以下的方法合成。於為聚醯胺酸或聚醯胺酸酯時，例如有如下方法等：於低溫中使四羧酸二酐與二胺化合物、用於封端的單胺基化合物進行反應；藉由四羧酸二酐與醇而獲得二酯，其後在縮合劑的存在下與二胺化合物、單胺基化合物進行反應；藉由四羧酸二酐與醇而獲得二酯，其後將殘餘的二羧酸醯氯化，並與二胺化合物、單胺基化合物反應。於為聚羥基醯胺時，例如有使雙胺基苯酚化合物與二羧酸、單胺基化合物進行縮合反應的方法。具體而言，

有使二環己基碳二亞胺 (Dicyclohexylcarbodiimide, DCC) 之類的脫水縮合劑與酸進行反應，並向其中添加雙胺基苯酚化合物、單胺基化合物的方法，或者向添加有吡啶等三級胺的雙胺基苯酚化合物、單胺基化合物的溶液中滴加二甲醯氯的溶液的方法等。

較理想的是藉由上述方法使將由通式(1)所表示的結構作為主成分的聚合物聚合後，將其投入至大量的水或甲醇/水的混合液等中，使其沈澱後進行過濾乾燥，並進行單離。藉由該沈澱操作來去除未反應的單體、或者二聚物或三聚物等寡聚物成分，並提昇熱硬化後的膜特性。

本發明中所使用的具有由通式(2)所表示的結構的聚合物例如可利用如下方法合成：利用合成具有由通式(1)所表示的結構的聚合物的方法獲得聚醯亞胺前驅物，並使用公知的醯亞胺化反應法使其完全醯亞胺化；或者，於中途停止醯亞胺化反應，導入一部分醯亞胺結構；進而，混合已完全醯亞胺化的聚合物與上述聚醯亞胺前驅物，藉此導入一部分醯亞胺結構。

另外，(a)成分的具有由通式(2)所表示的結構的聚合物的醯亞胺化率例如可藉由以下的方法而容易地求出。首先，測定聚合物的紅外吸收光譜，確認由聚醯亞胺所引起的醯亞胺結構的吸收波峰 ( $1780\text{ cm}^{-1}$  附近、 $1377\text{ cm}^{-1}$  附近) 的存在。其次，將於  $350^{\circ}\text{C}$  下對該聚合物進行 1 小時熱處理而成者的醯亞胺化率作為 100% 的樣品來測定紅外吸收光譜，比較熱處理前後的聚合物的  $1377\text{ cm}^{-1}$  附近的

波峰強度，藉此算出熱處理前聚合物中的醯亞胺基的含量，並求出醯亞胺化率。

本發明的正型感光性樹脂組成物亦可含有(a)成分的聚合物以外的聚合物，例如可列舉酚醛清漆樹脂。藉由含有酚醛清漆樹脂，可提昇感光度、對比度。亦可含有兩種以上的酚醛清漆樹脂。酚醛清漆樹脂可藉由以公知的方法使酚類與醛類縮聚合而獲得。

作為上述酚類的較佳例，可列舉：苯酚、鄰甲酚、間甲酚、對甲酚、2,3-二甲苯酚、2,5-二甲苯酚、3,4-二甲苯酚、3,5-二甲苯酚、2,3,5-三甲基苯酚、3,4,5-三甲基苯酚等。亦可使用兩種以上的該些酚類。另外，作為上述醛類的較佳例，可列舉：甲醛、三聚甲醛、乙醛、苯甲醛、羥基苯甲醛、氯乙醛等。亦可使用兩種以上的該些醛類。該醛類的使用量相對於酚類 1 莫耳，較佳為 0.6 莫耳以上，更佳為 0.7 莫耳以上。

酚醛清漆樹脂的聚苯乙烯換算重量平均分子量（以下，稱為「M<sub>w</sub>」）較佳為 1,000 以上，更佳為 2,000 以上。另外，較佳為 20,000 以下，更佳為 10,000 以下。若為該範圍，則將本發明的正型感光性樹脂組成物塗佈於基材上時的作業性、對於鹼性顯影液的溶解性優異。

酚醛清漆樹脂的含量相對於(a)成分的聚合物 100 重量份，較佳為 30 重量份以上，且較佳為 200 重量份以下。若為該範圍，則感光度得到提昇。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有(b)醯二疊氮化

合物。作為醌二疊氮化合物，可列舉：聚羥基化合物與醌二疊氮的磺酸藉由酯鍵結而成的醌二疊氮化合物、聚胺基化合物與醌二疊氮的磺酸藉由磺醯胺鍵結而成的醌二疊氮化合物、聚羥基聚胺基化合物與醌二疊氮的磺酸藉由酯及/或磺醯胺鍵結而成的醌二疊氮化合物等。該些聚羥基化合物或聚胺基化合物的所有官能基亦可不由醌二疊氮取代，但就曝光部與未曝光部的對比度的觀點而言，較佳為所有官能基的 50 莫耳%以上由醌二疊氮取代。藉由使用此種醌二疊氮化合物，可獲得對作為一般的紫外線的水銀燈的 i 線 (365 nm)、h 線 (405 nm)、g 線 (436 nm) 感光的正型的感光性樹脂組成物。於本發明中，醌二疊氮化合物亦可較佳地使用具有 5-萘醌二疊氮磺醯基、4-萘醌二疊氮磺醯基中的任一個的醌二疊氮化合物。根據進行曝光的波長，較佳為選擇 4-萘醌二疊氮磺醯基酯化合物、5-萘醌二疊氮磺醯基酯化合物，亦可含有兩種以上的該些化合物。另外，亦可含有同一分子中具有 4-萘醌二疊氮磺醯基、5-萘醌二疊氮磺醯基的萘醌二疊氮磺醯基酯化合物。

作為聚羥基化合物，可列舉：Bis-Z、BisP-EZ、TekP-4HBPA、TrisP-HAP、TrisP-PA、TrisP-SA、TrisOCR-PA、BisOCHP-Z、BisP-MZ、BisP-PZ、BisP-IPZ、BisOCP-IPZ、BisP-CP、BisRS-2P、BisRS-3P、BisP-OCHP、亞甲基三-FR-CR、BisRS-26X、DML-MBPC、DML-MBOC、DML-OCHP、DML-PCHP、DML-PC、DML-PTBP、DML-34X、DML-EP、DML-POP、二羥甲基-BisOC-P、

DML-PFP、DML-PSBP、DML-MTrisPC、TriML-P、TriML-35XL、TML-BP、TML-HQ、TML-pp-BPF、TML-BPA、TMOM-BP、HML-TPPHBA、HML-TPHAP(以上,商品名,本州化學工業(股份)製造),BIR-OC、BIP-PC、BIR-PC、BIR-PTBP、BIR-PCHP、BIP-BIOC-F、4PC、BIR-BIPC-F、TEP-BIP-A、46DMOC、46DMOEP、TM-BIP-A(以上,商品名,旭有機材工業(股份)製造),2,6-二甲氧基甲基-4-第三丁基苯酚、2,6-二甲氧基甲基-對甲酚、2,6-二乙醯氧基甲基-對甲酚、萘酚、四羥基二苯甲酮、沒食子酸甲酯、雙酚 A、雙酚 E、亞甲基雙酚、BisP-AP(商品名,本州化學工業(股份)製造)等,但並不限定於該些。

作為聚胺基化合物,可列舉:1,4-苯二胺、1,3-苯二胺、4,4'-二胺基二苯醚、4,4'-二胺基二苯甲烷、4,4'-二胺基二苯基砜、4,4'-二胺基二苯硫醚等,但並不限定於該些。

作為聚羥基聚胺基化合物,可列舉:2,2-雙(3-胺基-4-羥苯基)六氟丙烷、3,3'-二羥基聯苯胺等,但並不限定於該些。

醌二疊氮化合物的分子量較佳為 350 以上、1200 以下。

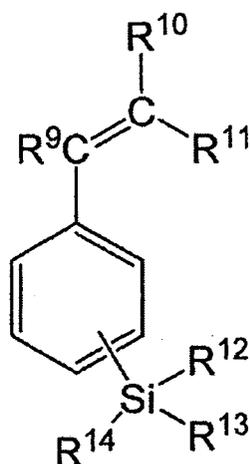
本發明中所使用的醌二疊氮化合物例如可藉由使 5-萘醌二疊氮磺醯氯與苯酚化合物於三乙胺存在下反應的方法等而獲得。

於本發明的正型感光性樹脂組成物中,(b)醌二疊氮化合物的含量相對於(a)成分的聚合物 100 重量份,較佳為 1 重量份以上,更佳為 3 重量份以上,另外,較佳為 50

重量份以下，更佳為 40 重量份以下。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有 (c) 具有由下述通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑。矽烷偶合劑因在 150°C 以上的溫度區域內烷氧基矽烷基與基板表面的羥基形成鍵，故藉由後述的顯影後加熱處理，可獲得與基板的密接性優異的硬化膜。尤其，具有由下述通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑的烷氧基矽烷基與芳香族環直接鍵結，由於其牢固的鍵能，因此即使進行 350°C 以上的高溫加熱處理或在空氣中的加熱處理，亦不易產生分解。因此，可將 350°C 以上的高溫加熱處理或在空氣中的加熱處理後的硬化膜與基板的密接性保持地較高。

[化 12]



(3)

上述通式 (3) 中，R<sup>9</sup>~R<sup>11</sup> 分別獨立地表示氫或碳數為 1~3 的烷基。R<sup>12</sup>~R<sup>14</sup> 分別獨立地表示碳數為 1~6 的烷基、碳數為 2~4 的烯基、苯基、取代苯基或碳數為 1~

6 的烷氧基，且至少一個是碳數為 1~6 的烷氧基。

作為具有由通式(3)所表示的結構的矽烷偶合劑的例子，可列舉：苯乙烯基二甲基甲氧基矽烷、苯乙烯基二乙基甲氧基矽烷、苯乙烯基甲基二甲氧基矽烷、苯乙烯基乙基二甲氧基矽烷、苯乙烯基三甲氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基二甲基甲氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基二乙基甲氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基甲基二甲氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基乙基二甲氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基三甲氧基矽烷、苯乙烯基二甲基乙氧基矽烷、苯乙烯基二乙基乙氧基矽烷、苯乙烯基甲基二乙氧基矽烷、苯乙烯基乙基二乙氧基矽烷、苯乙烯基三乙氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基二甲基乙氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基二乙基乙氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基甲基二乙氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基乙基二乙氧基矽烷、 $\alpha$ -甲基苯乙烯基三乙氧基矽烷、苯乙烯基甲基甲氧基乙氧基矽烷、苯乙烯基乙基甲氧基乙氧基矽烷、苯乙烯基甲氧基二乙氧基矽烷、苯乙烯基二甲氧基乙氧基矽烷等，但並不限定於該些。亦可含有兩種以上的該些矽烷偶合劑。

於本發明的正型感光性樹脂組成物中，就與 350°C 以上的高溫加熱處理後或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性的觀點而言，(c) 具有由通式(3)所表示的結構的矽烷偶合劑的含量相對於(a)成分的聚合物 100 重量份，較佳為 0.001 重量份以上，更佳為 0.01 重量份以上。另外，就感光度的保存穩定性的觀點而言，較佳為 2 重量份以下，更佳為 0.5 重量份以下，進而更佳為 0.3 重量份以下。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有 (d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑。上述矽烷偶合劑具有易於與有機質相互作用的官能基 (環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基)，因此可大幅提昇 350°C 以上的高溫加熱處理或在空氣中的加熱處理後的硬化膜與基板的密接性。其中，就容易與 (a) 成分的聚合物形成鍵的觀點而言，較佳為含有環氧基或氧雜環丁基的矽烷偶合劑，可進一步提昇硬化膜與基板的密接性。

作為具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑的例子，可列舉：N-苯基胺基乙基三甲氧基矽烷、N-苯基胺基乙基三乙氧基矽烷、N-苯基胺基丙基三甲氧基矽烷、N-苯基胺基丙基三乙氧基矽烷、N-苯基胺基丁基三甲氧基矽烷、N-苯基胺基丁基三乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-巰基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-巰基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、2-(3,4-環氧基環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷、3-乙基-[(三乙氧基矽烷基丙氧基)甲基]氧雜環丁烷等，但並不限定於該些。亦可含有兩種以上的

該些矽烷偶合劑。

於本發明的正型感光性樹脂組成物中，就與 350°C 以上的高溫加熱處理後或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性的觀點而言，(d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯酸酯基、丙烯酸酯基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑的含量相對於 (a) 成分的聚合物 100 重量份，較佳為 0.01 重量份以上，更佳為 0.1 重量份以上，進而更佳為 1 重量份以上，進而更佳為 2 重量份以上。另外，就熱硬化後的膜的機械特性的觀點而言，較佳為 30 重量份以下，更佳為 15 重量份以下。

另外，於本發明的正型感光性樹脂組成物中，就與 350°C 以上的高溫加熱處理後或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性的觀點而言，(d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯酸酯基、丙烯酸酯基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑的含量相對於 (c) 具有由通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑 100 重量份，較佳為 100 重量份以上，更佳為 200 重量份以上。另外，就熱硬化後的膜的機械特性的觀點而言，較佳為 4000 重量份以下，更佳為 2000 重量份以下。

本發明的正型感光性樹脂組成物含有 (e) 溶劑。作為溶劑，可列舉：N-甲基-2-吡咯啉酮、 $\gamma$ -丁內酯、N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、二甲基亞砷等極性的非質子性溶劑，四氫呋喃、二噁烷、丙二醇單甲醚等醚類，丙酮、甲基乙基酮、二異丁基酮、二丙酮醇等酮類，乙酸乙

酯、丙二醇單甲醚乙酸酯、乳酸乙酯等酯類，甲苯、二甲苯等芳香族烴類等。亦可含有兩種以上的該些溶劑。溶劑的含量相對於 (a) 成分的聚合物 100 重量份，較佳為 50 重量份以上，更佳為 100 重量份以上，另外，較佳為 2000 重量份以下，更佳為 1500 重量份以下。

本發明的正型感光性樹脂組成物亦可含有含烷氧基甲基的化合物。烷氧基甲基於 150°C 以上的溫度區域中產生交聯反應，因此藉由後述的顯影後加熱處理而進行交聯，可獲得機械特性優異的硬化膜。較佳為具有 2 個以上烷氧基甲基的化合物，更佳為具有 4 個以上烷氧基甲基的化合物。

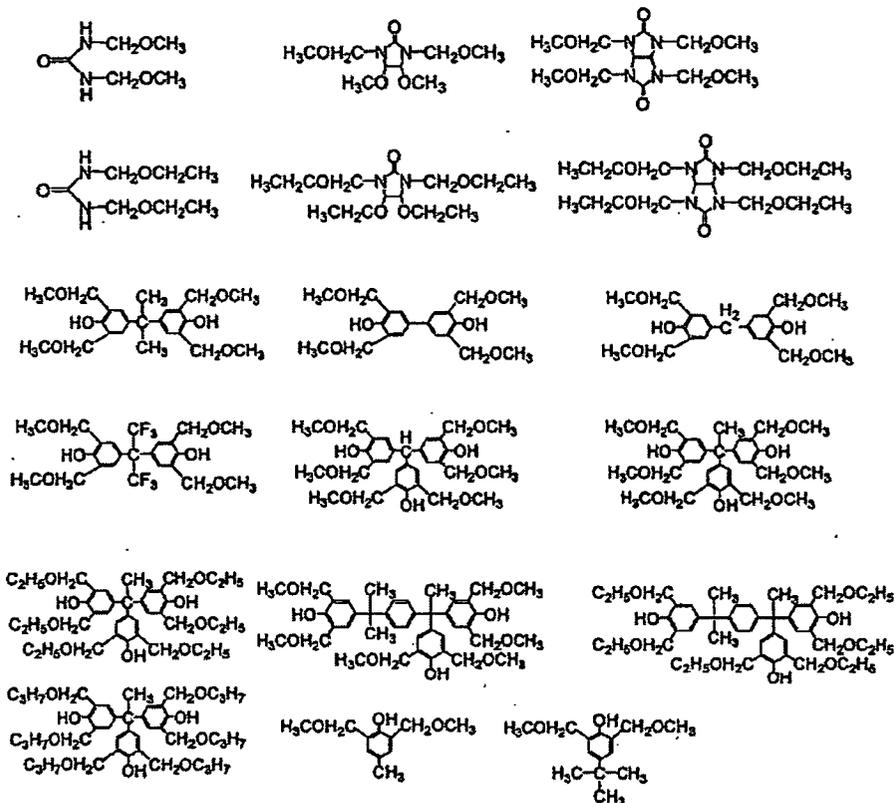
作為含烷氧基甲基的化合物的具體例，可列舉以下的化合物，但並不限定於該些。亦可含有兩種以上的該些化合物。

[化 13]

36968pif1

為第 99145551 號中文說明書無劃線修正本

修正日期:100年4月11日



就機械特性的觀點而言，含烷氧基甲基的化合物的含量相對於 (a) 成分的聚合物 100 重量份，較佳為 10 重量份以上，另外，較佳為 30 重量份以下。

本發明的正型感光性樹脂組成物亦可含有 (b) 醌二疊氮化合物以外的光酸產生劑。作為此種光酸產生劑，較佳為銻鹽、磷鹽或重氮鹽，亦可含有兩種以上的該些光酸產生劑。藉由含有光酸產生劑，可容易地調整對於鹼性顯影液的溶解性。其中，較佳為銻鹽，更佳為三芳基銻鹽。

於本發明的正型感光性樹脂組成物中，(b) 醌二疊氮化合物以外的光酸產生劑的含量相對於 (a) 成分的聚合物 100 重量份，較佳為 0.05 重量份以上，較佳為 10 重量份以下。

另外，視需要可含有具有酚性羥基的化合物，可提昇正型感光性樹脂組成物的感光度。作為具有酚性羥基的化合物，例如可列舉：Bis-Z、TekP-4HBPA、TrisP-HAP、TrisP-PA、BisRS-2P、BisRS-3P、BIR-PC、BIR-PTBP、BIR-BIPC-F。具有酚性羥基的化合物的含量相對於(a)成分的聚合物100重量份，較佳為3重量份以上，較佳為40重量份以下。

另外，視需要，亦可以提昇正型感光性樹脂組成物與基板的塗佈性為目的而含有界面活性劑，乳酸乙酯或丙二醇單甲醚乙酸酯等酯類，乙醇等醇類，環己酮、甲基異丁基酮等酮類，四氫呋喃、二噁烷等醚類。另外，亦可含有二氧化矽、二氧化鈦等無機粒子，或者聚醯亞胺的粉末等。

例示本發明的正型感光性樹脂組成物的製造方法。例如可列舉：將(a)成分～(e)成分、以及視需要的其他成分裝入玻璃製的燒瓶或不鏽鋼製的容器中，利用機械攪拌器等進行攪拌溶解的方法；利用超音波使其溶解的方法；利用行星式攪拌消泡裝置進行攪拌溶解的方法等。組成物的黏度較佳為1 mPa·s～10000 mPa·s。另外，為了去除異物，亦可利用0.1 μm～5 μm的孔徑的過濾器進行過濾。

其次，對使用本發明的正型感光性樹脂組成物形成硬化膜的方法進行說明。

將正型感光性樹脂組成物塗佈於基板上。基板可使用矽晶圓、以金屬進行濺鍍而成的矽晶圓、陶瓷類、砷化鎵、

金屬、玻璃、金屬氧化絕緣膜、氮化矽、銦錫氧化物(Indium Tin Oxide, ITO)等，但並不限定於該些。作為塗佈方法，可列舉：使用旋轉器的旋轉塗佈、噴霧塗佈、輥塗、擠壓式塗佈(slit die coating)等方法。另外，塗佈膜厚根據塗佈方法、組成物的固體成分濃度、黏度等而不同，但通常以使乾燥後的膜厚達到  $0.1\ \mu\text{m}\sim 150\ \mu\text{m}$  的方式進行塗佈。

繼而，對塗佈有正型感光性樹脂組成物的基板進行乾燥，獲得感光性樹脂膜。乾燥較佳為使用烘箱、加熱板、紅外線等，於  $50^{\circ}\text{C}\sim 150^{\circ}\text{C}$  的範圍內進行 1 分鐘～幾小時。

繼而，透過具有所期望的圖案的遮罩將化學射線照射於該感光性樹脂膜上而進行曝光。作為用於曝光的化學射線，有紫外線、可見光線、電子束、X 射線等，但於本發明中，較佳為使用水銀燈的 i 線(365 nm)、h 線(405 nm)、g 線(436 nm)。

曝光後，使用顯影液去除曝光部，藉此可形成圖案。顯影液較佳為四甲銨的水溶液，二乙醇胺、二乙基胺基乙醇、氫氧化鈉、氫氧化鉀、碳酸鈉、碳酸鉀、三乙胺、二乙胺、甲胺、二甲胺、乙酸二甲基胺基乙酯、二甲基胺基乙醇、甲基丙烯酸二甲基胺基乙酯、環己胺、乙二胺、六亞甲基二胺等顯示出鹼性的化合物的水溶液。另外，有時亦可於該些鹼性水溶液中添加一種以上的 N-甲基-2-吡咯啉酮、N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、二甲基亞砷、 $\gamma$ -丁內酯、二甲基丙烯醯胺等極性溶劑，甲醇、乙醇、異丙醇等醇類，乳酸乙酯、丙二醇單甲醚乙酸酯等酯類，

環戊酮、環己酮、異丁基酮、甲基異丁基酮等酮類等。較佳為顯影後利用水進行淋洗處理。此處，亦可將乙醇、異丙基醇等醇類，乳酸乙酯、丙二醇單甲醚乙酸酯等酯類等添加於水中來進行淋洗處理。

顯影後，施加 200°C ~ 500°C 的溫度來變換成硬化膜。該加熱處理通常是選擇溫度，並階段性地升溫，或者選擇某一溫度範圍而連續地升溫，並且實施 5 分鐘 ~ 5 小時。作為一例，可列舉：於 130°C、200°C、350°C 下各進行 30 分鐘熱處理的方法，或者自室溫至 400°C 為止歷時 2 小時直線式地升溫等方法。

由本發明的正型感光性樹脂組成物所形成的硬化膜可較佳地用於半導體的鈍化膜、半導體元件的保護膜、高密度安裝用多層配線的層間絕緣膜、有機電場發光元件的絕緣層等用途。

#### [實例]

以下，列舉實例等來說明本發明，但本發明並不受這些例限定。再者，實例中的正型感光性樹脂組成物的評價是由以下的方法來進行。

##### (1) 感光度的保存穩定性評價

##### 感光性樹脂膜的製作

於 6 英吋的矽晶圓上，以使預烘烤後的膜厚達到 8  $\mu\text{m}$  的方式塗佈正型感光性樹脂組成物（以下稱為清漆），繼而使用加熱板（Tokyo Electron（股份）製造的塗佈顯影裝置 Mark-7），於 120°C 下進行 3 分鐘預烘烤，藉此獲得感光性

樹脂膜。

#### 膜厚的測定方法

使用大日本網屏製造 (Dainippon Screen Mfg) (股份) 所製造的 Lambda Ace STM-602, 以 1.629 的折射率測定預烘烤後及顯影後的膜, 以 1.773 的折射率測定固化膜。

#### 曝光

於曝光機 (GCA 公司製造的 i 線步進機 DSW-8570i) 上設置圖案經切割的光罩, 利用 i 線, 以 365 nm 的強度並使曝光時間變化來對感光性樹脂膜進行曝光。

#### 顯影

使用 Tokyo Electron (股份) 製造的顯影裝置 Mark-7, 以 50 次旋轉歷時 10 秒將氫氧化四甲銨的 2.38 wt% 水溶液噴於曝光後的膜上。其後, 以 0 次旋轉靜置 70 秒, 然後以 400 次旋轉利用水進行淋洗處理, 然後以 3000 次旋轉歷時 10 秒進行甩乾。

#### 感光度的計算

曝光及顯影後, 求出使 50  $\mu\text{m}$  的線與間隙圖案 (1L/1S) 形成為 1 對 1 的寬度的曝光時間 (以下, 將其稱為最佳曝光時間)  $E_{op1}$ 。繼而, 將清漆於黃光室內 (23°C, 45%RH) 放置 1 週, 進行與上述相同的評價並求出最佳曝光時間  $E_{op2}$ 。繼而, 算出  $E_{op2}-E_{op1}$  的值, 若該值的絕對值為 20  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  以下, 則判定為良好, 若超過 20  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ , 則判定為不良。更佳為 10  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  以下。

(2) 350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接

## 性評價

使用旋轉器，以使預烘烤後的膜厚達到 10  $\mu\text{m}$  的方式塗佈清漆，繼而使用加熱板 (Tokyo Electron (股份) 製造的塗佈顯影裝置 D-SPIN)，於 120 $^{\circ}\text{C}$  下進行 3 分鐘預烘烤，藉此獲得感光性樹脂膜。使用 Koyo Thermo System (股份) 製造的無氧化烘箱 INH-21CD，於氮氣氣流下 (氧濃度為 20 ppm 以下)，以 170 $^{\circ}\text{C}$  對所製作的感光性樹脂膜進行 30 分鐘熱處理，其後以 1 小時升溫至 360 $^{\circ}\text{C}$  為止，並於 360 $^{\circ}\text{C}$  下對所製作的感光性樹脂膜進行 1 小時熱處理，從而製成硬化膜 (固化膜)。

於固化膜上，以 2 mm 間隔形成 10 行 10 列的柵格狀的切口，並進行利用「Sellotape (註冊商標)」的剝離測試。其後，進行 100 小時的壓力鍋測試 (Pressure Cooker Test, PCT) 處理，並與上述同樣地進行利用「Sellotape (註冊商標)」的剝離測試，藉此評價 PCT 前後的黏接性。將於剝離測試中剝離個數未滿 10 判定為良好，將剝離個數為 10 以上判定為不良。PCT 處理是以 121 $^{\circ}\text{C}$ 、2 個大氣壓的飽和條件來進行。

(3) 在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價  
與上述 (2) 同樣地製作感光性樹脂膜。使用 Koyo Thermo System (股份) 製造的無氧化烘箱 INH-21CD，於氮氣氣流下 (氧濃度為 20 ppm 以下)，以 170 $^{\circ}\text{C}$  對所製作的感光性樹脂膜進行 30 分鐘熱處理，其後以 1 小時升溫至 320 $^{\circ}\text{C}$  為止，並於 320 $^{\circ}\text{C}$  下對所製作的感光性樹脂膜進行 1

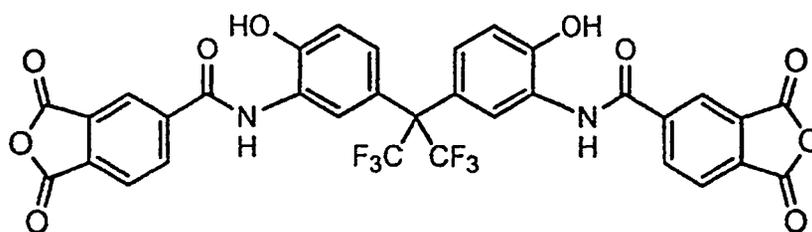
小時熱處理，從而製成硬化膜（固化膜）。

使用加熱板，於空氣中以 250°C 對固化膜進行 30 分鐘熱處理後，與上述（2）同樣地進行剝離測試。其後，與上述（2）同樣地進行 PCT 處理，並進行剝離測試，藉此評價 PCT 前後的黏接性。將於剝離測試中剝離個數未滿 10 判定為良好，將剝離個數為 10 以上判定為不良。PCT 處理是以 121°C、2 個大氣壓的飽和條件來進行。

#### 合成例 1 含羥基的酸酐（a）的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 2,2-雙(3-胺基-4-羥苯基)六氟丙烷(BAHF) 18.3 g (0.05 莫耳) 與烯丙基縮水甘油醚 34.2 g (0.3 莫耳) 溶解於  $\gamma$ -丁內酯 (GBL) 100 g 中，並冷卻至 -15°C。以不使反應液的溫度超過 0°C 的方式向其中滴加溶解於 GBL 50 g 的偏苯三甲酸酐醯氯 22.1 g (0.11 莫耳)。滴加結束後，於 0°C 下反應 4 小時。利用旋轉蒸發器對該溶液進行濃縮，然後將其投入至甲苯 1 L 中而獲得由下述式所表示的含羥基的酸酐（a）。

[化 14]



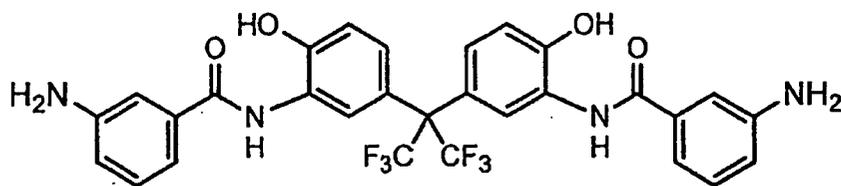
含羥基的酸酐（a）

#### 合成例 2 含羥基的二胺化合物（b）的合成

使 BAHF 18.3 g (0.05 莫耳) 溶解於丙酮 100 mL、氧化丙烯 17.4 g (0.3 莫耳) 中，並冷卻至  $-15^{\circ}\text{C}$ 。向其中滴加使 3-硝基苯甲醯氯 20.4 g (0.11 莫耳) 溶解於丙酮 100 mL 而成的溶液。滴加結束後，於  $-15^{\circ}\text{C}$  下反應 4 小時，其後恢復至室溫。過濾分離所析出的白色固體，並於  $50^{\circ}\text{C}$  下進行真空乾燥。

將固體 30 g 裝入 300 mL 的不鏽鋼高壓釜中，使其分散於甲基溶纖劑 250 mL 中，並添加 5% 鈀-碳 2 g。利用氣球向其中導入氫，並於室溫下進行還原反應。約 2 小時後，確認氣球不再進一步乾癟後使反應結束。反應結束後，進行過濾來去除作為觸媒的鈀化合物，並利用旋轉蒸發器進行濃縮，從而獲得由下述式所表示的含羥基的二胺化合物 (b)。

[化 15]



含羥基的二胺化合物 (b)

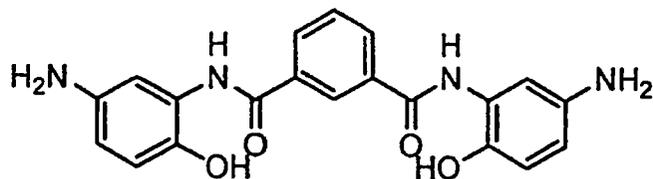
### 合成例 3 含羥基的二胺 (c) 的合成

使 2-氨基-4-硝基苯酚 15.4 g (0.1 莫耳) 溶解於丙酮 50 mL、氧化丙烯 30 g (0.34 莫耳) 中，並冷卻至  $-15^{\circ}\text{C}$ 。向其中緩慢滴加使間苯二甲醯氯 11.2 g (0.055 莫耳) 溶解於丙酮 60 mL 而成的溶液。滴加結束後，於  $-15^{\circ}\text{C}$  下反應 4

小時。其後，恢復至室溫並藉由過濾收集所生成的沈澱物。

使該沈澱物溶解於 GBL 200 mL 中，添加 5% 鈹-碳 3 g，並進行激烈的攪拌。於其中安裝導入有氫氣的氣球，在室溫下持續攪拌，直至氫氣球成為不再進一步縮小的狀態為止，進而於安裝有氫氣球的狀態下攪拌 2 小時。攪拌結束後，藉由過濾來去除鈹化合物，並利用旋轉蒸發器對溶液進行濃縮直至其變成一半的量為止。向其中添加乙醇，進行再結晶，獲得由下述式所表示的含羥基的二胺 (c) 的結晶。

[化 16]

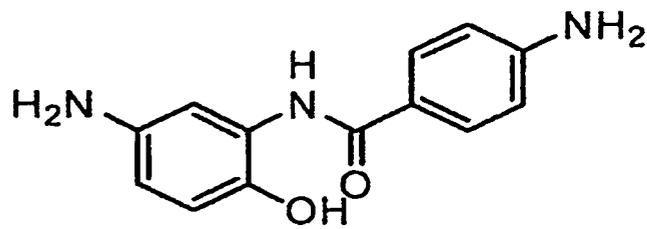


含羥基的二胺 (c)

合成例 4 含羥基的二胺 (d) 的合成

使 2-氨基-4-硝基苯酚 15.4 g (0.1 莫耳) 溶解於丙酮 100 mL、氧化丙烯 17.4 g (0.3 莫耳) 中，並冷卻至  $-15^{\circ}\text{C}$ 。向其中緩慢滴加使 4-硝基苯甲醯氯 20.4 g (0.11 莫耳) 溶解於丙酮 100 mL 而成的溶液。滴加結束後，於  $-15^{\circ}\text{C}$  下反應 4 小時。其後，恢復至室溫並藉由過濾收集所生成的沈澱物。其後，與合成例 2 同樣地獲得由下述式所表示的含羥基的二胺 (d) 的結晶。

[化 17]

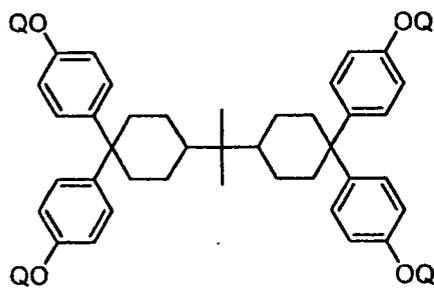


含羥基的二胺 (d)

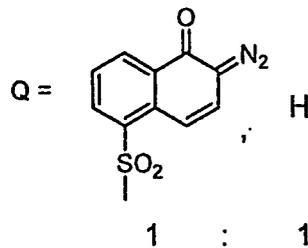
## 合成例 5 醌二疊氮化合物 (e) 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 TekP-4HBPA (商品名，本州化學工業 (股份) 製造) 16.10 g (0.05 莫耳) 與 5-萘醌二疊氮磺醯氯 26.86 g (0.1 莫耳) 溶解於 1,4-二噁烷 450 g 中，並設定為室溫。以不使系統內變成 35°C 以上的方式向其中滴加與 1,4-二噁烷 50 g 混合的三乙胺 10.12 g。滴加後於 30°C 下攪拌 2 小時。過濾三乙胺鹽，將濾液投入至水中。其後，藉由過濾收集所析出的沈澱物。利用真空乾燥機乾燥該沈澱物，獲得由下述式所表示的醌二疊氮化合物 (e)。

[化 18]



醌二疊氮化合物 (e)

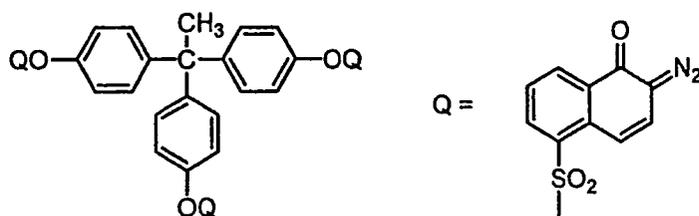


## 合成例 6 醌二疊氮化合物 (f) 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 TrisP-HAP (商品名，本州化

學工業（股份）製造）15.31 g（0.05 莫耳）與 5-萘醌二疊氮磺醯氯 40.28 g（0.15 莫耳）溶解於 1,4-二噁烷 450 g 中，並設定為室溫。此處，使用與 1,4-二噁烷 50 g 混合的三乙胺 15.18 g，與合成例 5 同樣地獲得由下述式所表示的醌二疊氮化合物（f）。

[化 19]

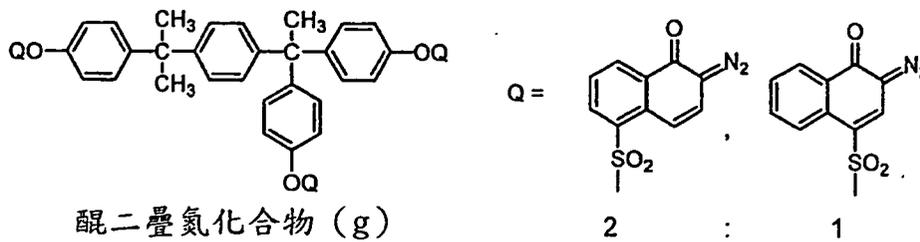


醌二疊氮化合物（f）

合成例 7 醌二疊氮化合物（g）的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 TrisP-PA（商品名，本州化學工業（股份）製造）21.22 g（0.05 莫耳）與 5-萘醌二疊氮磺醯氯 26.86 g（0.10 莫耳）、4-萘醌二疊氮磺醯氯 13.43 g（0.05 莫耳）溶解於 1,4-二噁烷 450 g 中，並設定為室溫。此處，使用與 1,4-二噁烷 50 g 混合的三乙胺 12.65 g，與合成例 5 同樣地獲得由下述式所表示的醌二疊氮化合物（g）。

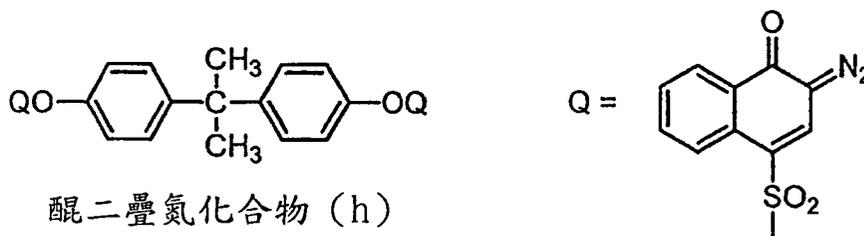
[化 20]



### 合成例 8 醌二疊氮化合物 (h) 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 11.41 g (0.05 莫耳) 的雙酚 A 與 4-萘醌二疊氮磺醯氯 26.86 g (0.1 莫耳) 溶解於 1,4-二噁烷 450 g 中，並設定為室溫。此處，使用與 1,4-二噁烷 50 g 混合的三乙胺 10.12 g，與合成例 5 同樣地獲得由下述式所表示的醌二疊氮化合物 (h)。

[化 21]



### 合成例 9 聚合物 A 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使 4,4'-二胺基苯醚 (DAE) 4.40 g (0.022 莫耳)、1,3-雙(3-胺基丙基)四甲基二矽氧烷 (SiDA) 1.24 g (0.005 莫耳) 溶解於 N-甲基-2-吡咯啉酮 (NMP) 50 g 中。向其中一併添加合成例 1 中所獲得的含羥基的酸酐 (a) 21.4 g (0.030 莫耳) 與 NMP 14 g，於 20°C 下反應 1 小時，繼而於 40°C 下反應 2 小時。其後，添加作為封端

劑的 4-胺基苯酚 0.65 g (0.006 莫耳)，進而於 40°C 下反應 1 小時。其後，歷時 10 分鐘滴加利用 NMP 5 g 稀釋 N,N-二甲基甲醯胺二甲縮醛 7.14 g (0.06 莫耳) 而成的溶液。滴加後，於 40°C 下攪拌 3 小時。反應結束後，將溶液投入至水 2 L 中，藉由過濾收集聚合物固體的沈澱物。利用 50°C 的真空乾燥機將聚合物固體乾燥 72 小時，獲得聚醯亞胺前驅物的聚合物 A。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n=10\sim 100,000$  的範圍內。

#### 合成例 10 聚合物 B 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使合成例 2 中所獲得的含羥基的二胺 (b) 13.6 g (0.0225 莫耳) 溶解於 NMP 50 g 中。向其中一併添加合成例 1 中所獲得的含羥基的酸酐 (a) 17.5 g (0.025 莫耳) 與吡啶 30 g，於 40°C 下反應 2 小時。其後，添加作為封端劑的 4-胺基苯基乙炔 0.58 g (0.005 莫耳)，進而於 40°C 下反應 1 小時。反應結束後，將溶液投入至水 2 L 中，藉由過濾收集聚合物固體的沈澱物。利用 80°C 的真空乾燥機將聚合物固體乾燥 72 小時，獲得聚醯亞胺前驅物的聚合物 B。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n=10\sim 100,000$  的範圍內。

#### 合成例 11 聚合物 C 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使合成例 3 中所獲得的含羥基的二胺化合物 (c) 15.13 g (0.040 莫耳)、SiDA 1.24 g (0.005 莫耳) 溶解於 NMP 50 g 中。向其中一併添加 3,3',4,4'-二苯醯四羧酸酐 (ODPA) 15.51 g (0.05 莫耳) 與 NMP 21 g，

於 20°C 下反應 1 小時，繼而於 50°C 下反應 2 小時。其後，歷時 10 分鐘滴加利用 NMP 15 g 稀釋 N,N-二甲基甲醯胺二乙縮醛 14.7 g (0.1 莫耳) 而成的溶液。滴加後，於 40°C 下攪拌 3 小時。反應結束後，將溶液投入至水 2 L 中，藉由過濾收集聚合物固體的沈澱物。利用 80°C 的真空乾燥機將聚合物固體乾燥 72 小時，獲得聚醯亞胺前驅物的聚合物 C。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n=10\sim 100,000$  的範圍內。

#### 合成例 12 聚合物 D 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使合成例 4 中所獲得的含羥基的二胺化合物 (d) 6.08 g (0.025 莫耳)、DAE 4.51 g (0.0225 莫耳)、以及 SiDA 0.62 g (0.0025 莫耳) 溶解於 NMP 70 g 中。於室溫下，向其中一併添加合成例 1 中所獲得的含羥基的酸酐 (a) 28.57 g (0.040 莫耳)、3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐 (BPDA) 4.41 g (0.010 莫耳) 及 NMP 25 g，並直接於室溫下攪拌 1 小時，其後於 50°C 下攪拌 2 小時。反應結束後，將溶液投入至水 2 L 中，藉由過濾收集聚合物固體的沈澱物。利用 80°C 的真空乾燥機將聚合物固體乾燥 72 小時，獲得聚醯亞胺前驅物的聚合物 D。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n=10\sim 100,000$  的範圍內。

#### 合成例 13 聚合物 E 的合成

於乾燥氮氣氣流下，將使二苯醚-4,4'-二甲醯氯 (DEDC) 1 莫耳與 1-羥基苯并三唑 2 莫耳反應而獲得的

二羧酸衍生物 19.70 g(0.040 莫耳)、及 BAHF 18.31 g(0.050 莫耳) 溶解於 NMP 200 g 中，於 75°C 下攪拌 12 小時。繼而，添加作為封端劑的溶解於 NMP 30 g 中的順丁烯二酸酐 2.96 g (0.020 莫耳)，進而於 75°C 下攪拌 12 小時，結束反應。反應結束後，將溶液投入至水/甲醇=3/1 的溶液 3 L 中，藉由過濾收集聚合物固體的沈澱物。利用 80°C 的真空乾燥機將聚合物固體乾燥 20 小時，獲得聚苯并噁唑前驅物的聚合物 E。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n=10\sim 100,000$  的範圍內。

#### 合成例 14 聚合物 F 的合成

於具備攪拌機、溫度計的 0.5 升的燒瓶中，裝入 3,3',4,4'-二苯醚四羧酸二酐 24.82 g、第二丁基醇 11.86 g、三乙胺 0.40 g、NMP 110.03 g，於 60°C 下攪拌 24 小時來進行反應，獲得 3,3',4,4'-二苯醚四羧酸二第二丁基酯。繼而，將燒瓶冷卻至 5°C 後，滴加亞硫醯氯 18.08 g，反應 1 小時，獲得二氯化 3,3',4,4'-二苯醚四羧酸二第二丁基酯的溶液。

繼而，於具備攪拌機、溫度計、戴氏冷凝管的 0.5 升的燒瓶中裝入 NMP 47.97 g，添加 4,4'-二胺基二苯醚 4.33 g、3,5-二胺基苯甲酸 7.67 g，攪拌溶解後，添加吡啶 24.05 g，一面將溫度保持在 0°C ~ 5°C，一面以 1 小時滴加二氯化 3,3',4,4'-二苯醚四羧酸二第二丁基酯的溶液後，持續攪拌 1 小時。將溶液投入至 4 升的水中，回收析出物並進行清洗後，進行減壓乾燥，獲得聚醯亞胺前驅物的聚合物 F。藉由 GPC 測定所獲得的聚合物的重量平均分子量，確認  $n$

=10~100,000 的範圍內。

#### 合成例 15 聚合物 G 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使雙(3-胺基-4-羥苯基)六氟丙烷 (Central Glass (股份) 製造, BAHF) 29.3 g (0.08 莫耳)、1,3-雙(3-胺基丙基)四甲基二矽氧烷 1.24 g (0.005 莫耳)、作為封端劑的 3-胺基苯酚 (東京化成工業 (股份) 製造) 3.27 g (0.03 莫耳) 溶解於 N-甲基-2-吡咯啉酮 (NMP) 150 g 中。向其中一併添加雙(3,4-二羧基苯基)醚二酐 (Manac (股份) 製造, ODPA) 31.0 g (0.1 莫耳) 與 NMP 50 g, 於 20°C 下攪拌 1 小時, 繼而於 50°C 下攪拌 4 小時。其後, 添加二甲苯 15 g, 一面使水與二甲苯共沸, 一面於 150°C 下攪拌 5 小時。攪拌結束後, 將溶液投入至水 3 L 中, 收集白色沈澱物。藉由過濾收集該沈澱物, 利用水清洗 3 次後, 利用 80°C 的真空乾燥機乾燥 20 小時, 獲得聚合物 G。藉由紅外吸收光譜測定所獲得的聚合物粉體, 結果於 1780  $\text{cm}^{-1}$  附近、1377  $\text{cm}^{-1}$  附近檢測出由聚醯亞胺所引起的醯亞胺結構的吸收波峰。以上述方式所獲得的聚合物粉體的醯亞胺化率為 100%。

#### 合成例 16 聚合物 H 的合成

於乾燥氮氣氣流下, 使合成例 1 中所獲得的含羥基的酸酐 (a) 49.57 g (0.082 莫耳)、作為封端劑的 3-羥基鄰苯二甲酸酐 (東京化成工業 (股份) 製造) 5.7 g (0.035 莫耳) 溶解於 N-甲基-2-吡咯啉酮 (NMP) 150 g 中。向其中一併添加雙(3,4-二羧基苯基)醚二酐 31.02 g (0.1 莫耳)

與 NMP 30 g，於 20°C 下攪拌 1 小時，繼而於 50°C 下攪拌 4 小時。其後，於 180°C 下攪拌 5 小時。攪拌結束後，將溶液投入至水 3 L 中，收集白色沈澱物。藉由過濾收集該沈澱物，利用水清洗 3 次後，利用 80°C 的真空乾燥機乾燥 20 小時，獲得聚合物 H。藉由紅外吸收光譜測定所獲得的聚合物粉體，結果於 1780  $\text{cm}^{-1}$  附近、1377  $\text{cm}^{-1}$  附近檢測出由聚醯亞胺所引起的醯亞胺結構的吸收波峰。以上述方式所獲得的聚合物粉體的醯亞胺化率為 100%。

#### 合成例 17 聚合物 I 的合成

於乾燥氮氣氣流下，使合成例 2 中所獲得的含羥基的二胺化合物 (b) 40.5 g (0.067 莫耳)、1,3-雙(3-胺基丙基)四甲基二矽氧烷 1.24 g (0.005 莫耳) 溶解於 NMP 130 g 中。向其中一併添加 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐 29.42 g (0.1 莫耳) 與 NMP 20 g，於 20°C 下攪拌 1 小時，繼而於 50°C 下攪拌 2 小時。向其中添加 4-胺基硫酚(東京化成工業(股份)製造) 6.89 g (0.055 莫耳)，於 50°C 下攪拌 2 小時後，於 180°C 下攪拌 5 小時。攪拌結束後，將溶液投入至水 3 L 中，收集白色沈澱物。藉由過濾收集該沈澱物，利用水清洗 3 次後，利用 80°C 的真空乾燥機乾燥 20 小時，獲得聚合物 I。藉由紅外吸收光譜測定所獲得的聚合物粉體，結果於 1780  $\text{cm}^{-1}$  附近、1377  $\text{cm}^{-1}$  附近檢測出由聚醯亞胺所引起的醯亞胺結構的吸收波峰。以上述方式所獲得的聚合物粉體的醯亞胺化率為 100%。

#### 合成例 18 酚醛清漆樹脂 A 的合成

於乾燥氮氣氣流下，裝入間甲酚 70.2 g (0.65 莫耳)、對甲酚 37.8 g (0.35 莫耳)、37 wt% 甲醛水溶液 75.5 g (甲醛為 0.93 莫耳)、草酸二水合物 0.63 g (0.005 莫耳)、甲基異丁基酮 264 g 後，浸漬於油浴中，一面使反應液回流，一面進行 4 小時縮聚合反應。其後，歷時 3 小時使油浴的溫度升溫，然後將燒瓶內的壓力減壓至 4 kPa~7 kPa 為止，去除揮發成分，將經溶解的樹脂冷卻至室溫為止，獲得酚醛清漆樹脂 A 的聚合物固體。根據 GPC 的測定結果，重量平均分子量為 3,500。

#### 合成例 19 酚醛清漆樹脂 B 的合成

使用間甲酚 108 g (1.00 莫耳) 來代替間甲酚 70.2 g (0.65 莫耳)、對甲酚 37.8 g (0.35 莫耳)，除此以外，與合成例 15 同樣地獲得酚醛清漆樹脂 B 的聚合物固體。根據 GPC 的測定結果，重量平均分子量為 4,000。

#### 實例 1

稱量合成例 9 中所獲得的聚合物 A 的固體 10 g，使合成例 5 中所獲得的醃二疊氮化合物 (e) 2.0 g 與對苯乙烯、基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 GBL 30 g 中，獲得感光性聚醃亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 2

稱量合成例 10 中所獲得的聚合物 B 的固體 10 g，使合成例 6 中所獲得的醌二疊氮化合物 (f) 2.0 g 與對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 GBL 20 g、EL 10 g 中，獲得感光性聚醯亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 3

稱量合成例 11 中所獲得的聚合物 C 的固體 10 g，使合成例 7 中所獲得的醌二疊氮化合物 (g) 2.0 g 與對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 NMP 30 g 中，獲得感光性聚醯亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 4

稱量合成例 12 中所獲得的聚合物 D 的固體 10 g，使合成例 8 中所獲得的醌二疊氮化合物 (h) 2.0 g 與對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 GBL 30 g 中，獲得感光性聚醯亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與

基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 5

稱量合成例 13 中所獲得的聚合物 E 的固體 10 g，使合成例 5 中所獲得的醌二疊氮化合物 (e) 2.0 g 與對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 GBL 30 g 中，獲得感光性聚醯亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 6

稱量合成例 14 中所獲得的聚合物 F 的固體 10 g，使合成例 5 中所獲得的醌二疊氮化合物 (e) 2.0 g 與對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g 溶解於 GBL 30 g 中，獲得感光性聚醯亞胺前驅物組成物的清漆。使用所獲得的清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 7

除將對苯乙烯基三甲氧基矽烷變更為對苯乙烯基三乙氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的

膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 8

除將對苯乙烯基三甲氧基矽烷變更為 $\alpha$ -甲基苯乙烯基二甲基甲氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 9

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 2-(3,4-環氧基環己基)乙基三甲氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 10

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 3-乙基-[(三乙氧基矽烷基丙氧基)甲基]氧雜環丁烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 11

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 N-苯基胺基丙基三甲氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的

高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 12

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為乙烯基三甲氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 13

除將對苯乙烯基三甲氧基矽烷變更為 0.3 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 14

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 0.05 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 15

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 0.01 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性

評價。

#### 實例 16

除添加「Nikalac」MX-270（商品名，Sanwa Chemical（股份）製造）1.0 g、HMOM-TPHAP（商品名，本州化學工業（股份）製造）1.0 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 17

除將合成例 9 中所獲得的聚合物 A 設定為 4 g，並添加酚醛清漆樹脂 A 6 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 18

除將合成例 9 中所獲得的聚合物 A 設定為 4 g，並添加酚醛清漆樹脂 B 6 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 19

除將合成例 9 中所獲得的聚合物 A 設定為 4 g，並添加酚醛清漆樹脂 A 6 g、「Nikalac」MX-270（商品名，Sanwa Chemical（股份）製造）1.0 g、HMOM-TPHAP（商品名，

本州化學工業（股份）製造）1.0 g 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 20

除添加合成例 15 中所獲得的聚合物 G 來代替合成例 9 中所獲得的聚合物 A 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 21

除添加合成例 16 中所獲得的聚合物 H 來代替合成例 9 中所獲得的聚合物 A 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 22

除添加合成例 17 中所獲得的聚合物 I 來代替合成例 9 中所獲得的聚合物 A 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 實例 23

除添加合成例 15 中所獲得的聚合物 G 4 g、酚醛清漆

樹脂 A 6 g 來代替合成例 9 中所獲得的聚合物 A 以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 1

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷去除以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 2

除將對苯乙烯基三甲氧基矽烷去除以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 3

除將對苯乙烯基三甲氧基矽烷變更為間乙醯基胺基苯基三甲氧基矽烷以外，與實例 1 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 4

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為 N-苯基胺基丙基三甲氧基矽烷以外，與比較例 3 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的

高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 5

除將 3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷變更為乙烯基三甲氧基矽烷以外，與比較例 3 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的黏接性評價。

#### 比較例 6

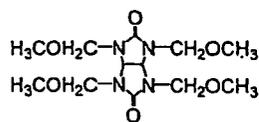
除將合成例 9 中所獲得的聚合物 A 設定為 4 g，並添加酚醛清漆樹脂 A 6 g 以外，與比較例 4 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

#### 比較例 7

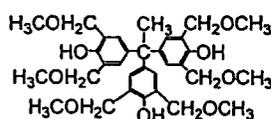
除將合成例 9 中所獲得的聚合物 A 設定為 4 g，並添加酚醛清漆樹脂 A 6 g、「Nikalac」MX-270 (商品名，Sanwa-Chemical (股份) 製造) 1.0 g、HMOM-TPHAP (商品名，本州化學工業 (股份) 製造) 1.0 g 以外，與比較例 4 同樣地獲得清漆，如上述般進行感光度的保存穩定性評價、350°C 以上的高溫加熱處理後的膜與基板的密接性評價、在空氣中的熱處理後的膜與基板的密接性評價。

以下表示各實例、比較例中所使用的含烷氧基甲基的化合物及其他化合物。

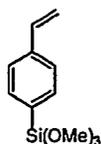
[化 22]



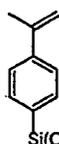
Nikalac MX-270



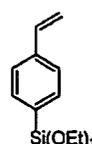
HMOM-TPHAP



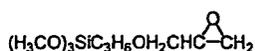
對苯乙烯基  
三甲氧基矽烷



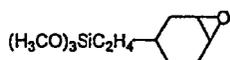
α-甲基苯乙烯基  
二甲基甲氧基矽烷



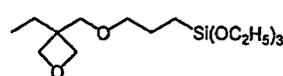
對苯乙烯基  
三乙氧基矽烷



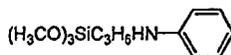
3-縮水甘油氧基  
丙基三甲氧基矽烷



2-(3,4-環氧基環己  
基)乙基三甲氧基矽烷



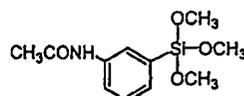
3-乙基-[(三乙氧  
基矽烷基丙氧基)  
甲基]氧雜環丁烷



N-苯基胺基丙  
基三甲氧基矽烷



乙烯基三  
甲氧基矽烷



間乙醯基胺基苯  
基三甲氧基矽烷

將實例 1~實例 23 及比較例 1~比較例 7 的組成示於表 1~表 4 中，將評價結果示於表 5 中。

[表 1]

	(a) 聚合物	(b)醃二疊氮 化合物	矽烷偶合劑			其他	溶劑	其他
			(c)	(d)				
實例 1	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 2	B 10 g	醃二疊氮 (f) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 20 g EL 10 g	-	
實例 3	C 10 g	醃二疊氮 (g) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	NMP 30 g	-	
實例 4	D 10 g	醃二疊氮 (h) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 5	E 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 6	F 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 7	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三乙氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 8	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	α-甲基苯乙烯二甲基 氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 9	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	2-(3,4-環氧基環己基)乙基三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 10	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯三甲氧基矽烷 0.015 g	3-乙基-[(三乙氧基矽烷基丙氧基)甲基]氧 雜環丁烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	

[表 2]

	(a) 聚 合 物	(b) 醃二疊氮 化 合 物	矽烷偶合劑			溶劑	其他
			(c)	(d)	其 他		
實例 11	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	N-苯基胺基丙基三 甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-
實例 12	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	乙烯基三甲氧基矽 烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-
實例 13	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.3 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-
實例 14	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.05 g	-	GBL 30 g	-
實例 15	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.01 g	-	GBL 30 g	-
實例 16	A 10 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	Nikalac MX-270 1.0 g HMOM-TPHAP 1.0 g
實例 17	A 4 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 A 6 g

36968pifl

為第 9 9 1 4 5 5 5 1 號中文說明書無劃線修正本

修正日期：100年4月11日

實例 18	A 4 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 B 6 g
實例 19	A 4 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 A 6 g Nikalac MX-270 1.0 g HMOM-TPHAP 1.0 g
實例 20	G 4 g	醃二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-

[表 3]

	(a) 聚 合物	(b) 醜二疊氮 化合物	矽烷偶合劑			其他	溶劑	其他
			(c)	(d)				
實例 21	H 4 g	醜二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 22	I 10 g	醜二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-	
實例 23	G 4 g	醜二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙烯基三甲氧基矽烷 0.015 g	3-縮水甘油氧基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 A 6 g	

[表 4]

	(a) 聚合物	(b) 醌二疊氮化合物	矽烷偶合劑			其他	溶劑	其他
			(c)	(d)				
比較 例 1	A 10 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	對苯乙炔基三 甲氧基 矽烷 0.015 g	-	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-
比較 例 2	A 10 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	-	GBL 30 g	-
比較 例 3	A 10 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	3-縮水甘油氧基丙基 三甲氧基矽烷 0.3 g	間乙醯基胺基苯基 三甲氧基矽烷 0.015 g	GBL 30 g	-
比較 例 4	A 10 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	N-苯基胺基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	間乙醯基胺基苯基 三甲氧基矽烷 0.015 g	GBL 30 g	-
比較 例 5	A 10 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	乙烯基三甲氧基矽烷 0.3 g	間乙醯基胺基苯基 三甲氧基矽烷 0.015 g	GBL 30 g	-
比較 例 6	A 4 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	N-苯基胺基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	間乙醯基胺基苯基 三甲氧基矽烷 0.015 g	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 A 6 g
比較 例 7	A 4 g	醌二疊氮 (e) 2.0 g	-	-	N-苯基胺基丙基三甲 氧基矽烷 0.3 g	間乙醯基胺基苯基 三甲氧基矽烷 0.015 g	GBL 30 g	酚醛清漆樹脂 A 6 g Nikalac MX-270 1.0 g



[表 5]

	感光度的保存穩定性			350°C以上的高溫加熱處理後的密接性		在空氣中的熱處理後的密接性	
	感光度 Eop1 (mJ/cm <sup>2</sup> )	感光度 Eop2 (mJ/cm <sup>2</sup> )	Eop1-Eop2 (mJ/cm <sup>2</sup> )	膠帶剝離測試		膠帶剝離測試	
				PCT 處理前	PCT 處理後	PCT 處理前	PCT 處理後
實例 1	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 2	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 3	220	230	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 4	220	230	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 5	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 6	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 7	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 8	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 9	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 10	250	260	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 11	250	260	10	0/100	7/100	0/100	7/100
實例 12	250	260	10	0/100	7/100	0/100	7/100
實例 13	250	265	15	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 14	250	260	10	0/100	8/100	0/100	8/100
實例 15	250	260	10	0/100	10/100	0/100	10/100
實例 16	220	230	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 17	150	150	0	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 18	150	150	0	0/100	0/100	0/100	0/100

36968pif1

為第 9 9 1 4 5 5 1 號中文說明書無劃線修正本

修正日期：100年4月11日

實例 19	120	120	0	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 20	380	390	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 21	380	390	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 22	380	390	10	0/100	0/100	0/100	0/100
實例 23	300	300	0	0/100	0/100	0/100	0/100
比較例 1	250	260	10	0/100	80/100	0/100	80/100
比較例 2	250	260	10	0/100	7/100	0/100	90/100
比較例 3	250	280	30	0/100	0/100	0/100	0/100
比較例 4	250	280	30	0/100	40/100	0/100	40/100
比較例 5	250	280	30	0/100	40/100	0/100	40/100
比較例 6	150	170	20	0/100	50/100	0/100	50/100
比較例 7	120	140	20	0/100	50/100	0/100	50/100

**[產業上之可利用性]**

根據本發明，可獲得保存穩定性，特別是感光度穩定性優異的正型感光性樹脂組成物。另外，藉由本發明的正型感光性樹脂組成物，可獲得與 350°C 以上的高溫加熱處理後、或在空氣中的加熱處理後的基板的密接性優異的硬化膜。

**【圖式簡單說明】**

無。

**【主要元件符號說明】**

無。

36968pif1

為第 99145551 號中文說明書無劃線修正本

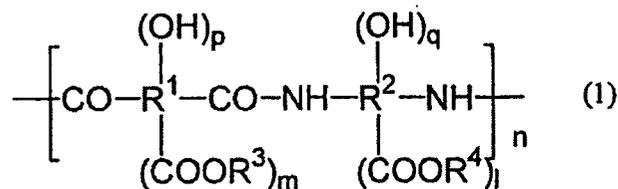
公告本

修正日期: 100年4月 修正頁(本)  
對線

## 七、申請專利範圍：

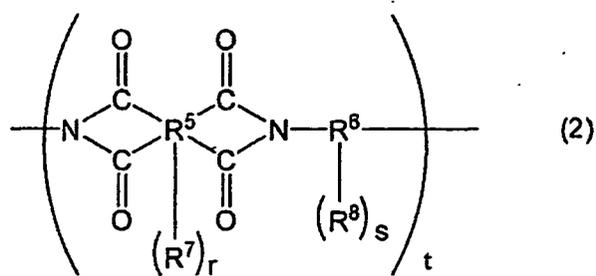
1. 一種正型感光性樹脂組成物，其含有 (a) 將由下述通式 (1) 所表示的結構作為主成分的聚合物及/或將由下述通式 (2) 所表示的結構作為主成分的聚合物，(b) 醌二疊氮化合物，(c) 具有由下述通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑，(d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑，以及 (e) 溶劑：

[化 1]



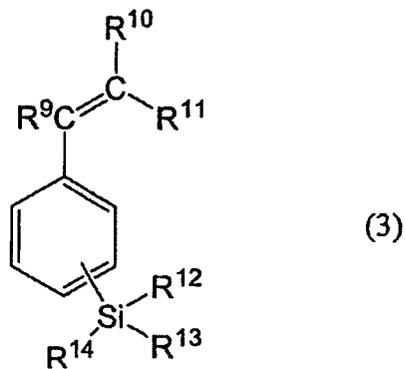
(上述通式 (1) 中， $R^1$  及  $R^2$  分別獨立地表示碳數為 2 以上的 2 價~8 價的有機基； $R^3$  及  $R^4$  分別獨立地表示氫或碳數為 1~20 的 1 價的有機基； $n$  表示 10~100,000 的範圍； $l$  及  $m$  分別獨立地表示 0~2 的整數， $p$  及  $q$  分別獨立地表示 0~4 的整數；其中， $p+q>0$ )

[化 2]



(上述通式 (2) 中， $R^5$  表示 4 價~10 價的有機基， $R^6$  表示 2 價~8 價的有機基； $R^7$  及  $R^8$  表示酚性羥基、磺酸基或硫醇基，且分別可為單一的基，亦可混合存在不同的基； $t$  表示 3~100,000 的範圍； $r$  及  $s$  表示 0~6 的整數)

[化 3]



(上述通式 (3) 中， $R^9 \sim R^{11}$  分別獨立地表示氫或碳數為 1~3 的烷基； $R^{12} \sim R^{14}$  分別獨立地表示碳數為 1~6 的烷基、碳數為 2~4 的烯基、苯基、取代苯基或碳數為 1~6 的烷氧基，且至少一個是碳數為 1~6 的烷氧基)。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之正型感光性樹脂組成物，其中上述 (d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巯基與烷氧基矽烷基

的矽烷偶合劑包括具有環氧基或氧雜環丁基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑。

3. 如申請專利範圍第 1 項或第 2 項所述之正型感光性樹脂組成物，其中相對於上述 (a) 將由通式 (1) 所表示的結構作為主成分的聚合物及/或將由通式 (2) 所表示的結構作為主成分的聚合物 100 重量份，含有上述 (c) 具有由通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑 0.001 重量份~2 重量份。

4. 如申請專利範圍第 1 項或第 2 項所述之正型感光性樹脂組成物，其中相對於上述 (a) 將由通式 (1) 所表示的結構作為主成分的聚合物及/或將由通式 (2) 所表示的結構作為主成分的聚合物 100 重量份，含有上述 (d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑 0.01 重量份~30 重量份。

5. 如申請專利範圍第 1 項或第 2 項所述之正型感光性樹脂組成物，其中相對於上述 (c) 具有由通式 (3) 所表示的結構的矽烷偶合劑 100 重量份，含有上述 (d) 具有環氧基、氧雜環丁基、甲基丙烯醯氧基、丙烯醯氧基、胺基、醯胺基或巰基、與烷氧基矽烷基的矽烷偶合劑 100 重量份~4000 重量份。