

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2006年9月14日 (14.09.2006)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2006/095590 A1

(51) 国際特許分類:

C08K 9/06 (2006.01) H05K 1/03 (2006.01)  
C08L 63/00 (2006.01) H05K 3/46 (2006.01)  
C23C 18/20 (2006.01)

(74) 代理人: 酒井 正己, 外(SAKAI, Masami et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂4丁目13番5号赤坂オフィスハイツ Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2006/303599

(22) 国際出願日:

2006年2月27日 (27.02.2006)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2005-066604 2005年3月10日 (10.03.2005) JP  
特願2005-248707 2005年8月30日 (30.08.2005) JP

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

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日鉱金属株式会社 (NIPPON MINING & METALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1050001 東京都港区虎ノ門二丁目10番1号 Tokyo (JP).

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 河村 寿文 (KAWAMURA, Toshifumi) [JP/JP]; 〒3191535 茨城県北茨城市華川町臼場187番地4 株式会社日鉱マテリアルズ磯原工場内 Ibaraki (JP). 伊森徹 (IMORI, Toru) [JP/JP]; 〒3191535 茨城県北茨城市華川町臼場187番地4 株式会社日鉱マテリアルズ磯原工場内 Ibaraki (JP).

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: FILLER FOR RESIN, RESIN BASE MATERIAL CONTAINING SAME AND ELECTRONIC COMPONENT SUBSTRATE MATERIAL

(54) 発明の名称: 樹脂用フィラー、それを配合した樹脂基材、及び電子部品基材

(57) Abstract: Disclosed is a technique which can be applied to a resin base material commonly used as substrate material and enables to improve the adhesion strength between the base material and a plated metal layer, namely a general resin base material improved in adhesion to a plated metal layer. Specifically disclosed is a filler for resins composed of a silica which is surface-treated with both a solution containing a silane coupling agent such as one obtained by a reaction between an azole compound or amine compound and an epoxysilane compound and a solution containing a noble metal compound, or alternatively surface-treated with a mixture of these solutions. Also specifically disclosed are a resin base material containing such a filler and an electronic component substrate material obtained by electroless plating such a resin base material.

(57) 要約: 基板材料として一般的な樹脂基材に適用でき、その基材とめっき金属層との密着強度を向上させることができる技術を提供する、すなわち、めっき金属層との密着強度を向上した一般的な樹脂基材を提供する。アゾール系化合物またはアミン化合物とエポキシシラン系化合物との反応により得られたシランカップリング剤などのシランカップリング剤を含む溶液と貴金属化合物を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により表面処理されたシリカなどの樹脂用フィラー、該フィラーを配合した樹脂基材、該樹脂基材に無電解めっきを施した電子部品基材。

WO 2006/095590 A1

## 明細書

### 樹脂用フィラー、それを配合した樹脂基材、及び電子部品基材 技術分野

[0001] 本発明は、樹脂用フィラー、それを配合した樹脂基材、及び電子部品基材に関する。

#### 背景技術

[0002] 近年、プリント基板は、機器の小型化、高性能化の要求によりその配線密度はますます増大している。それに伴い、ビルドアップ基板など基板は配線を微細化するためその表面をロープロファイル化しており、この表面の低粗化傾向により、基板と基板上に形成する金属めっき膜との密着性を十分にとることが困難になっている。しかし、前記の要求を満たすために、この密着強度の向上もまた要求される。

[0003] こうした要求に対応するため、すでに各種の提案がなされている。その中で、特許文献1、あるいは2に提案されたものは、ポリイミド樹脂基材上にパラジウム化合物を含有するポリイミド樹脂前駆体溶液を塗布・乾燥させてポリイミド樹脂前駆体層を形成し、次いで水素供与体の存在下において紫外線を照射しめっき下地核を形成した後、無電解めっき処理によりめっき下地金属層を形成し、更に表面めっき層を形成した後または形成する前に前記ポリイミド樹脂前駆体層を加熱イミド化してポリイミド樹脂層にするというものである。これはめっき下地核をポリイミド樹脂層内に形成したことによりそのアンカー効果により、ポリイミド樹脂層とめっき下地金属層の密着強度を向上させるものである。

特許文献1:特開2002-30216号公報

特許文献2:特開2002-374055号公報

#### 発明の開示

##### 発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、前記の提案では基板材料はポリイミド樹脂に限定され、電子部品用基板一般に適用することはできない。また、パラジウムを活性化するために紫外線処理を要し、更にイミド化のために高温加熱を要するなどその処理工程は煩雑である。

[0005] 本発明は、基板材料として一般的な樹脂基材に適用でき、その基材とめっき金属層との密着強度をより簡易に向上させることができる技術を提供するものである。すなわち、本発明は、めっき金属層との密着強度を向上した電子部品基材として有用な一般的な樹脂基材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

[0006] 本発明者は、鋭意検討した結果、フィラーを無電解めっきの触媒である貴金属化合物を含む溶液と該貴金属を捕捉するシランカップリング剤を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により表面処理し、該樹脂用フィラーを樹脂基材に配合することにより、該フィラーを樹脂基材の表面に現出させて表面を活性化することができ、無電解めっきすることにより析出する金属に対して前記シランカップリング剤を介してアンカー効果を付与することができ、無電解めっきによる金属層と樹脂基材との密着強度を向上し得ることを知見し、本発明に至った。

[0007] すなわち、本発明は、

[1] シランカップリング剤を含む溶液と貴金属化合物を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により表面処理された樹脂用フィラー。

[2] フィラーがシリカである[1]記載の樹脂用フィラー。

[3] シランカップリング剤がアゾール系化合物またはアミン化合物とエポキシシラン系化合物との反応により得られたシランカップリング剤である[1]または[2]記載の樹脂用フィラー。

[4] 貴金属化合物がパラジウム化合物である[1]～[3]のいずれかに記載の樹脂用フィラー。

[5] [1]～[4]のいずれかに記載の樹脂用フィラーを配合した樹脂基材。

[6] 樹脂基材の樹脂がエポキシ樹脂である[5]記載の樹脂基材。

[7] [5]または[6]記載の樹脂基材に無電解めっきを施した電子部品基材。

[8] 電子部品基材がビルドアップ基板である[7]記載の電子部品基材。  
に関する。

### 発明の効果

[0008] 本発明によれば、シランカップリング剤を含む溶液と貴金属化合物を含む溶液それ

それにより、またはそれらの混合溶液により表面を処理されたフィラーを樹脂基材に配合することにより、該フィラーが樹脂基材表面に現出し、この樹脂基材を無電解めつきすることで析出した金属がシランカップリング剤を介してアンカー効果を得ることができ、その結果、樹脂基材の樹脂層と無電解めつきによる金属層との密着強度を向上させることができる。

### 発明を実施するための最良の形態

[0009] 本発明に使用するフィラーとしては、樹脂一般に配合されるフィラーを使用することができる。例えば、シリカ、アルミナ、ガラス纖維などの無機系フィラーあるいは有機系フィラーを上げることができる。

フィラーは、平均粒径0.1～50μmが好ましく、より好ましくは1～10μmである。

[0010] 本発明に使用するシランカップリング剤としては、アゾール系化合物あるいはアミン化合物とエポキシシラン系化合物との反応により得られた貴金属を捕捉するシランカップリング剤が好ましい。

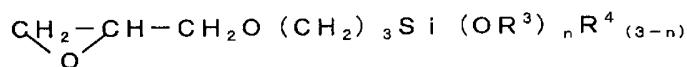
エポキシシラン系化合物と反応させるアミン化合物としては、ジメチルアミン、ジエチルアミン等の低級ジアルキルアミンが好ましい。

アゾール系化合物は、アゾール基を含有する化合物であり、その好ましいアゾール基としては、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、セレナゾール、ピラゾール、イソオキサゾール、イソチアゾール、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、テトラゾール、オキサトリアゾール、チアトリアゾール、ベンダゾール、インダゾール、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾールなどが挙げられる。中でもイミダゾール基が特に好ましい。

[0011] また、前記シランカップリング剤とは、前記アゾール系化合物またはアミン化合物等由来の貴金属イオン捕捉基の他に、 $-SiX_1X_2X_3$ 基を有する化合物であり、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ はアルキル基、ハロゲンやアルコキシ基などを意味し、フィラーへの固定が可能な官能基であれば良い。 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ は同一でもまた異なっていても良い。

[0012] また、このような前記のアミン化合物あるいはアゾール系化合物と反応させるエポキシ基含有シラン化合物としては、

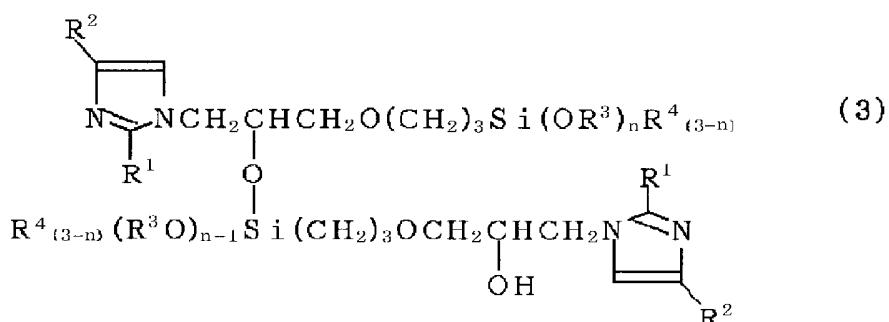
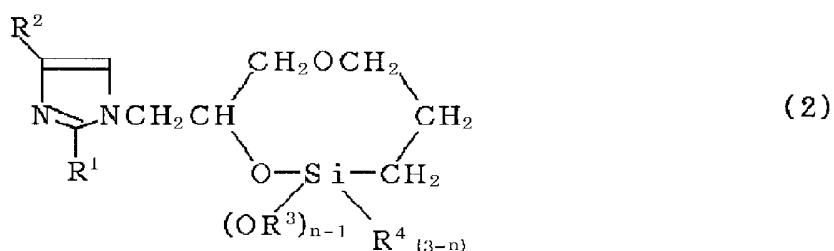
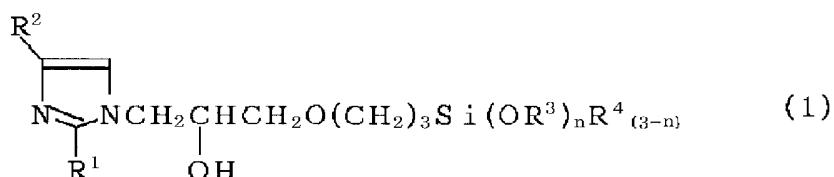
[化1]



(式中、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は水素又は炭素数が1～3のアルキル基、nは1～3の整数)で示されるエポキシシランカップリング剤が好ましい。

- [0013] 前記アゾール化合物と前記エポキシ基含有シラン化合物との反応は、特開平6-256358号公報に説示されている条件で行うことができる。例えば、80～200°Cでアゾール化合物1モルに対して0.1～10モルのエポキシ基含有シラン化合物を滴下して5分～2時間反応させる。その際、溶媒は特に不要であるが、クロロホルム、ジオキサンメタノール、エタノール等の有機溶媒を用いてもよい。
- [0014] 本発明に使用する金属捕捉能を有するシランカップリング剤のその他の例として、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。
- [0015] 本発明において特に好ましいシランカップリング剤は、イミダゾールシランであり、これは、以下の(1)、(2)および(3)で表される。

[化2]

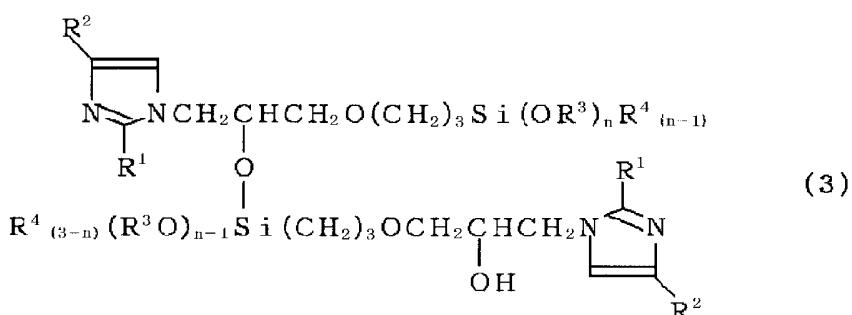
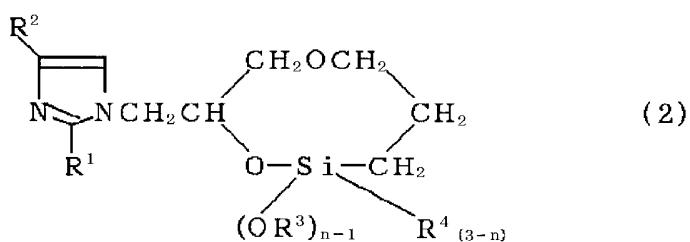
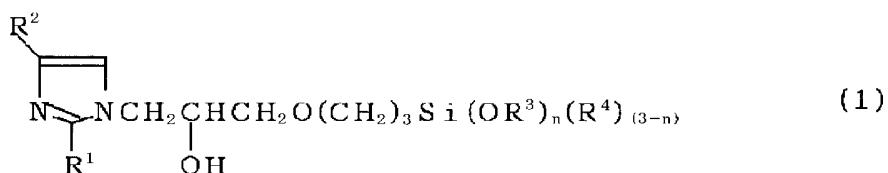
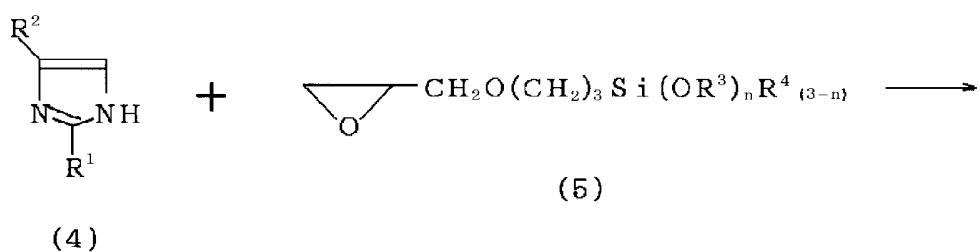


(ただし、R<sup>1</sup>は水素または炭素数が1～20のアルキル基、R<sup>2</sup>は水素、ビニル基または炭素数1～5のアルキル基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は炭素数1～3のアルキル基、nは1～3を示す。)

[0016] 上記式(1)、(2)、(3)において、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は各規定されたとおりの意義を有するが、特に合成の容易性からR<sup>1</sup>は水素、メチル、エチル、ウンデシル、ヘプタデシルが好ましく、R<sup>2</sup>は水素、メチル、エチルが好ましく、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>はメチル、エチルが好ましい。

[0017] これらの合成法については、特開平5-186479号公報に開示されている。すなわち、以下に示すイミダゾール化合物と3-グリシドキシプロピルシラン化合物との等モル反応により合成することができる。なお、この合成法によって上記(1)、(2)、(3)で表されるイミダゾールシランの混合物として得られる場合にも特に分離する必要はなく、混合物の形態で使用することが有利である。

[0018] [化3]



(上記式中、R<sup>1</sup>は水素又は炭素数が1～20のアルキル基、R<sup>2</sup>は水素、ビニル基又は炭素数1～5のアルキル基、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は炭素数1～3のアルキル基、nは1～3を表す。)

[0019] 上記一般式(4)で表されるイミダゾール化合物として好ましいのは、イミダゾール、2-アルキルイミダゾール、2, 4-ジアルキルイミダゾール、4-ビニルイミダゾール等である。これらのうちとくに好ましいのは、イミダゾール; 2-アルキルイミダゾールとしては、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール; また、2, 4-ジアルキルイミダゾールとしては、2-エチル-4-メチルイミダゾール等を挙げることができる。

[0020] 又上記一般式(5)で表される3—グリシドキシプロピルシラン化合物は、3—グリシドキシプロピルトリアルコキシシラン、3—グリシドキシプロピルジアルコキシアルキルシラン、3—グリシドキシプロピルアルコキシジアルキルシランであり、これらのうちとくに好ましいものを挙げれば、3—グリシドキシプロピルトリアルコキシシランとしては、3—グリシドキシプロピルトリメチキシシラン、3—グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、また3—グリシドキシプロピルジアルコキシアルキルシランとしては、3—グリシドキシプロピルジメチルシラン、3—グリシドキシプロピルアルコキシジアルキルシランとしては、3—グリシドキシプロピルエトキシジメチルシラン等である。

本発明において、前記シランカップリング剤は、処理剤中1～30000mg/L好ましくは、10～20000mg/Lの濃度で使用される。

[0021] また、前記貴金属化合物としては、無電解めつき液から銅やニッケルなどを析出させる際に触媒効果を示すパラジウム、銀、白金、金などの塩化物、水酸化物、酸化物、硫酸塩、アンモニウム塩などのアンミン錯体などが挙げられるが、特にパラジウム化合物、中でもパラジウム石けんが好ましい。貴金属化合物は水溶液として用いることが好ましく、処理剤中の濃度は1～30000mg/Lが好ましい。本明細書において、処理剤中の濃度とは、フィラーを前処理する際の溶液中の濃度をいう。

[0022] 本発明において、フィラーの処理は、シランカップリング剤と貴金属化合物それぞれの溶液により行われるか、あるいはこれらシランカップリング剤と貴金属化合物の混合液を用いて行われる。シランカップリング剤と貴金属化合物それぞれの溶液によりフィラーの処理を行う場合は、シランカップリング剤を含む溶液で先に処理することが好ましい。

この溶液に使用される溶媒としては、例えば、水、メチルアルコール、エチルアルコール、2—プロパノール、ブチルアルコール、アセトン、トルエン、エチレングリコール、ポリエチレングリコール、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ジオキサンなどやこれらを混合した溶液などに溶解させた溶液で使用できる。

水を使用する場合、特にフィラー面及びめつき条件により溶液のpHを最適化する必要がある。

[0023] 表面処理された樹脂フィラーを、樹脂基材となる材料に配合して樹脂基材を得るこ

とにより、得られた樹脂基材の表面には該フィラーが現出する。表面処理された樹脂フィラーを配合する量は、樹脂フィラーを配合して得られた樹脂基材表面にフィラーが現出するよう、使用する樹脂基材により任意に調整する。

[0024] 本発明に使用する樹脂基材としては、電子部品基材等として使用されているものを含め特に制限はない。例えばエポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコン樹脂等をあげることができる。

本発明において、特に好ましい樹脂は、エポキシ樹脂である。このエポキシ樹脂としては、例えばビスフェノールA、ビスフェノールFなどのビスフェノール類のジグリジルエーテル化物(ビスフェノール型エポキシ樹脂)、や側鎖、または主鎖にゴム、ウレタン、ポリエーテル、ポリエステル等の可撓性樹脂で変性されたもの、フェノールノボラック、クレゾールのボラック、などのグリジルエーテル化物(ノボラック型エポキシ樹脂)、あるいはポリブタジエンなどの共役ジエンポリマーのエポキシ化物などが上げられる。

[0025] また、貴金属化合物を含む溶液とシランカップリング剤を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により処理されたフィラーの無電解めっき活性を更に活性化させるために、無電解めっき前に、該フィラーを配合した樹脂基材を、還元剤により処理することが好ましい。この還元剤としては、無電解めっきにおいて通常使用されている公知の還元剤を使用することができるが、好ましくは、次亜リン酸、次亜リン酸ナトリウム等の次亜リン酸アルカリ金属塩、ジメチルアミンボランなどを上げることができる。

また、前記還元剤による処理の前に、フィラーを配合した樹脂基材を過マンガン酸等で処理し、表面を粗化することによりさらに密着強度が向上する。

[0026] 本発明は、貴金属化合物を含む溶液とシランカップリング剤を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により処理されたフィラーを配合した樹脂基材に無電解めつきを施した電子部品基材、ビルドアップ基材を含むものである。

本発明において、無電解めつきそれ自体は、公知の方法でよく、特に制限されるものではない。無電解めつきは、銅めつきが好ましいが、その他、ニッケル、コバルトなどでも良い。

また、無電解めっきの後、電気めっきを行うことができる。この電気めっき法について特に制限はなく、公知の技術が適用できる。例えば、銅、クロム、ニッケル、銀などが適用できる。

## 実施例

### [0027] 実施例1

市販のシリカ系フィラー((株)龍森社製、最大粒径 $35\mu\text{m}$ 、平均粒径 $5\mu\text{m}$ )を、イミダゾールシラン(イミダゾールと3-グリシドキシプロピルトリメチシランの等モル反応生成物)1g/LとPd石けん(ナフテン酸パラジウム)1g/L(Pd換算200mg/L)を含んだブタノール溶液に浸漬して、風乾・溶媒除去することで表面処理をした。ビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート1001)90重量部、多官能型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート154)10重量部、ジシアソジアミド硬化剤2重量部、イミダゾールシラン硬化促進剤((株)日鉱マテリアルズ製)0.2重量部に対して、前記のように処理されたフィラーを50重量部加えて加熱成型することでフィラー入り絶縁樹脂を得た。これを次亜リン酸(ホスフィン酸)30g/Lからなる活性化剤で処理することでPdを無電解めっき活性にした。無電解銅めっき(高温タイプのホルマリン系銅めっき液、KC500(日鉱メタルプレーティング(株)製、0.3μm厚)を行い、その後電気銅めっき(硫酸銅めっき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を行った。ピール強度は0.9kgf/cmとなった。なお、ピール強度は、90°ピール強度(JIS C6481)である。以下のピール強度も同じである。

### [0028] 実施例2

市販のシリカ系フィラー((株)龍森社製、最大粒径 $35\mu\text{m}$ 、平均粒径 $5\mu\text{m}$ )を、イミダゾールシラン(イミダゾールと3-グリシドキシプロピルトリメチシランの等モル反応生成物)1g/LとPd石けん(ナフテン酸パラジウム)1g/L(Pd換算200mg/L)を含んだブタノール溶液に浸漬して、風乾・溶媒除去することで表面処理した。ビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート1001)90重量部、多官能型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート154)10重量部、ジシアソジアミド硬化剤2重量部、イミダゾールシラン硬化促進剤((株)日鉱マテリアルズ製)0.2重量部に対して、前記のように処理されたフィラーを50重量部加えて

加熱成型することでフィラー入り絶縁樹脂を得た。過マンガン酸で粗化処理した後、これを次亜リン酸(ホスフイン酸)30g/Lからなる活性化剤で処理することでPdを無電解めっき活性にした。無電解銅めっき(高温タイプのホルマリン系銅めっき液、KC500(日鉱メタルプレーティング(株)製、0.3μm厚)を行い、その後電気銅めっき(硫酸銅めっき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を行った。ピール強度は1.3kgf/cmとなった。

[0029] 実施例3

市販のシリカ系フィラー((株)龍森社製、最大粒径35μm、平均粒径5μm)をイミダゾールシラン((イミダゾールと3-グリシドキシプロピルトリメキシシランの等モル反応生成物)を1g/L含んだブタノール溶液で処理・乾燥後、塩化パラジウムを100mg/L(Pd換算60mg/L)含んだブタノール溶液で処理・乾燥することで表面処理した。ビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート1001)90重量部、多官能型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート154)10重量部、ジシアソジアミド硬化剤2重量部、イミダゾールシラン硬化促進剤((株)日鉱マテリアルズ製)0.2重量部に対して、前記のように処理されたフィラーを50重量部加えて加熱成型することでフィラー入り絶縁樹脂を得た。これを次亜リン酸(ホスフイン酸)30g/Lからなる活性化剤で処理することでPdを無電解活性にした。無電解銅めっき(高温タイプのホルマリン系銅めっき液、KC500(日鉱メタルプレーティング(株)製、0.3μm厚)を行い、その後電気銅めっき(硫酸銅めっき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を行った。ピール強度は0.8kgf/cmとなった。

[0030] 実施例4

市販のシリカ系フィラー((株)龍森社製、最大粒径35μm、平均粒径5μm)をイミダゾールシラン(イミダゾールと3-グリシドキシプロピルトリメキシシランの等モル反応生成物)200mg/Lと塩化パラジウム100mg/L(Pd換算60mg/L)とエチレングリコール20g/Lを含んだ水溶液に浸漬して、乾燥することで表面処理した。ビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート1001)90重量部、多官能型エポキシ樹脂(油化シェルエポキシ(株)製、エピコート154)10重量部、ジシアソジアミド硬化剤2重量部、イミダゾールシラン硬化促進剤((株)日鉱マテリア

ルズ製)0.2重量部に対して、前記のように処理されたフィラーを50重量部加えて加熱成型することでフィラー入り絶縁樹脂を得た。これを次亜リン酸(ホスフイン酸)30g/Lからなる活性化剤で処理することでPdを無電解めっき活性にした。無電解銅めつき(高温タイプのホルマリン系銅めつき液、KC500(日鉛メタルプレーティング(株)製、0.3μm厚)を行い、その後電気銅めつき液(硫酸銅めつき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を行った。ピール強度は1.0kgf/cmとなった。

[0031] 実施例5

市販のシリカ系フィラー((株)龍森社製、最大粒径35μm、平均粒径5μm)を、イミダゾールシラン(イミダゾールと3-グリシドキシプロピルトリメチシランの等モル反応生成物)1g/LとPd石けん(ナフテン酸パラジウム)1g/L(Pd換算200mg/L)を含んだブタノール溶液に浸漬して、風乾・溶媒除去することで表面処理をした。ポリアミノビスマレイミド(Rhone Pouleic社製Kerimid)100重量部をN-メチルピロリドン50重量部に溶解させたもの100重量部に、前記のように処理されたフィラーを50重量部加えて加圧成形することでフィラー入り絶縁ポリイミド樹脂を得た。これを次亜リン酸(ホスフイン酸)30g/Lからなる活性化剤で処理することでPdを無電解めつき活性にした。無電解銅めつき(高温タイプのホルマリン系銅めつき液、KC500(日鉛メタルプレーティング(株)製、0.3μm厚)を行い、その後電気銅めつき(硫酸銅めつき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を行った。ピール強度は0.8kgf/cmとなった。

[0032] 実施例6

シリカ系フィラーをアルミナ系フィラー(昭和電工社製、最大粒径30μm、平均粒径4μm)とした以外は実施例1と同様に処理した。ピール強度は0.9kgf/cmとなった。

[0033] 比較例1

実施例1で表面処理を行わないフィラーを用い、フィラー入り絶縁樹脂を作り、通常のSn-Pdコロイドでの無電解銅めつき(0.3μm厚)とその後電気銅めつき(硫酸銅めつき液、電流密度1.5A/dm<sup>2</sup>、35μm厚)を実施した。ピール強度は0.1kgf/cmと低かった。

## [0034] 比較例2

実施例2で表面処理を行わないフィラーを用い、フィラー入り絶縁樹脂を作り、通常のSn-Pdコロイドでの無電解銅めっき(0.3  $\mu$  m厚)とその後の電気銅めっき(硫酸銅めっき液、電流密度1.5A/ $dm^2$ 、35  $\mu$  m厚)を実施した。ピール強度は0.6kgf/cmであった。

## 請求の範囲

- [1] シランカップリング剤を含む溶液と貴金属化合物を含む溶液それぞれにより、またはそれらの混合溶液により表面処理された樹脂用フィラー。
- [2] フィラーがシリカである請求の範囲第1項記載の樹脂用フィラー。
- [3] シランカップリング剤がアゾール系化合物またはアミン化合物とエポキシシラン系化合物との反応により得られたシランカップリング剤である請求の範囲第1項または第2項に記載の樹脂用フィラー。
- [4] 貴金属化合物がパラジウム化合物である請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の樹脂用フィラー。
- [5] 請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の樹脂用フィラーを配合した樹脂基材。
  -
- [6] 樹脂基材の樹脂がエポキシ樹脂である請求の範囲第5項記載の樹脂基材。
- [7] 請求の範囲第5項または第6項に記載の樹脂基材に無電解めっきを施した電子部品基材。
- [8] 電子部品基材がビルドアップ基板である請求の範囲第7項記載の電子部品基材。

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2006/303599

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

**C08K9/06**(2006.01), **C08L63/00**(2006.01), **C23C18/20**(2006.01), **H05K1/03**(2006.01),  
**H05K3/46**(2006.01)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

**C08K3/00-13/08**, **C08L63/00-63/10**, **C23C18/00-20/08**

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-169871 A (Japan Energy Corp.), 30 June, 1997 (30.06.97), Claims; Par. Nos. [0010], [0014], [0023], [0043] to [0044] (Family: none)	1-8
Y	JP 2004-277735 A (Sanyo Chemical Industries, Ltd.), 07 October, 2004 (07.10.04), Claims; Par. Nos. [0007], [0010], [0128] (Family: none)	1-8

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

12 May, 2006 (12.05.06)

Date of mailing of the international search report

23 May, 2006 (23.05.06)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2006/303599

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 11-1545 A (Ibiden Co., Ltd.), 06 January, 1999 (06.01.99), Claims; Par. No. [0014]; examples (Family: none)	1-8
Y	WO 01/49898 A1 (Nikko Materials Co., Ltd.), 12 July, 2001 (12.07.01), Claims; page 4, lines 26 to 28; page 6, lines 6 to 21 & CN 1420944 A & US 2004/0182714 A1	1-8
Y	WO 01/81652 A1 (Nikko Materials Co., Ltd.), 01 November, 2001 (01.11.01), Claims; page 3, lines 14 to 20; page 4, lines 15 to 25 & US 2002/0192379 A & EP 1279750 A1 & CN 1406288 A	1-8
Y	WO 2004/024984 A1 (Nikko Materials Co., Ltd.), 25 March, 2004 (25.03.04), Claims; page 3, lines 8 to 14; page 4, lines 13 to 28 & EP 1538237 A1 & US 2005/0147755 A1	1-8

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08K9/06(2006.01), C08L63/00(2006.01), C23C18/20(2006.01), H05K1/03(2006.01), H05K3/46(2006.01)

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08K3/00-13/08, C08L63/00-63/10, C23C18/00-20/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 9-169871 A (株式会社ジャパンエナジー) 1997.06.30, 特許請求の範囲, 【0010】 , 【0014】 , 【0023】 , 【0043】 - 【0044】 (ファミリーなし)	1-8
Y	JP 2004-277735 A (三洋化成工業株式会社) 2004.10.07, 特許請求の範囲, 【0007】 , 【0010】 , 【0128】 (ファミリーなし)	1-8
Y	JP 11-1545 A (イビデン株式会社) 1999.01.06,	1-8

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12.05.2006

国際調査報告の発送日

23.05.2006

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

4 J 9042

大熊 幸治

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	特許請求の範囲, 【0014】 , 実施例 (ファミリーなし)  WO 01/49898 A1 (株式会社日鉱マテリアルズ) 2001.07.12, 請求の範囲, 4頁26-28行, 6頁6-21行 &CN 1420944 A &US 2004/0182714 A1	1-8
Y	WO 01/81652 A1 (株式会社日鉱マテリアルズ) 2001.11.01, 請求の範囲, 3頁14-20行, 4頁15-25行 &US 2002/0192379 A1 &EP 1279750 A1 &CN 1406288 A	1-8
Y	WO 2004/024984 A1 (株式会社日鉱マテリアルズ) 2004.03.25, 請求の範囲, 3頁8-14行, 4頁13-28行 &EP 1538237 A1 &US 2005/0147755 A1	1-8