

(19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-523730

(P2015-523730A)

(43) 公表日 平成27年8月13日 (2015.8.13)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H05K 3/46 (2006.01)</b>	H05K 3/46 T	4 J 0 4 3
<b>H05K 1/03 (2006.01)</b>	H05K 1/03 6 1 0 N	5 E 3 1 4
<b>H05K 3/28 (2006.01)</b>	H05K 3/28 F	5 E 3 1 6
<b>C08G 73/10 (2006.01)</b>	H05K 3/28 C	
	H05K 1/03 6 7 0 A	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 70 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2015-518587 (P2015-518587)	(71) 出願人	390023674
(86) (22) 出願日	平成25年6月21日 (2013.6.21)		イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
(85) 翻訳文提出日	平成27年2月20日 (2015.2.20)		アンド・カンパニー
(86) 国際出願番号	PCT/US2013/046938		E. I. DU PONT DE NEMO
(87) 国際公開番号	W02013/192471		URS AND COMPANY
(87) 国際公開日	平成25年12月27日 (2013.12.27)		アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミ
(31) 優先権主張番号	61/663, 291		ントン、マーケット・ストリート 100
(32) 優先日	平成24年6月22日 (2012.6.22)		7
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	110001243
(31) 優先権主張番号	61/663, 270		特許業務法人 谷・阿部特許事務所
(32) 優先日	平成24年6月22日 (2012.6.22)	(72) 発明者	ジー・シドニー コックス
(33) 優先権主張国	米国 (US)		アメリカ合衆国 27707 ノースカロ
(31) 優先権主張番号	61/663, 254		ライナ州 ダラム コブスコック ドライ
(32) 優先日	平成24年6月22日 (2012.6.22)		ブ 4314
(33) 優先権主張国	米国 (US)		最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 回路基板

## (57) 【要約】

本開示は、第1のポリイミドカバーレイ、第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層、第2の像形成された金属層、ポリイミドボンダプライ、第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層、第4の像形成された金属層および第2のポリイミドカバーレイを有する回路基板に関する。第1のポリイミドカバーレイ、ポリイミドボンダプライおよび第2のポリイミドカバーレイは、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層であって、前記第1の電気絶縁層の前記第1の面は、前記第1の像形成された金属層に接する、第1の電気絶縁層、

d. 第2の像形成された金属層であって、前記第1の電気絶縁層の前記第2の面は、前記第2の像形成された金属層に接する、第2の像形成された金属層、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなるポリイミドボンダブリ、

f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層であって、前記第2の電気絶縁層の前記第1の面は、前記第3の像形成された金属層に接する、第2の電気絶縁層、

h. 第4の像形成された金属層であって、前記第2の電気絶縁層の前記第2の面は、前記第4の像形成された金属層に接する、第4の像形成された金属層、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる回路基板であって、

前記ポリイミドボンダブリが、前記第2の像形成された金属層および前記第1の電気絶縁層の前記第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ前記第3の像形成された金属層および前記第2の電気絶縁層の前記第1の面の露出した領域に直接接触し、

300 ~ 380 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm) の圧力において、

i) 前記第1の像形成された金属層、前記第1の電気絶縁層および前記第2の像形成された金属層、

ii) 前記ポリイミドボンダブリ、ならびに

iii) 前記第3の像形成された金属層、前記第2の電気絶縁層および前記第4の像形成された金属層

が積層される場合、前記ポリイミドボンダブリは、IPC - TM - 650 - 2.4.9 dに従って測定される、0.7 ~ 2 N/mmの剥離強度を有し、

前記第1のポリイミドカバーレイが、前記第1の像形成された金属層および前記第1の電気絶縁層の前記第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ前記第2のポリイミドカバーレイが、前記第4の像形成された金属層および前記第2の電気絶縁層の前記第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ

前記第1の電気絶縁層および前記第2の電気絶縁層が、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である、回路基板。

## 【請求項 2】

前記ポリイミドボンダブリが、1 ~ 55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる、請求項1に記載の回路基板。

## 【請求項 3】

前記第1の電気絶縁層、前記第2の電気絶縁層または両方が、1 ~ 55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる、請求項1に記載の

10

20

30

40

50

回路基板。

【請求項 4】

前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記第 4 の像形成された金属層が銅である、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 5】

前記ポリイミドボンダライが、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、

前記第 1 の電気絶縁層、前記第 2 の電気絶縁層または両方が、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ

前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記第 4 の像形成された金属層が銅である、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 6】

前記第 1 の電気絶縁層が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミド、または100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層および前記ポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 7】

前記第 2 の電気絶縁層が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミド、または100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ前記第 4 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記ポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 8】

前記第 1 の電気絶縁層が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミド、または100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層および前記ポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触し、かつ

前記第 2 の電気絶縁層が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミド、または100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ前記第 4 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記ポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 9】

前記ポリイミドボンダライが、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 10】

前記第 1 の電気絶縁層、前記第 2 の電気絶縁層または両方が、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる、請求項 8 に記載の

10

20

30

40

50

回路基板。

【請求項 1 1】

前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記第 4 の像形成された金属層が銅である、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 2】

前記ポリイミドボンドライが、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、

前記第 1 の電気絶縁層、前記第 2 の電気絶縁層または両方が、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ

前記第 1 の像形成された金属層、前記第 2 の像形成された金属層、前記第 3 の像形成された金属層および前記第 4 の像形成された金属層が銅である、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 3】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方が顔料および艶消し剤を含んでなる、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 4】

前記顔料および前記艶消し剤が両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ前記低伝導率カーボンブラックが、2～20重量パーセントの量で前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方に存在する、請求項 1 3 に記載の回路基板。

【請求項 1 5】

前記艶消し剤がポリイミド粒子である、請求項 1 3 に記載の回路基板。

【請求項 1 6】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方が、低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 7】

前記第 1 の電気絶縁層、前記第 2 の電気絶縁層または両方が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 8】

前記第 1 の電気絶縁層、前記第 2 の電気絶縁層または両方が、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～30モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる、請求項 8 に記載の回路基板。

【請求項 1 9】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方が顔料および艶消し剤を含んでなる、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 2 0】

前記顔料および前記艶消し剤が両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ前記低伝導率カーボンブラックが、2～20重量パーセントの量で前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方に存在する、請求項 1 9 に記載の回路基板。

【請求項 2 1】

前記艶消し剤がポリイミド粒子である、請求項 1 9 に記載の回路基板。

【請求項 2 2】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方が、低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 2 3】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイおよび前記ポリイミドボンドプラインが、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる、請求項 1 に記載の回路基板。

【請求項 24】

前記第 1 のポリイミドカバーレイ、前記第 2 のポリイミドカバーレイおよび前記ポリイミドボンドプラインが、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～30モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなる、請求項 1 に記載の回路基板。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は概して回路基板に関する。より詳しくは、回路基板はポリイミドボンドプライン(polyimide bondply)を含んでなる。

【背景技術】

【0002】

回路基板構築物のための金属張積層体は、間に接着層を用いて、金属箔にポリイミド膜を積層することによって構成される。接着層は従来の接着剤(アクリレート、エポキシド、ポリアミド、フェノール樹脂など)からなっており、接着剤は金属箔積層の間に硬化される。しかしながら、これらの従来の接着剤は、通常、ベースのポリイミド誘電体の高温熱安定性を有さず、高温を受けた時、マルチプレーヤー積層構造体の接着結合の強度は急速に低下する。またこれらの接着剤は、これらの接着剤の高い損失係数のため、高速回路層において高い電氣的損失を示す。

20

【0003】

電子実装がより高度なものとなり、低CTE、低水分吸着、高温熱安定性および高弾性を有する、より薄型で、より小型で軽量のフレキシブル電子部品に対する要望のため、接着層の排除が必要とされている。

【0004】

接着剤を含まない積層体のための1つの手段は、両面にポリアミド酸前駆体溶液の薄層によって高弾性ポリイミド膜コア層をコーティングし、この層を乾燥させ、最終的に適用されたコーティングをイミド化し、熱可塑性ポリイミドを作製することである。次いで、熱および圧力によって銅箔を積層し、両面銅張積層体を作製する。

30

【0005】

またポリイミド前駆体を銅箔上に直接コーティングして、次いで硬化し、片面に銅箔を有するポリイミド膜を作製することも可能である。これは、接着剤を含まない銅クラッド膜を製造するための一般的な方法であるが、片面のみに銅を有するポリイミドクラッドを作製することができる。接着剤を含まないポリイミド銅張積層体を製造するためのもう1つの方法は、標準的剛性ポリイミドベース膜から出発することである。典型的に、金属とポリイミドとの間の接着性を改善するために、スパッタリングまたは蒸着によって金属薄層が析出される。次いで必要とされる厚さまで銅に電気メッキが施され、両面銅張積層体を作製する。

40

【0006】

これらの各々には、以下の不都合の1つまたは複数がある：ポリイミド膜への金属箔の積層とは対照的に必要とされる追加的な工程、接着剤が使用される場合はポリイミドへの金属箔の劣った接着性、ポリイミドの複数の層は全体的に構造体の厚さを追加する。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

50

上記の理由のために、良好な機械特性および電気特性を維持しながら、低CTE、低水分吸着、高温熱安定性および高弾性を有する、より薄型のフレキシブル電子部品を提供するため、接着剤を使用することなく金属箔に直接積層／接着することが可能なポリイミド膜に対する必要性が存続している。

【発明を実施するための形態】

【0008】

定義

本明細書で使用される場合、「含んでなる (comprises)」、「含んでなっている (comprising)」、「含む (includes)」、「含んでいる (including)」、「有する」、「有している」という用語またはそれらの他のいずれの変形も、非排除的包含を含むように意図される。例えば、要素のリストを含んでなる方法、プロセス、物品または装置は、必ずしもそれらの要素に限定されず、明白に記載されないか、またはそのような方法、プロセス、物品または装置に固有である他の要素を含んでもよい。さらに、明白に反対に明示されない限り、「または」は包含的離接を指し、排他的論理和を指さない。例えば、条件AまたはBは、以下のいずれか1つによって満たされる：Aは真であり（または存在し）、Bは偽である（または存在しない）；Aは偽であり（または存在しない）、Bは真である（または存在する）；ならびにAおよびBは真である（または存在する）。

10

【0009】

また「a」または「an」の使用は、本発明の要素および成分を記載するために使用される。これは便宜上、および本発明の一般的な意味を与えるためのみである。この記述は1つ、または少なくとも1つを含むように解釈されなければならない、かつ、それが別の意味を有することが明らかでない限り、単数は複数も含む。

20

【0010】

「二無水物」という用語は、本明細書で使用される場合、技術的には二無水物ではないが、それにもかかわらず、ジアミンと反応して、ポリイミドに変換可能なポリアミド酸を形成し得る、それらの前駆体、誘導体または類似体を含むように意図される。

【0011】

「ジアミン」という用語は、本明細書で使用される場合、技術的にはジアミンではないが、それにもかかわらず、二無水物と反応して、ポリイミドに変換可能なポリアミド酸を形成し得る、それらの前駆体、誘導体または類似体を含むように意図される。

30

【0012】

「ポリアミド酸」という用語は、本明細書で使用される場合、二無水物およびジアミンの組み合わせから誘導され、かつポリイミドへの変換が可能である任意のポリイミド前駆体材料を含むように意図される。

【0013】

「膜」という用語は、本明細書で使用される場合、自立膜または（セルフサポーティングもしくは非セルフサポーティング）コーティングを意味するように意図される。「膜」という用語は、「層」という用語と交換可能に使用される。

【0014】

「化学変換」または「化学的に変換される」という用語は、本明細書で使用される場合、ポリアミド酸をポリイミドに変換するための触媒（促進剤）もしくは脱水剤（または両方）の使用を示し、かつ98%より高い固体濃度まで高温で乾燥される、部分的に化学的に変換されたポリイミドを含むように意図される。

40

【0015】

「金属」という用語は、本明細書で使用される場合、元素金属および金属合金を含むように意図される。

【0016】

「直接接触」という用語は、本明細書で使用される場合、層がそれらのインターフェースにおいて互いに接触し、かつ接着層などの介在層が存在しないことを意味するように意図される。

50

## 【0017】

量、濃度または他の値もしくはパラメーターが、範囲として、好ましい範囲として、または上位の好ましい値および下位の好ましい値のリストとして与えられる場合、範囲がそれとは別に開示されるかどうかにかかわらず、任意の上位の範囲限界または好ましい値および任意の下位の範囲限界または好ましい値の任意の対から形成される全ての範囲を特に開示するものとして理解されるべきである。数値的な値の範囲が本明細書に列挙される場合、特に明記されない限り、その範囲は、それらの終点ならびに範囲内の全ての整数および分数を含むように意図される。数値的な値は、提供される有効数字の数の精度を有するように理解されるべきである。例えば、数字1は、0.5～1.4の範囲を包含するように理解されるが、それに対して数字1.0は、0.95～1.04の範囲を包含するように理解され、明示された範囲の終点を含む。本発明の範囲は、範囲が定義される場合に列挙される特定の値に限定されるようには意図されない。

10

## 【0018】

ある種のポリマーの記述において、出願者が、それらを製造するために使用されるモノマーまたはそれらを製造するために使用されるモノマーの量によってポリマーを参照する時があることは理解されるべきである。そのような記述には、最終的なポリマーを記載するために使用される特定の学名が含まれ得ないか、またはプロダクト-バイ-プロセス用語が含有され得ないが、モノマーおよび量の任意のそのような参照は、文脈が別のことを示すか、または暗示しない限り、ポリマーがそれらのモノマーから製造されることを意味するものと解釈されなければならない。

20

## 【0019】

本明細書に記載される材料、方法および実施例は、実例となるのみであり、特に明示された場合を除き、限定するように意図されない。本明細書に記載されるものと同様または同等の方法および材料を使用することができるが、適切な方法および材料は本明細書に記載される。

## 【0020】

本開示は、追加的な接着層を必要とすることなく、金属に直接接着可能であり、かつ良好な剥離強度を有する熱硬化性ポリイミド膜に関する。良好な剥離強度は、本開示の目的のための金属張積層体に関して、少なくとも1 N/mmである。カバーレイ (coverlay) またはボンドプライ (bondply) に関する良好な剥離強度は、0.7～2 N/mmである。

30

## 【0021】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜 (ポリイミド層またはポリイミドカバーレイ (polyimide coverlay) またはポリイミドボンドプライまたは電気絶縁層) は、100モル%の3,3',4,4'-ピフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ300～380の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

## 【0022】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜 (ポリイミド層またはポリイミドカバーレイまたはポリイミドボンドプライまたは電気絶縁層) は、100モル%の3,3',4,4'-ピフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ330～380の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

40

## 【0023】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜 (ポリイミド層またはポリイミドカバーレイまたはポリイミドボンドプライまたは電気絶縁層) は、100モル%の3,3',4,4'-ピフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから

50

誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ320～380の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

【0024】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜（ポリイミド層またはポリイミドカバーレイまたはポリイミドボンドライまたは電気絶縁層）は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～30モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび70～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ330～380の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

【0025】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜（ポリイミド層またはポリイミドカバーレイまたはポリイミドボンドライまたは電気絶縁層）は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ少なくとも300、320、330または350の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

【0026】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜（ポリイミド層またはポリイミドカバーレイまたはポリイミドボンドライまたは電気絶縁層）は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、かつ少なくとも300、320、330または350の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

【0027】

100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンから誘導されるポリイミドは、380～400の積層温度において金属および他のポリマーに直接接着することが可能である。

【0028】

したがって、本開示のポリイミドは、限定されないが、金属張積層体、カバーレイおよびボンドライなどの金属へのポリイミドの直接接着が有利であり、かつ低CTE、低水分吸着を有する薄型フレキシブル電子部品が望ましい任意の用途のために有用である。

【0029】

金属張積層体

いくつかの実施形態において、本開示のポリイミド金属張積層体は、金属箔と、ポリイミド層とを含んでなる。ポリイミド層は、第1の面と、第2の面とを有し、第1の面は金属箔に直接接触しており、ポリイミド層は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有しない。320～380の積層温度および150psi（10.55kg/cm）～400psi（28.13kg/cm）の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～3.3N/mmの剥離強度を有する。

【0030】

一実施形態において、本開示のポリイミド金属張積層体は、金属箔と、ポリイミド層とを含んでなる。ポリイミド層は、第1の面と、第2の面とを有し、第1の面は金属箔に直接接触しており、ポリイミド層は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミド

10

20

30

40

50



を含んでなり、ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有しない。320～380 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm)～400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～3 N/mmの剥離強度を有する。

【0031】

もう1つの実施形態において、本開示のポリイミド金属張積層体は、金属箔と、ポリイミド層とを含んでなる。ポリイミド層は、第1の面と、第2の面とを有し、第1の面は金属箔に直接接触しており、ポリイミド層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有しない。330～350 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm)～400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～3.2 N/mmの剥離強度を有する。

【0032】

もう1つの実施形態において、ポリイミド金属張積層体は、金属箔と、第1の面と、第2の面とを有するポリイミド層とを含んでなり、第1の面は金属箔に直接接触しており、ポリイミド層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなり、ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有さず、かつ380～400 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm)～400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～3 N/mmの剥離強度を有する。

【0033】

いくつかの実施形態において、本開示のポリイミド金属張積層体は、金属箔およびポリイミド層を含んでなる。ポリイミド層は、第1の面と、第2の面とを有し、第1の面は金属箔に直接接触しており、ポリイミド層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなり、ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有しない。少なくとも320 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm)～400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、少なくとも1 N/mmの剥離強度を有する。

【0034】

いくつかの実施形態において、ポリイミドは、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85および90モル%の任意の2つの両端値を含む間の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、ならびに10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70および80モル%の任意の2つの両端値を含む間の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される。

【0035】

いくつかの実施形態において、ポリイミド金属クラッドは、ポリイミド層の第2の面に直接接触する第2の金属箔をさらに含んでなり、かつポリイミド金属張積層体は、第2の金属箔とポリイミド層との間に接着層を有しない。

【0036】

いくつかの実施形態において、ポリイミド金属張積層体は、

10

20

30

40

50

a. 金属箔と、

b. 金属箔に直接接触する第1の面と、第2の面とを有し、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドを含んでなるポリイミド層と、

c. 第2の金属箔と

を含んでなり、かつポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有さず、かつ320~380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~3N/mmの剥離強度を有する。

10

【0037】

いくつかの実施形態において、ポリイミド金属張積層体は、

a. 金属箔と、

b. 金属箔に直接接触する第1の面と、第2の面とを有し、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導されるポリイミドを含んでなるポリイミド層と、

c. 第2の金属箔と

を含んでなる。

20

【0038】

ポリイミド金属張積層体は、金属箔とポリイミド層との間に接着層を有さず、かつ第2の金属箔とポリイミド層との間に接着層を有さず、かつ320~380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において金属箔およびポリイミド層と一緒に積層される場合、ポリイミド金属張積層体は、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~3N/mmの剥離強度を有する。

【0039】

驚くべきことに、本開示のポリイミドは、320~380の温度において積層された場合、およびいくつかの場合、380~400の温度において積層された場合、接着剤を必要とせずに、金属に対する、および金属が除去された部分で露出したポリマー領域を有する像形成された金属に対する良好な剥離強度を有し、かつ機械特性および電気特性の良好なバランス、ならびに低CTEを維持する。全ての低Tgポリイミドが良好な剥離強度、特性のバランスおよび低CTEを有するというわけではない。

30

【0040】

望ましい電気特性および機械特性は、材料が使用される所望の最終用途次第である。所望の最終用途のために特性を微調整する際に、通常の技術および実験が必要とされ得る。一般に、良好なMD引張係数は2.75GPaより高く、MD引張強さは125MPaより高く、MD伸長率は25%より高く、水分吸収は1.5%未満であり、100Hzの比誘電率は3.5未満、および損失係数は0.006未満である。

40

【0041】

金属箔に直接接着する能力を有する単層ポリイミド膜のもう1つの利点は、高度な層を組み合わせるシステムに依存する多層キャスト膜よりも、25ミクロン未満の厚さに関して単スロットキャストイングダイを通して、膜厚均一性をより容易に制御することができることである。全てのポリイミド銅張積層体は、3層、すなわち、剛性熱硬化性ポリイミドコア、ならびにポリイミドコア両面上の薄い熱可塑性ポリイミドコーティングから製造することができる。しかしながら、薄いコーティングの厚さを制御することは困難であり、加えて、3層膜を製造するためにはより複雑な製造方法が必要とされる。

【0042】

本開示の単層のポリイミド膜のもう1つの利点は、それが、剛性ポリイミドコアを有す

50

る銅張積層体で予想される特性を生じ、また熱可塑性ポリイミドと同様の銅に対する接着性を生じることである。銅箔への良好な接着性は、全ての熱可塑性ポリイミド膜によって達成可能であろう。しかしながら、全ての熱可塑性膜は、金属張積層体のために容認できない大きいCTE値( $>50$ )を有するであろう。また寸法安定性も低い。

【0043】

もう1つの利点は、ポリイミド薄膜は、電気特性を維持しながら、より高い熱伝導率を可能にすることができることである。

【0044】

いくつかの実施形態において、(ポリイミド金属張積層体の)ポリイミド層は、2、5、10、15、20、26、30、35、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85、90、95、100および105ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、ポリイミド層は2~26ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、ポリイミド層は27~105ミクロンの厚さである。

10

【0045】

金属箔 - 金属張積層体

いくつかの実施形態において、金属箔は元素金属である。いくつかの実施形態において、金属箔は金属合金である。いくつかの実施形態において、金属箔は銅である。いくつかの実施形態において、金属合金は50~72重量%のニッケルを含んでなる。もう1つの実施形態において、金属合金は、50~72重量%のニッケルおよび14~24重量%のクロムを含んでなる。いくつかの実施形態において、金属箔はアルミニウムである。

20

【0046】

いくつかの実施形態において、ポリイミド金属張積層体は、ポリイミド層の第2の面に直接接触する第2の金属箔をさらに含んでなり、かつポリイミド金属張積層体は、第2の金属箔とポリイミド層との間に接着層を有さない。

【0047】

いくつかの実施形態において、第2の金属箔は元素金属である。いくつかの実施形態において、第2の金属箔は金属合金である。いくつかの実施形態において、第2の金属箔は銅である。いくつかの実施形態において、金属合金は50~72重量%のニッケルを含んでなる。もう1つの実施形態において、金属合金は、50~72重量%のニッケルおよび14~24重量%のクロムを含んでなる。いくつかの実施形態において、金属箔はアルミニウムである。

30

【0048】

いくつかの実施形態において、金属箔は5~72ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、金属箔は、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70および72ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、金属箔は、電気絶縁層に対する接着性を改善するために表面処理される。

【0049】

いくつかの実施形態において、第2の金属箔は5~72ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、第2の金属箔は、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70および72ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第2の金属箔は、電気絶縁層に対する接着性を改善するために表面処理される。

40

【0050】

いくつかの実施形態において、ポリイミド層は、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、ポリイミド層は、1、5、10、20、25、30、35、40、45、50および55重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、熱伝導性充填剤、誘電性充填

50

剤またはそれらの混合物は、所望の充填剤径を得るため、かつ／または形成され得る任意の凝集体を破壊するために粉碎される。

【0051】

本開示のポリイミドは、ポリイミド膜または充填ポリイミド膜の製造のための任意の既知の熱変換または化学変換方法によって製造することができる。いくつかの実施形態において、限定されないが、より低いCTEなどの熱変換より高い化学変換の利点のため、化学変換を使用することが望ましく、かつ平滑な表面にキャストされる場合でも膜が両面で無光沢である。

【0052】

いくつかの実施形態において、ポリイミド層は、金属張積層体を形成するために、ニップロール積層または真空プレスを使用して、片面または両面で金属箔に直接接着される自立膜であることができる。ニップロールまたは真空プレスは、必要とされる温度および圧力を達成することが可能でなければならない。

10

【0053】

いくつかの実施形態において、ポリアミド酸は、金属箔にキャストして、硬化することができる。このプロセスは、非常に薄い電気絶縁層（誘電層）を生じることができる。任意選択で、必要とされる温度および圧力を達成することが可能なニップロールプロセスまたは真空プレスを使用して、もう1つの金属箔をポリイミド層の反対側に接着することができる。

20

【0054】

いくつかの実施形態において、ポリイミド膜は、金属張積層体を形成するために、ニップロール積層または真空プレスを使用して、片面または両面で金属箔に直接接着される自立膜であることができる。

【0055】

いくつかの実施形態において、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドは、カバーレイとして使用される。そのような実施形態において、ポリイミドは、銅、および典型的に、回路を形成するために銅が像形成された後に露出するもう1つのポリイミド層に直接接着される。

30

【0056】

回路基板 - カバーレイ

本開示の一実施形態は、回路基板のためのポリイミドカバーレイである。そのような実施形態において、回路基板は、

a. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジンおよび10～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。いくつかの実施形態において、300～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7～2N/mmの剥離強度を有する。第1の電気絶縁層は、300～380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

40

【0057】

もう1つの実施形態において、320～380の積層温度および150psi(10

50

・ 55 kg / cm ) ~ 400 psi ( 28 . 13 kg / cm ) の圧力において、第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に積層される場合、第 1 のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ~ 2 N / mm の剥離強度を有する。第 1 の電気絶縁層は、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0058】

本開示のもう 1 つの実施形態は、回路基板のためのポリイミドカバーレイである。そのような実施形態において、回路基板は、

- a . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層、
- b . 第 1 の像形成された金属層、
- c . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジン、および 10 ~ 60 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する第 1 のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第 1 の像形成された金属層と第 1 のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320 ~ 380 の積層温度および 150 psi ( 10 . 55 kg / cm ) ~ 400 psi ( 28 . 13 kg / cm ) の圧力において、第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に積層される場合、第 1 のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ~ 2 N / mm の剥離強度を有する。第 1 の電気絶縁層は、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0059】

本開示のもう 1 つの実施形態は、回路基板のためのポリイミドカバーレイである。そのような実施形態において、回路基板は、

- a . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層、
- b . 第 1 の像形成された金属層、
- c . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 30 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 70 ~ 80 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する第 1 のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第 1 の像形成された金属層と第 1 のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320 ~ 380 の積層温度および 150 psi ( 10 . 55 kg / cm ) ~ 400 psi ( 28 . 13 kg / cm ) の圧力において、第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に積層される場合、第 1 のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ~ 2 N / mm の剥離強度を有する。第 1 の電気絶縁層は、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0060】

いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイは、100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85 および 90 モル % の任意の 2 つの両端値を含む間の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジン、ならびに 10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70 および 80 モル % の任意の 2 つの両端値を含む間の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導される。

#### 【0061】

いくつかの実施形態において、回路基板は、第 1 の電気絶縁層の第 2 の面上に第 2 の像形成された金属層をさらに含んでなる。

#### 【0062】

いくつかの実施形態において、回路基板は、100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフ

フェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイをさらに含んでなる。接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。300～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7～2N/mmの剥離強度を有する。

10

**【0063】**

いくつかの実施形態において、回路基板は、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイをさらに含んでなる。接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。

20

**【0064】**

いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85および90モル%の任意の2つの両端値を含む間の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、ならびに10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70および80モル%の任意の2つの両端値を含む間の4,4'-オキシジアニリンから誘導される。

**【0065】**

いくつかの実施形態において、カバーレイが、電子部品の望ましくない視覚検査および不正操作に対する保護を提供する光学特性を有することが望ましい。いくつかの実施形態において、望ましい(例えば、屈曲性回路における導体の痕跡を隠すため)光学密度(不透明度)は2以上である。2の光学密度によって、 $1 \times 10^{-2}$ または1%の光が膜を通して伝達されることが意図される。光学密度は、Macbeth TD904光学密度計で測定される。光学密度は、より厚いカバーレイを作成することによって増加させることができる。薄いカバーレイの傾向が増加しているため、これは望ましくない。光学密度は、充填剤を添加することによって増加させることができる。いくつかの実施形態において、光学密度を増加するために、顔料が添加される。いくつかの実施形態において、光学密度を増加させるために、艶消し剤が添加される。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤の組み合わせを添加することができる。

30

40

**【0066】**

いくつかの実施形態において、顔料は、低伝導率カーボンブラックである。いくつかの実施形態において、顔料は非カーボンブラック顔料である。

**【0067】**

実質的に任意の顔料(または顔料の組み合わせ)を使用することができる。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックが使用される。低伝導率カーボンブラックは、チャンネル型ブラックまたはファーンズブラックを意味するように意図される。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、表面酸化カーボンブラックである。(カーボンブラックの)表面酸化の範囲を評価するための1つの方法は、カーボンブラ

50

ックの加熱減量を測定することである。加熱減量は、7分間、950℃で焼した時の重量損失を算出することによって測定することができる。一般的に、高度に表面酸化されたカーボンブラック（高加熱減量）は、ポリアミド酸溶液（ポリイミド前駆体）に容易に分散されることができ、これは次に、本開示の（十分分散した）充填ポリイミドポリマーにイミド化することができる。カーボンブラック粒子（凝集体）が互いに接触しない場合、電子トンネル効果、電子ホッピングまたは他の電子の流れ機構は一般に抑制され、より低い電気伝導度をもたらされると考えられる。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、1%以上の加熱減量を有する。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、5、9または13%以上の加熱減量を有する。いくつかの実施形態において、ファーンズブラックは、加熱減量を増加させるために表面処理されてもよい。いくつかの実施形態において、骨炭が使用される。

10

**【0068】**

いくつかの実施形態で、低伝導率カーボンブラックは、ポリイミドカバーレイの2、3、4、5、6、7、8および9重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の量で存在する。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなる。いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイの両方は、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなる。

20

**【0069】**

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方は、顔料および艶消し剤を含んでなる。

**【0070】**

いくつかの実施形態において、有用な非カーボンブラック顔料には、限定されないが、バリウムレモンイエロー、カドミウムイエローレモン、カドミウムイエローレモン、カドミウムイエローライト、カドミウムイエローミドル、カドミウムイエローオレンジ、スカーレットレーキ、カドミウムレッド、カドミウムバーミリオン、アリザリンクリムゾン、パーマネントマゼンタ、ヴァンダイクブラウン、ローアンバーグリーンイッシュまたはバートアンバーが含まれる。いくつかの実施形態において、有用な黒色顔料には、酸化コバルト、Fe-Mn-Biブラック、Fe-Mnオキシドスピナルブラック、(Fe, Mn)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ブラック、亜クロム酸銅ブラックスピナル、ランプブラック、骨炭、骨灰、ボンチャー、赤鉄鉱、ブラック酸化鉄、雲母酸化鉄、ブラック錯体無機色顔料(CICP)、CuCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>ブラック、(Ni, Mn, Co)(Cr, Fe)<sub>2</sub>O<sub>4</sub>ブラック、アニリンブラック、ペリレンブラック、アントラキノブラック、クロムグリーンブラック、赤鉄鉱、クロムアイロンオキシド、ピグメントグリーン17、ピグメントブラック26、ピグメントブラック27、ピグメントブラック28、ピグメントブラウン29、ピグメントブラック30、ピグメントブラック32、ピグメントブラック33またはそれらの混合物が含まれる。

30

40

**【0071】**

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方は、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、10、20、30、40、50および60重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、10、20、30、40、50および60

50

重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。

【0072】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。

【0073】

単離した個々の粒子（凝集体）の均一な分散は、電気伝導率を減少させるのみならず、さらに均一な色強度を生じる傾向がある。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックは粉砕される。いくつかの実施形態において、低伝導率カーボンブラックの平均粒径は、0.2、0.3、0.4、0.5、0.6、0.7、0.8、0.9および1.0ミクロンの任意の2つの間（およびそれを任意選択で含む）の径である。

【0074】

いくつかの実施形態において、染料が使用されてもよい。有用な染料の例としては、限定されないが、ニグロシンブラック、モノアゾクロム錯体ブラックまたはそれらの混合物が含まれる。いくつかの実施形態において、染料および顔料の混合物が使用されてもよい。

【0075】

いくつかの実施形態において、無光沢な外観を有するカバーレイが望ましい。ポリマー材料は、典型的に固有の表面光沢を有する。光沢を制御するため（およびそれによって無光沢な表面特徴を生じるため）、曇りのある低光沢表面特徴を達成するための様々な添加剤アプローチが可能である。概括的に、添加剤アプローチは全て、（マイクロスケールで）粗く、不規則に成形され、したがって、観測者へ（例えば、50センチメートルより長い）距離まで光を反射させない変性された表面を作製するため、同一基礎物理学に基づく。複数の光線が光沢面にぶつかった時、大部分の光は同様の角度で反射し、したがって、相対的に高レベルの光の反射率を観察することができる。光の同一供給源が無光沢な（すなわち不規則な）表面にぶつかった時、光は多くの異なる方向で散乱し、そのうえ、非常により高いフラクションが吸収される。したがって、粗い表面で、光は全方向に広く散乱する傾向があり、像形成品質は大きく減少する（反射された対象はもはや鮮明に見えることなく、ぼやけている）。

【0076】

光沢レベルに関して特定の表面を特徴づけるために使用される光沢メートルは、この同一原理に基づく。典型的に、光源は固定角度で表面にぶつかり、反射後、反射光の量はフォトセルによって読み取られる。反射は、複数の角度で読み取ることができる。完全に光沢のある表面の最大光沢性能は、100%反射を実証する傾向があり、それに対して、完全に曇った表面は0%の反射を実証する傾向がある。

【0077】

シリカは、特定の粒径範囲まで粉砕およびフィルターすることができる無機粒子である。シリカ粒子は、非常に不規則な形状および多孔性、ならびに低費用であるため、一般に普及している艶消し剤である。他の可能な艶消し剤には、i. ホウ化物、窒化物、炭化物および他のオキシド（例えばアルミナ、チタニア、その他）などの他のセラミック、ならびに ii. 有機粒子が含まれるが、有機粒子は、化学変換ポリイミドの高温処理（選択される特定のポリイミドプロセス次第で約250～約550の処理温度）に耐えることができることを条件とする。ポリイミド合成の熱条件に耐えることができる1つの有機艶消し剤は、ポリイミド粒子である。いくつかの実施形態において、艶消し剤はポリイミド粒子である。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、ポリイミド粒子を含んでなる。いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、ポリイミド粒子を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイは両方ともポリイミド粒子を含んでなる。

【0078】



艶消し剤の量、中央粒径および密度は、所望の60度光沢値を生じるために十分でなければならない。いくつかの実施形態において、60度光沢値は、2、5、10、15、20、25、30および35の任意の2つの間およびそれを任意選択で含む。いくつかの実施形態において、60度光沢値は10～35である。いくつかの実施形態において、60度光沢値は2～25である。60度光沢値は、Micro-TRI Gloss光沢メートルを使用して測定される。

【0079】

いくつかの実施形態において、艶消し剤は、第1のポリイミドカバーレイまたは第2のポリイミドカバーレイの1、6、2、3、4、5、6、7、8、9および10重量パーセントの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む量で存在する。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、1、3、2、3、4、5、6、7、8、9および10ミクロンの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む中央粒径を有する。艶消し剤粒子は、約10ミクロン未満（またはそれと同等）および約1、3ミクロンより大きい（またはそれと同等）の平均粒径を有するべきである。より大きい艶消し剤粒子は、機械特性に悪影響を与え得る。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、2、3、4および4.5 g/ccの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む密度を有する。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、シリカ、アルミナ、硫酸バリウムおよびそれらの混合物からなる群から選択される。

【0080】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイに存在する。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2、5、10、15および20重量パーセントの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む量で第1のポリイミドカバーレイに存在する。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2、5、10、15および20重量パーセントの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む量で第2のポリイミドカバーレイに存在する。

【0081】

いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイの顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイに存在し、かつ低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第2のポリイミドカバーレイに存在する。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイに存在する。いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方に存在する。

【0082】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。

【0083】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレ

イは、顔料および艶消し剤を含んでなる。もう1つの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイの顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で存在する。

【0084】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0085】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。そのような実施形態において、回路基板は、

a. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層、  
b. 第1の像形成された金属層、  
c. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。380～400の積層温度および150psi(10.55kg/cm)  
20  
～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有し、かつ第1の電気絶縁層は、380～400の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

【0086】

いくつかの実施形態において、回路基板は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される第2のポリイミドカバーレイをさらに含んでなる。そのような実施形態において、回路基板は、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ、

b. 第2の像形成された金属層、  
c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層、  
d. 第1の像形成された金属層、  
e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。

【0087】

接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在せず、かつ接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。380～400の積層温度および150psi(10.55kg/cm)  
40  
～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、ポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有し、かつ第1の電気絶縁層は、380～400

10

20

30

40

50

の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

【0088】

電気絶縁層 - 回路基板カバーレイ

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、300～400、いくつかの実施形態において300～380、または他の実施形態において320～380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層はポリイミドから誘導される。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は芳香族ポリイミドから誘導される。

【0089】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される。

10

【0090】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

【0091】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

20

【0092】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

【0093】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85および90モル%の任意の2つの両端値を含む間の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、ならびに10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70および80モル%の任意の2つの両端値を含む間の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される。

30

【0094】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。

【0095】

像形成された金属層 - 回路基板カバーレイ

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された層または両方が銅である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層はアルミニウムである。

40

【0096】

いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層はアルミニウムである。

【0097】

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層および第2の像形成された金属層は両方とも元素金属である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属

50

層および第 2 の像形成された金属層は両方とも金属合金である。いくつかの実施形態において、第 1 の像形成された金属層および第 2 の像形成された金属層は両方とも銅である。

【0098】

いくつかの実施形態において、金属合金は、50～72重量%のニッケルを含んでなる。もう1つの実施形態において、金属合金は、50～72重量%のニッケルおよび14～24重量%のクロムを含んでなる。いくつかの実施形態において、金属箔はアルミニウムである。

【0099】

いくつかの実施形態において、第 1 の像形成された金属層は、5～72ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、第 1 の像形成された金属層は、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70および72ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第 1 の像形成された金属層は、電気絶縁層に対する接着性を改善するために表面処理される。

10

【0100】

いくつかの実施形態において、第 2 の像形成された金属層は、5～72ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、第 2 の像形成された金属層は、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70および72ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第 2 の像形成された金属層は、電気絶縁層に対する接着性を改善するために表面処理される。

【0101】

いくつかの実施形態において、第 1 の像形成された金属層および第 2 の像形成された金属層は、フレキシブルプリント回路基板産業における標準手順を使用して、フォトレジストで金属箔/金属層を像形成して、銅エッチングし、異なる幅の線を有する像形成された金属層を作成することによって製造される。

20

【0102】

いくつかの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、第 1 の像形成された金属層は銅であり、かつ第 1 のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックまたは10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。

30

【0103】

もう1つの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、第 1 の像形成された金属層は銅であり、かつ第 1 のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなり、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第 1 のポリイミドカバーレイで存在する。

【0104】

もう1つの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、第 1 の像形成された金属層は銅であり、かつ第 1 のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなり、艶消し剤はポリイミド粒子である。

40

【0105】

いくつかの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ第 1 の像形成された金属層、第 2 の像形成された金属層または両方が銅である。

【0106】

いくつかの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、第 1 の電気絶縁層は、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ第 1 の像形成された金属層は銅である。いくつかの

50

実施形態において、第1の電気絶縁層は、1、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50および55重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、1、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50および55重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ第1の像形成された金属層は銅である。

#### 【0107】

本開示のいくつかの実施形態において、回路基板は、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ(接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。300 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 dに従って測定した場合、0 . 7 ~ 2 N / m mの剥離強度を有する)、

b. 第2の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層、

d. 第1の像形成された金属層、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。300 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 dに従って測定した場合、0 . 7 ~ 2 N / m mの剥離強度を有する。第1の電気絶縁層は、300 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0108】

本開示のいくつかの実施形態において、回路基板は、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ(接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。300 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 dに従って測定した場合、0 . 7 ~ 2 N / m mの剥離強度を有する)、

b. 第2の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるか、または100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル

）ベンジジンから誘導される）、

d．第1の像形成された金属層、

e．100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。300～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)<sup>2</sup>～400psi(28.13kg/cm)<sup>2</sup>の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7～2N/mmの剥離強度を有する。第1の電気絶縁層は、300～380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

10

#### 【0109】

本開示のいくつかの実施形態において、回路基板は、

a．100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ（接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)<sup>2</sup>～400psi(28.13kg/cm)<sup>2</sup>の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する）、

20

b．第2の像形成された金属層、

c．第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層、

d．第1の像形成された金属層、

e．100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)<sup>2</sup>～400psi(28.13kg/cm)<sup>2</sup>の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1の電気絶縁層は、320～380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

30

#### 【0110】

本開示のいくつかの実施形態において、回路基板は、

a．100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する第2のポリイミドカバーレイ（接着層は、第2の像形成された金属層と第2のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)<sup>2</sup>～400psi(28.13kg/cm)<sup>2</sup>の圧力において、第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層される場合、第2のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定し

40

50

た場合、 $1 \sim 2 \text{ N/mm}$ の剥離強度を有する)、

b. 第2の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるか、または100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、100モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される)、

d. 第1の像形成された金属層、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する第1のポリイミドカバーレイを含んでなる。接着層は、第1の像形成された金属層と第1のポリイミドカバーレイとの間に存在しない。320~380の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に積層される場合、第1のポリイミドカバーレイは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、 $1 \sim 2 \text{ N/mm}$ の剥離強度を有する。第1の電気絶縁層は、320~380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

10

20

#### 【0111】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイは、各々独立して、5~152ミクロンの厚さを有する。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、5、10、20、30、40、50、60、70、80、90、100、105、110、120、130、140および152ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイは、5、10、20、30、40、50、60、70、80、90、100、105、110、120、130、140および152ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイは、各々独立して、5~105ミクロンの厚さを有する。なおもう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイは、各々独立して、10~40ミクロンの厚さを有する。

30

#### 【0112】

本開示のポリイミドカバーレイは、充填ポリイミドの製造のための任意の既知の熱変換または化学変換方法によって製造することができる。いくつかの実施形態において、限定されないが、より低いCTEなどの熱変換より高い化学変換の利点のため、化学変換を使用することが望ましく、かつ平滑な表面にキャストされる場合でも膜が両面で無光沢である。

#### 【0113】

いくつかの実施形態において、回路基板は、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触するように、320~380の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において、片面クラッド(電気絶縁層および像形成された金属層)に第1のポリイミドカバーレイを積層することによって製造される。

40

#### 【0114】

いくつかの実施形態において、回路基板は、第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に積層されるように、320~380の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm)の圧力において

50

、両面クラッド（第１の像形成された金属層、第１の電気絶縁層および第２の像形成された金属層）に第１のポリイミドカバーレイおよび第２のポリイミドカバーレイを積層することによって製造される。

【０１１５】

いくつかの実施形態において、真空プラテンプレスが使用される。

【０１１６】

回路基板 - ポリイミドボンドブライ

本開示の一実施形態は、回路基板用ポリイミドボンドブライである。そのような実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

- a. 第１の像形成された金属層、
- b. 第１の面と、第２の面とを有する第１の電気絶縁層（第１の電気絶縁層の第１の面は、第１の像形成された金属層に接する）、
- c. 第２の像形成された金属層（第１の電気絶縁層の第２の面は、第２の像形成された金属層に接する）、

d. １００モル％の３，３'，４，４' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、２０～９０モル％の２，２' - ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび１０～８０モル％の４，４' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドブライ、

- e. 第３の像形成された金属層、
- f. 第１の面と、第２の面とを有する第２の電気絶縁層（第２の電気絶縁層の第１の面は、第３の像形成された金属層に接する）、

g. 第４の像形成された金属層（第２の電気絶縁層の第２の面は、第４の像形成された金属層に接する）

を含んでなる。ポリイミドボンドブライは、第２の像形成された金属層および第１の電気絶縁層の第２の面の露出した領域に直接接触し、かつ第３の像形成された金属層および第２の電気絶縁層の第１の面の露出した領域に直接接触する。いくつかの実施形態において、３００～３８０ の積層温度および１５０ p s i ( １ ０ . ５ ５ k g / c m ) ~ ４ ０ ０ p s i ( ２ ８ . １ ３ k g / c m ) の圧力において、

i) 第１の像形成された金属層、第１の電気絶縁層および第２の像形成された金属層、ならびに

i i) ポリイミドボンドブライ、

i i i) 第３の像形成された金属層、第２の電気絶縁層および第４の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドブライは、I P C - T M - ６ ５ ０ - ２ . ４ . ９ d に従って測定した場合、０ . ７ ~ ２ N / m m の剥離強度を有する。第１の電気絶縁層および第２の電気絶縁層は、３００～３８０ の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

【０１１７】

本開示のもう１つの実施形態は、回路基板用ポリイミドボンドブライである。そのような実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

- a. 第１の像形成された金属層、
- b. 第１の面と、第２の面とを有する第１の電気絶縁層（第１の電気絶縁層の第１の面は、第１の像形成された金属層に接する）、
- c. 第２の像形成された金属層（第１の電気絶縁層の第２の面は、第２の像形成された金属層に接する）、

d. １００モル％の３，３'，４，４' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、４０～９０モル％の２，２' - ビス（トリフルオロメチル）ベンジジンおよび１０～６０モル％の４，４' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドブライ、

- e. 第３の像形成された金属層、
- f. 第１の面と、第２の面とを有する第２の電気絶縁層（第２の電気絶縁層の第１の面は、第３の像形成された金属層に接する）、



g. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320~380 の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、ならびに

ii) ポリイミドボンドライ、

iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~2N/mmの剥離強度を有する。第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320~380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0118】

いくつかの実施形態において、ポリイミドボンドライは、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85および90モル%の任意の2つの両端値を含む間の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、ならびに10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70および80モル%の任意の2つの両端値を含む間の4,4'-オキシジアニリンから誘導される。

#### 【0119】

いくつかの実施形態において、ポリイミドボンドライは、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、ポリイミドボンドライは、1、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50および55重量パーセントの任意の2つの両端値を含む間の熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。

#### 【0120】

もう1つの実施形態において、ポリイミドボンドライは、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ380~400 の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において積層することができる。

#### 【0121】

電気絶縁層 - 回路基板ボンドライ

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、300~380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層はポリイミドから誘導される。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は芳香族ポリイミドから誘導される。

#### 【0122】

いくつかの実施形態において、第2の電気絶縁層は、300~380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。いくつかの実施形態において、第2の電気絶縁層はポリイミドから誘導される。いくつかの実施形態において、第2の電気絶縁層は芳香族ポリイミドから誘導される。

#### 【0123】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320~380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【0124】

10

20

30

40

50

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される。

【0125】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

【0126】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

10

【0127】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 30モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導される。

【0128】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20、30、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85および90モル%の任意の2つの両端値を含む間の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、ならびに10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、70および80モル%の任意の2つの両端値を含む間の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される。

20

【0129】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層およびポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する。

【0130】

いくつかの実施形態において、第2の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第4の像形成された金属層、第3の像形成された金属層およびポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する。

30

【0131】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層およびポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触し、かつ第2の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 80モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第4の像形成された金属層、第3の像形成された金属層およびポリイミドボンダライの露出した領域に直接接触する。

40

【0132】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層およびポリイミドボ

50

ンドブライの露出した領域に直接接触し、かつ第2の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導され、かつ第4の像形成された金属層、第3の像形成された金属層およびポリイミドボンダブライの露出した領域に直接接触する。

【0133】

もう1つの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ380~400 の積層温度および150 p s i ( 1 0 . 5 5 k g / c m ) ~ 4 0 0 p s i ( 2 8 . 1 3 k g / c m ) の圧力において積層することができる。

10

【0134】

もう1つの実施形態において、第2の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ380~400 の積層温度および150 p s i ( 1 0 . 5 5 k g / c m ) ~ 4 0 0 p s i ( 2 8 . 1 3 k g / c m ) の圧力において積層することができる。

【0135】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層およびポリイミドボンダブライの露出した領域に直接接触し、かつ第2の電気絶縁層は、100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物および100モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンから誘導され、かつ第4の像形成された金属層、第3の像形成された金属層およびポリイミドボンダブライの露出した領域に直接接触する。

20

【0136】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層は、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、第2の電気絶縁層は、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層、第2の電気絶縁層または両方が、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。

30

【0137】

いくつかの実施形態において、第1の電気絶縁層、第2の電気絶縁層または両方が、1~55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなる。

【0138】

像形成された金属層 - 回路基板ボンダブライ

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層はアルミニウムである。

40

【0139】

いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第2の像形成された金属層はアルミニウムである。

【0140】

いくつかの実施形態において、第3の像形成された金属層は元素金属である。いくつか

50

の実施形態において、第3の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第3の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第3の像形成された金属層はアルミニウムである。

【0141】

いくつかの実施形態において、第4の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第4の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第4の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第4の像形成された金属層はアルミニウムである。

【0142】

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は元素金属である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は金属合金である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は銅である。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層はアルミニウムである。

10

【0143】

いくつかの実施形態において、金属合金は50～72重量%のニッケルを含んでなる。もう1つの実施形態において、金属合金は、50～72重量%のニッケルおよび14～24重量%のクロムを含んでなる。

20

【0144】

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は、独立して5～72ミクロンの厚さである。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は、独立して、5、10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70および72ミクロンの任意の2つの両端値を含む間の厚さである。いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は、独立して、電気絶縁層に対する接着性を改善するために表面処理される。

30

【0145】

いくつかの実施形態において、第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は、フレキシブルプリント回路基板産業における標準手順を使用して、フォトレジストで金属箔/金属層を像形成して、銅エッチングし、異なる幅の線を有する像形成された金属層を作成することによって製造される。

【0146】

いくつかの実施形態において、ポリイミドボンドライは、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ第1の電気絶縁層、第2の電気絶縁層または両方が、1～55重量パーセントの熱伝導性充填剤、誘電性充填剤またはそれらの混合物を含んでなり、かつ第1の像形成された金属層、第2の像形成された金属層、第3の像形成された金属層および第4の像形成された金属層は銅である。

40

【0147】

いくつかの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 第1の像形成された金属層、

b. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチ

50

ル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

c.第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

d.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

e.第3の像形成された金属層、

f.第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)

g.第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。300～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i)第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、ならびに

ii)ポリイミドボンドライ、

iii)第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7～2N/mmの剥離強度を有する。

#### 【0148】

いくつかの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a.第1の像形成された金属層、

b.第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)

c.第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

d.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

e.第3の像形成された金属層、

f.第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)

g.第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第

2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i)第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、ならびに

ii)ポリイミドボンドライ、

iii)第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。

10

#### 【0149】

いくつかの実施形態において、回路基板は、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域および第1のカバーレイの間に存在し、それらに直接接触する接着剤と、第1のカバーレイとをさらに含んでなる。いくつかの実施形態において、回路基板は、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域および第2のカバーレイの間に存在し、それらに直接接触する第2の接着剤と、第2のカバーレイとをさらに含んでなる。

#### 【0150】

いくつかの実施形態において、回路基板は、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域および第1のカバーレイの間に存在し、それらに直接接触する接着剤と、第1のカバーレイと、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域および第2のカバーレイの間に存在し、それらに直接接触する第2の接着剤と、第2のカバーレイとをさらに含んでなる。

20

#### 【0151】

一実施形態において、接着剤および第2の接着剤は、カバーレイが回路基板の形成後に追加される場合に、像形成された金属層にカバーレイを接着するために使用される任意の従来の接着剤であることができる。回路基板は、多くの像形成された金属層および電気絶縁層を有することができる。いくつかの実施形態において、電気絶縁層によって分離された2つの像形成された金属層を、クラッドまたは金属クラッドと記載することができる。多くのこれらのクラッドは、本開示のポリイミドボンドライによって互いに接着することができる。

30

#### 【0152】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接する)、

d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

40

e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接する)、

h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20

50

～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 80 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第 2 のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンダライは、第 2 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 3 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する。300 ～ 380 の積層温度および 150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ～ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

i ) 第 1 の像形成された金属層、第 1 の電気絶縁層および第 2 の像形成された金属層、

i i ) ポリイミドボンダライ、

i i i ) 第 3 の像形成された金属層、第 2 の電気絶縁層および第 4 の像形成された金属層

10

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、I P C - T M - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、0 . 7 ～ 2 N / m m の剥離強度を有する。第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 2 のポリイミドカバーレイが、第 4 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 1 の電気絶縁層および第 2 の電気絶縁層は、300 ～ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

#### 【 0 1 5 3 】

もう 1 つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

20

a . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第 1 のポリイミドカバーレイ、

b . 第 1 の像形成された金属層、

c . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層 ( 第 1 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 1 の像形成された金属層に接する )、

d . 第 2 の像形成された金属層 ( 第 1 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 2 の像形成された金属層に接する )、

e . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、

30

f . 第 3 の像形成された金属層、

g . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 2 の電気絶縁層 ( 第 2 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 3 の像形成された金属層に接する )、

h . 第 4 の像形成された金属層 ( 第 2 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 4 の像形成された金属層に接する )、

i . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第 2 のポリイミドカバーレイ

40

を含んでなる。ポリイミドボンダライは、第 2 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 3 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する。320 ～ 380 の積層温度および 150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ～ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

i ) 第 1 の像形成された金属層、第 1 の電気絶縁層および第 2 の像形成された金属層、

i i ) ポリイミドボンダライ、

i i i ) 第 3 の像形成された金属層、第 2 の電気絶縁層および第 4 の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、I P C - T M - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ～ 2 N / m m の剥離強度を有する。

50

## 【 0 1 5 4 】

第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 2 のポリイミドカバーレイが、第 4 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 1 の電気絶縁層および第 2 の電気絶縁層は、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。

## 【 0 1 5 5 】

もう 1 つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 60 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導される第 1 のポリイミドカバーレイ、

b . 第 1 の像形成された銅層、

c . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層 (第 1 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 1 の像形成された銅層に接する)、

d . 第 2 の像形成された銅層 (第 1 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 2 の像形成された銅層に接する)、

e . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 60 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f . 第 3 の像形成された銅層、

g . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 2 の電気絶縁層 (第 2 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 3 の像形成された銅層に接する)、

h . 第 4 の像形成された銅層 (第 2 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 4 の像形成された銅層に接する)、

i . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 60 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導される、第 2 のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第 2 の像形成された銅層および第 1 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 3 の像形成された銅層および第 2 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する。

## 【 0 1 5 6 】

もう 1 つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 80 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導される第 1 のポリイミドカバーレイ、

b . 第 1 の像形成された金属層、

c . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層 (第 1 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 1 の像形成された金属層に接し、かつ 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 80 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導される)

d . 第 2 の像形成された金属層 (第 1 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 2 の像形成された金属層に接する)、

e . 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ~ 80 モル % の 4 , 4 ' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f . 第 3 の像形成された金属層、

g . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 2 の電気絶縁層 (第 2 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 3 の像形成された金属層に接し、かつ 100 モル % の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20 ~ 90 モル % の 2 , 2 ' - ビス (トリフルオロメチ



ル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

h.第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンダライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。300～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i)第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

ii)ポリイミドボンダライ、

iii)第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7～2N/mmの剥離強度を有する。

#### 【0157】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b.第1の像形成された金属層、

c.第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)

d.第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

e.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、

f.第3の像形成された金属層、

g.第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)

h.第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i.100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンダライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

10

20

30

40

50

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、
- ii) ポリイミドボンダライ、
- iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~2N/mmの剥離強度を有する。

#### 【0158】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

- a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

- b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される)

d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

- e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、

- f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される)

h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

- i. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~30モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび70~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンダライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。300~380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

- ii) ポリイミドボンダライ、

iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7~2N/mmの剥離強度を有する。

#### 【0159】

いくつかの実施形態において、無光沢な外観を有するカバーレイが望ましい。ポリマー材料は、典型的に固有の表面光沢を有する。光沢を制御するため(およびそれによって無光沢な表面特徴を生じるため)、曇りのある低光沢表面特徴を達成するための様々な添加剤アプローチが可能である。

#### 【0160】

10

20

30

40

50

シリカは、特定の粒径範囲まで粉砕およびフィルターすることができる無機粒子である。シリカ粒子は、非常に不規則な形状および多孔性、ならびに低費用であるため、一般に普及している艶消し剤である。他の可能な艶消し剤には、i . ホウ化物、窒化物、炭化物および他のオキシド（例えばアルミナ、チタニア、その他）などの他のセラミック、ならびに i i . 有機粒子が含まれる。いくつかの実施形態において、カバーレイがポリイミドカバーレイである場合、有機粒子は、化学変換ポリイミドの高温処理（選択される特定のポリイミドプロセス次第で約 2 5 0 ~ 約 5 5 0 の処理温度）に耐えなければならない。ポリイミド合成の熱条件に耐えることができる 1 つの有機艶消し剤は、ポリイミド粒子である。いくつかの実施形態において、艶消し剤はポリイミド粒子である。いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイは、ポリイミド粒子を含んでなる。いくつかの実施形態において、第 2 のポリイミドカバーレイは、ポリイミド粒子を含んでなる。いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイおよび第 2 のポリイミドカバーレイは両方ともポリイミド粒子を含んでなる。

10

**【0161】**

艶消し剤の量、中央粒径および密度は、所望の 6 0 度光沢値を生じるために十分でなければならない。いくつかの実施形態において、6 0 度光沢値は、2、5、1 0、1 5、2 0、2 5、3 0 および 3 5 の任意の 2 つの両端値を任意選択で含む間である。いくつかの実施形態において、6 0 度光沢値は 1 0 ~ 3 5 である。いくつかの実施形態において、6 0 度光沢値は 2 ~ 2 5 である。6 0 度光沢値は、Micro - T R I Gloss 光沢メートルを使用して測定される。

20

**【0162】**

いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイおよび第 2 のポリイミドカバーレイは、独立して、ポリイミドカバーレイの 1、6、2、3、4、5、6、7、8、9 および 1 0 重量パーセントの任意の 2 つの両端値を含む間の量で存在する艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、1、3、2、3、4、5、6、7、8、9 および 1 0 ミクロンの任意の 2 つの両端値を含む間の中央粒径を有する。艶消し剤粒子は、約 1 0 ミクロン未満（またはそれと同等）および約 1、3 ミクロンより大きい（またはそれと同等）の平均粒径を有するべきである。より大きい艶消し剤粒子は、機械特性に悪影響を与え得る。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、2、3、4 および 4、5 g / c c の任意の 2 つの間およびそれを任意選択で含む密度を有する。いくつかの実施形態において、艶消し剤は、シリカ、アルミナ、硫酸バリウムおよびそれらの混合物からなる群から選択される。

30

**【0163】**

いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイは顔料および艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、第 2 のポリイミドカバーレイは顔料および艶消し剤を含んでなる。いくつかの実施形態において、第 1 のポリイミドカバーレイ、第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方が顔料および艶消し剤を含んでなる。

**【0164】**

いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2 ~ 2 0 重量パーセントの量で第 1 のポリイミドカバーレイに存在する。

40

**【0165】**

いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2、5、1 0、1 5 および 2 0 重量パーセントの任意の 2 つの間およびそれを任意選択で含む量で第 1 のポリイミドカバーレイに存在する。

**【0166】**

いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2、5、1 0、1 5 および 2 0 重量パーセントの任意の 2 つの間およびそれを任意選択で含む量で第

50

2 のポリイミドカバーレイに存在する。

【0167】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイおよび第2のポリイミドカバーレイの顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイに存在し、かつ低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第2のポリイミドカバーレイに存在する。

【0168】

いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方に存在する。

10

【0169】

もう1つの実施形態において、艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0170】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも、低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる。

【0171】

いくつかの実施形態において、顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつそのような実施形態において、低伝導率カーボンブラックは、2、5、10、15および20重量パーセントの任意の2つの間およびそれを任意選択で含む量で第1のポリイミドカバーレイに存在する。

20

【0172】

いくつかの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、10～60重量パーセントの量で存在する非カーボンブラック顔料を含んでなる。

【0173】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなる。もう1つの実施形態において、第2のポリイミドカバーレイの顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、カーボンブラックは、2～20重量パーセントの量で存在する。

30

【0174】

もう1つの実施形態において、第1のポリイミドカバーレイは、2～9重量パーセントの量で存在する低伝導率カーボンブラックを含んでなり、かつ第2のポリイミドカバーレイは、顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0175】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

40

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接する)、

d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドブライ、

f. 第3の像形成された金属層、

50

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接する）、

h. 第4の像形成された金属層（第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する）、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンドブライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

10

i ) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

i i ) ポリイミドボンドブライ、

i i i ) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドブライは、I P C - T M - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ~ 2 N / m m の剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320 ~ 380 の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも、顔料および艶消し剤を含んでなる。

20

#### 【0176】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

30

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層（第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接する）、

d. 第2の像形成された金属層（第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する）、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドブライ、

f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接する）、

40

h. 第4の像形成された金属層（第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する）、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドブライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

50

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、
- ii) ポリイミドボンダライ、
- iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320~380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも、低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる。

10

#### 【0177】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

- a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、
- b. 第1の像形成された金属層、
- c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接する)、
- d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、
- e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、
- f. 第3の像形成された金属層、
- g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接する)、
- h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

20

30

i. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンダライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320~380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)~400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、
- ii) ポリイミドボンダライ、
- iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

40

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1~2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320~380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラック

50

であり、かつ低伝導率カーボンブラックは、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方に2～20重量パーセントの量で存在する。

【0178】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接する)、

d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接する)、

h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

ii) ポリイミドボンドライ、

iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第1の電気絶縁層および第2の電気絶縁層は、320～380の積層温度に耐えることができる任意の電気絶縁材料である。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0179】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される)

、

d．第2の像形成された金属層（第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する）、

e．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f．第3の像形成された金属層、

g．第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される）

10

、

h．第4の像形成された金属層（第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する）、

i．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320 ~ 380 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm) の圧力において、

20

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

ii) ポリイミドボンドライ、

iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC - TM - 650 - 2.4.9dに従って測定した場合、1 ~ 2 N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなる。

30

#### 【0180】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b．第1の像形成された金属層、

c．第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層（第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される）

40

、

d．第2の像形成された金属層（第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する）、

e．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f．第3の像形成された金属層、

g．第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面

50



は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)、

h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンダブライは、第2の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、

ii) ポリイミドボンダブライ、

iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダブライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる。

#### 【0181】

もう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された金属層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)

d. 第2の像形成された金属層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された金属層に接する)、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダブライ、

f. 第3の像形成された金属層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された金属層に接し、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)

h. 第4の像形成された金属層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された金属層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40

～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第 2 のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンダライは、第 2 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 3 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する。320 ～ 380 の積層温度および 150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ～ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

i ) 第 1 の像形成された金属層、第 1 の電気絶縁層および第 2 の像形成された金属層、

i i ) ポリイミドボンダライ、

i i i ) 第 3 の像形成された金属層、第 2 の電気絶縁層および第 4 の像形成された金属層

10

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、I P C - T M - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ～ 2 N / m m の剥離強度を有する。第 1 のポリイミドカバーレイが、第 1 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 2 のポリイミドカバーレイが、第 4 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触する。第 1 のポリイミドカバーレイ、第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ低伝導率カーボンブラックは、第 1 のポリイミドカバーレイ、第 2 のポリイミドカバーレイまたは両方に 2 ～ 20 重量パーセントの量で存在する。

20

#### 【 0182 】

もう 1 つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第 1 のポリイミドカバーレイ、

b . 第 1 の像形成された金属層、

c . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 1 の電気絶縁層 ( 第 1 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 1 の像形成された金属層に接し、かつ 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される )

30

d . 第 2 の像形成された金属層 ( 第 1 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 2 の像形成された金属層に接する ) 、

e . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、

f . 第 3 の像形成された金属層、

g . 第 1 の面と、第 2 の面とを有する第 2 の電気絶縁層 ( 第 2 の電気絶縁層の第 1 の面は、第 3 の像形成された金属層に接し、かつ 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される )

40

h . 第 4 の像形成された金属層 ( 第 2 の電気絶縁層の第 2 の面は、第 4 の像形成された金属層に接する ) 、

i . 100 モル % の 3, 3' , 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ～ 90 モル % の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジンおよび 10 ～ 60 モル % の 4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第 2 のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンダライは、第 2 の像形成された金属層および第 1 の電気絶縁層の第 2 の面の露出した領域に直接接触し、かつ第 3 の像形成された金属層および第 2 の電気絶縁層の第 1 の面の露出した領域に直接接触する。320 ～ 380 の積層温度

50

および  $150 \text{ psi} (10.55 \text{ kg/cm}) \sim 400 \text{ psi} (28.13 \text{ kg/cm})$  の圧力において、

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層、
- ii) ポリイミドボンダライ、
- iii) 第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層

が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、 $1 \sim 2 \text{ N/mm}$ の剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された金属層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された金属層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

#### 【0183】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

- a.  $100 \text{ mol\%}$ の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、 $40 \sim 90 \text{ mol\%}$ の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび $10 \sim 60 \text{ mol\%}$ の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

- b. 第1の像形成された銅層、

- c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層に接する)、

- d. 第2の像形成された銅層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する)、

- e.  $100 \text{ mol\%}$ の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、 $40 \sim 90 \text{ mol\%}$ の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび $10 \sim 60 \text{ mol\%}$ の4, 4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダライ、

- f. 第3の像形成された銅層、

- g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層に接する)、

- h. 第4の像形成された銅層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する)、

- i.  $100 \text{ mol\%}$ の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、 $40 \sim 90 \text{ mol\%}$ の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび $10 \sim 60 \text{ mol\%}$ の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンダライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。 $320 \sim 380$  の積層温度および  $150 \text{ psi} (10.55 \text{ kg/cm}) \sim 400 \text{ psi} (28.13 \text{ kg/cm})$  の圧力において、

- i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

- ii) ポリイミドボンダライ、

iii) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンダライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、 $1 \sim 2 \text{ N/mm}$ の剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなる。

#### 【0184】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

10

20

30

40

50

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された銅層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層に接する、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)、

d. 第2の像形成された銅層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する)、

e. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f. 第3の像形成された銅層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)、

h. 第4の像形成された銅層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320 ~ 380 の積層温度および150 p s i ( 10 . 55 k g / c m ) ~ 400 p s i ( 28 . 13 k g / c m ) の圧力において、

i ) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

i i ) ポリイミドボンドライ、

i i i ) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC - TM - 650 - 2 . 4 . 9 d に従って測定した場合、1 ~ 2 N / mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなる。

【0185】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された銅層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40 ~ 90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10 ~ 60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される)、

10

20

30

40

50

d．第2の像形成された銅層（第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する）、

e．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f．第3の像形成された銅層、

g．第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される）、

h．第4の像形成された銅層（第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する）、

i．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

ii) ポリイミドボンドライ、

iii) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

#### 【0186】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b．第1の像形成された銅層、

c．第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層（第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導される）、

d．第2の像形成された銅層（第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する）、

e．100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4, 4' - オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f．第3の像形成された銅層、

g．第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層（第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3, 3', 4, 4' - ビフ

ェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

h. 第4の像形成された銅層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する)、

i. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンダブライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

ii) ポリイミドボンダブライ、

iii) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンダブライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなる。

#### 【0187】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された銅層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

d. 第2の像形成された銅層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する)、

e. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンダブライ、

f. 第3の像形成された銅層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

h. 第4の像形成された銅層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する)、

i. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、40～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～60モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイ

を含んでなる。ポリイミドボンドライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。320～380の積層温度および150psi(10.55kg/cm)～400psi(28.13kg/cm)の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

ii) ポリイミドボンドライ、

iii) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンドライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、1～2N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ顔料および艶消し剤は両方とも低伝導率カーボンブラックであり、かつ低伝導率カーボンブラックは、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方に2～20重量パーセントの量で存在する。

【0188】

上記実施形態のいずれによる回路基板も、第1のポリイミドカバーレイ、第1の電気絶縁層、ポリイミドボンドライ、第2の電気絶縁層および第2のポリイミドカバーレイは、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される。

【0189】

上記実施形態のいずれによる回路基板も、第1のポリイミドカバーレイ、ポリイミドボンドライおよび第2のポリイミドカバーレイは、100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される。

【0190】

なおもう1つの実施形態において、回路基板は、以下の順序で、

a. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される第1のポリイミドカバーレイ、

b. 第1の像形成された銅層、

c. 第1の面と、第2の面とを有する第1の電気絶縁層(第1の電気絶縁層の第1の面は、第1の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される)、

d. 第2の像形成された銅層(第1の電気絶縁層の第2の面は、第2の像形成された銅層に接する)、

e. 100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導されるポリイミドボンドライ、

f. 第3の像形成された銅層、

g. 第1の面と、第2の面とを有する第2の電気絶縁層(第2の電気絶縁層の第1の面は、第3の像形成された銅層の次であり、かつ100モル%の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20～90モル%の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10～80モル%の4,4'-オキシジアニリンから誘導される

)、

h. 第4の像形成された銅層(第2の電気絶縁層の第2の面は、第4の像形成された銅層に接する)、

i. 100モル%の3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、20~90モル%の2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジンおよび10~80モル%の4, 4'-オキシジアニリンから誘導される、第2のポリイミドカバーレイを含んでなる。ポリイミドボンドブライは、第2の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触し、かつ第3の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触する。300~380 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm) の圧力において、

i) 第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された銅層、

ii) ポリイミドボンドブライ、

iii) 第3の像形成された銅層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された銅層が積層される場合、ポリイミドボンドブライは、IPC-TM-650-2.4.9dに従って測定した場合、0.7~2 N/mmの剥離強度を有する。第1のポリイミドカバーレイが、第1の像形成された銅層および第1の電気絶縁層の第1の面の露出した領域に直接接触し、かつ第2のポリイミドカバーレイが、第4の像形成された銅層および第2の電気絶縁層の第2の面の露出した領域に直接接触する。第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも顔料および艶消し剤を含んでなり、かつ艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0191】

上記実施形態のいずれによる回路基板も、第1のポリイミドカバーレイ、第2のポリイミドカバーレイまたは両方とも低伝導率カーボンブラックおよび艶消し剤を含んでなり、艶消し剤はポリイミド粒子である。

【0192】

いくつかの実施形態において、回路基板は、真空ブラテンプレスを使用して、320~380 の積層温度および150 psi (10.55 kg/cm) ~ 400 psi (28.13 kg/cm) の圧力において、第1のポリイミドカバーレイ(存在する場合)、両面クラッド(第1の像形成された金属層、第1の電気絶縁層および第2の像形成された金属層)、ボンドブライ、第2の両面クラッド(第3の像形成された金属層、第2の電気絶縁層および第4の像形成された金属層)および第2のポリイミドカバーレイ(存在する場合)を積層することによって製造される。

【実施例】

【0193】

本明細書の材料、方法および実施例は単なる実例であり、特に明示された場合を除いて、限定するように意図されない。

【0194】

本発明のポリイミド膜のガラス転移温度は、TAインストルメント2980動的機械分析器を使用して決定した。Tg測定法は、約1.0 Hzのサンプリング周波数(約10.0 mの振幅)および約0.01 Nの予負荷力を使用した。5 分<sup>-1</sup>の温度傾斜率を使用した。

【0195】

Tgはタンジェント のピーク時に測定した。

【0196】

引張係数は、ASTM D-882によって決定した。

【0197】

引張強さは、ASTM D-882によって決定した。

【0198】

伸長率は、ASTM D-882によって決定した。



## 【0199】

比誘電率は、ASTM D150、「Standard Test Methods for AC Loss Characteristics and Permittivity (Dielectric Constant) of Solid Electrical Insulation」に記載されるように測定した。複合膜比誘電率は、直径2.5cmの蓄電器の測定された静電容量に基づいて算出した。

## 【0200】

本発明のポリイミド膜の平面CTEは、TAインストルメントTMA 2940熱的機械分析器を使用して測定した。膜の膨張は、2回目の通過時の約50 ~ 約250 で測定した。次いで、膨張を温度差（および試料長さ）で割って、ppm<sup>-1</sup>のCTEを得た。1回目の通過は、同一温度範囲にいて試料から収縮を除去するため、ならびに試料を乾燥させるために使用された。そのように、2回目の通過は、次いで、膜の固有の特性（例えば、水の吸着および水が膜のCTEに及ぼす影響のない）のCTE値特徴を提供した。この方法は0.05N負荷力を使用して、1分あたりの約10 の率で温度に傾斜与える上記温度範囲内で操作された。

10

## 【0201】

水分吸着は、IPC-TM-650、方法2.6.2によって決定された。

## 【0202】

本出願で報告される剥離強度データは8 ~ 12回の測定の平均であり、IPC-TM650 2.4.8 d試験方法によると統計学的に有効なデータの必要条件と調和した。剥離強度試験のための銅箔は、Somers Corporationから入手可能なピンク処理された厚さ35umのロールアニールド(RA)銅箔であった。

20

## 【0203】

## 実施例1

## BPDA//TFMB

実施例1は、100モル%のBPDAおよび100モル%のTFMBから誘導されるポリイミドが、380 以上の温度で積層された場合、少なくとも1N/mmの剥離強度を有することを示す。

## 【0204】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、21.472g(0.067モル)の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)および159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、19.528g(0.066モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

30

## 【0205】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR(登録商標)膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液(および担体シート)を、1:1比の無水酢酸および-ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

40

## 【0206】

次いで、強制的空気オープンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。ポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析

50

した。データを表 1 に示す。

【0207】

350 psi で真空ブラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

【0208】

実施例 2 ~ 12 は、100 モル%のBPDA、20 ~ 90 モル%のTFMB および 10 ~ 80 モル%の 4,4'-ODA から誘導されるポリイミドが、330 以上の温度で積層された場合、少なくとも 1 N/mm の剥離強度を有することを示す。

【0209】

実施例 2

BPDA / / 90 TFMB / 10 ODA

窒素不活性化されたグローブボックス中で、19.711 g (0.0615 モル) の 2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、1.369 g (0.006 モル) の 4,4'-オキシジアニリンおよび 159 グラムの N,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、19.919 g (0.0677 モル) の 3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで 0 で貯蔵した。

【0210】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液(および担体シート)を、1:1 比の無水酢酸および -ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

【0211】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および 325 のオーブン温度にそれぞれ約 30 分間暴露した。ポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表 1 に示す。

【0212】

350 psi で真空ブラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

【0213】

実施例 3

BPDA / / 80 TFMB / 20 ODA

窒素不活性化されたグローブボックス中で、17.879 g (0.0558 モル) の 2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、2.794 g (0.0139 モル) の 4,4'-オキシジアニリンおよび 159 グラムの N,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、20.326 g (0.069 モル) の 3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液

をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

【0214】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR（登録商標）膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液（および担体シート）を、1：1比の無水酢酸および - ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

【0215】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオーブン温度にそれぞれ約30分間暴露した。膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

10

【0216】

350 psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 μmの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

【0217】

実施例4

BPDA//70 TFMB/30 ODA

20

窒素不活性化されたグローブボックス中で、15.971 g（0.0498モル）の2,2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジン（TFMB）、4.279 g（0.0213モル）の4,4'-オキシジアニリンおよび159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド（DMAc）を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、20.75 g（0.0705モル）の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物（BPDA）を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

30

【0218】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR（登録商標）膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液（および担体シート）を、1：1比の無水酢酸および - ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

【0219】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオーブン温度にそれぞれ約30分間暴露した。ポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

40

【0220】

350 psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 μmの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

【0221】

実施例5

BPDA//60 TFMB/40 ODA

50

窒素不活性化されたグローブボックス中で、13.981 g（0.0436モル）の2

、2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、5.827g(0.0291モル)の4,4'-オキシジアニリンおよび159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、21.192g(0.0720モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0で貯蔵した。

#### 【0222】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR(登録商標)膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液(および担体シート)を、1:1比の無水酢酸および-ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

#### 【0223】

次いで、強制的空気オープンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300および325のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

#### 【0224】

350psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35umの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

#### 【0225】

##### 実施例6

BPDA//50 TFMB/50 ODA

窒素不活性化されたグローブボックス中で、11.904g(0.03717モル)の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、7.442g(0.0371モル)の4,4'-オキシジアニリンおよび159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、21.654g(0.0736モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0で貯蔵した。

#### 【0226】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR(登録商標)膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液(および担体シート)を、1:1比の無水酢酸および-ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

#### 【0227】

次いで、強制的空気オープンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300および325のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

10

20

30

40

50

## 【0228】

350 psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 μmの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

## 【0229】

## 実施例7

B P D A / / 4 3    T F M B / 5 7    O D A

窒素インレット、3つの独立制御攪拌器シャフト、低速アンカー混合機、高速ディスク分散機、ならびに高剪断ローター-スターラ-乳化機および熱電対を備えた、乾燥させた50ガロンのタンクに、10.10 kg (31.54モル)の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、8.37 kg (41.81モル)の4,4'-オキシジアニリン(ODA)および159.6 kgのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を添加した。

10

## 【0230】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、35 で混合物を加熱および攪拌した。アンカー、分散機および乳化機の手速度は、極端に混合物を加熱することなく、効率的な混合および溶解を確実にするように、必要に応じて調節する。次に、21.4 kg (72.84モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中のジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約2000のポイズの粘度を有するように、DMAc中6重量%のPMDA溶液の化学量論的、あるいはBPDA固体の当量の化学量論的量の添加による鎖延長によって調節した。完成した溶液を20ミクロンバッグフィルターを通して濾過し、混入空気を除去するために真空脱気した。ポリアミド酸溶液を約-6 まで冷却し、無水酢酸脱水剤(0.14 cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>ポリマー溶液)、イミド化触媒3-ピコリン(0.15 cm<sup>3</sup>/cm<sup>3</sup>ポリマー溶液)を測定し、混合して、スロットダイを使用して、90の熱回転ドラム上へ膜をキャストした。得られたゲル膜をドラムから剥離し、テンターオープン中に入れ、膜を乾燥し、対流および放射加熱を使用し、98%より高い固体レベルまで硬化した。

20

## 【0231】

350 psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 μmの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

30

## 【0232】

350 psiで真空プラテンプレス中、さらに2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 μmの処理された銅箔のシートの間で積層した。これらのクラッドの寸法安定性をIPC-TM650 2.2.4cによって測定した。結果を表2に要約する。

## 【0233】

## 実施例8

B P D A / / 5 0    T F M B / 5 0    O D A

窒素インレット、3つの独立制御攪拌器シャフト、低速アンカー混合機、高速ディスク分散機、ならびに高剪断ローター-スターラ-乳化機および熱電対を備えた、乾燥させた50ガロンのタンクに、11.56 kg (36.12モル)の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、7.23 kg (36.12モル)の4,4'-オキシジアニリン(ODA)および159.6 kgのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を添加した。

40

## 【0234】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、35 で混合物を加熱および攪拌した。アンカー、分散機および乳化機の手速度は、極端に混合物を加熱することなく、効率的な混合および溶解を確実にするように、必要に応じて調節する。次に、2

50

1.1 kg (71.73 モル) の 3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) を、反応容器中のジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約 1500 のポイズの粘度を有するように、DMAc 中 6 重量 % の PMDA 溶液の化学量論的当量、あるいは BPDA 固体の当量の化学量論的当量の添加による鎖延長によって調節した。最後に、少量のベルト剥離剤をポリアミド酸溶液に添加した (これによって、キャストされたグリーン膜をキャストリングベルトから容易に剥離することが可能となる) スロットダイによって膜を移動ステンレス鋼ベルト上に押出成形することによってポリマー薄膜を製造した。ベルトを対流オープンに通過させて、溶媒をリエバポレーションし、ポリマーを部分的にイミド化し、「グリーン」膜を製造した。グリーン膜固体 (300 までの加熱時における重量損失によって測定される) は約 70 % であった。次いで、グリーン膜をキャストリングベルトから剥離し、巻き取った。次いで、グリーン膜をテンターオープン中に入れ、膜を乾燥し、対流および放射加熱を使用し、98 % より高い固体レベルまで硬化して、完全硬化ポリイミド膜を製造した。テンタリングの間、縁に沿って膜を固定することによって収縮を制御した。

10

## 【0235】

350 psi で真空プラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

20

## 【0236】

## 実施例 9

BPDA / / 43 TFMB / 57 ODA

実施例 7 に記載されるように調製したポリアミド酸ポリマー溶液を用いて、ドクターブレードを使用し、銅箔 (12 μm Mitsui 3EC-M35-HTE ED 銅) 上へ溶液の一部をキャストすることによって薄膜を調製した。次いで、コーティングされた銅箔をクリップフレーム膜に固定し、強制的空気オープンを使用して加熱し、溶媒を除去し、ポリマーをイミド化した。膜は、150、250 および 330 のオープン温度に約 30 分間暴露した。得られる片面銅コーティングポリイミド膜をピンフレームから取り外し、次いで、350 psi の圧力および 350 の温度で真空プラテンプレス中、上記と同一仕様のもう 1 枚の銅箔のシートに積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。データを表 1 に示す。

30

## 【0237】

## 実施例 10 (予測)

BPDA / / 50 TFMB / 50 ODA

窒素インレット、3つの独立制御撹拌器シャフト、低速アンカー混合機、高速ディスク分散機、ならびに高剪断ローター-スターラー乳化機および熱電対を備えた、乾燥させた 50 ガロンのタンクに、11.56 kg (36.12 モル) の 2, 2' - ビス (トリフルオロメチル) ベンジジン (TFMB)、7.23 kg (36.12 モル) の 4, 4' - オキシジアニリン (ODA) および 159.6 kg の N, N - ジメチルアセトアミド (DMAc) を添加する。

40

## 【0238】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、35 で混合物を加熱および撹拌する。アンカー、分散機および乳化機の速度は、極端に混合物を加熱することなく、効率的な混合および溶解を確実にするように、必要に応じて調節することができる。次に、21.1 kg (71.73 モル) の 3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) を、反応容器中のジアミン溶液に添加する。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続する。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約 2000 のポイズの粘度を有するように、DMAc 中 6 重量 % の PMDA 溶液の化学量論的当量、あるいは BPDA 固体の当量の化学量論的当量の添加による鎖延長によって調節する。完成した溶液を 20 ミクロンバッグフィルターを

50

通して濾過し、混入空気を除去するために真空脱気することができる。ポリアミド酸溶液を約 - 6 まで冷却し、無水酢酸脱水剤 ( 0 . 1 4 c m<sup>3</sup> / c m<sup>3</sup> ポリマー溶液 )、イミド化触媒 3 - ピコリン ( 0 . 1 5 c m<sup>3</sup> / c m<sup>3</sup> ポリマー溶液 ) を測定し、混合して、スロットダイを使用して、90 の熱回転ドラム上へ膜をキャストする。得られたゲル膜をドラムから剥離し、テンターオープン中に入れ、膜を乾燥し、対流および放射加熱を使用し、98%より高い固体レベルまで硬化する。

#### 【0239】

350 p s i で真空ブラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 u m の処理された銅箔のシートの間で積層する。この積層体は、I P C - T M 6 5 0 2 . 4 . 9 d 試験方法によって測定される良好な剥離強度データを有することが予測される。

10

#### 【0240】

##### 実施例 1 1

B P D A / / 3 0 T F M B / 7 0 O D A

窒素不活性化されたグローブボックス中で、7.265 g ( 0 . 0 2 2 6 8 モル ) の 2 , 2 ' - ビス ( トリフルオロメチル ) ベンジジン ( T F M B )、10.598 g ( 0 . 0 5 2 9 モル ) の 4 , 4 ' - オキシジアニリンおよび160グラムの N , N - ジメチルアセトアミド ( D M A c ) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、22.137 g ( 0 . 0 7 5 2 モル ) の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 ( B P D A ) を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

20

#### 【0241】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、D u P o n t M Y L A R ( 登録商標 ) 膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液 ( および担体シート ) を、1 : 1 比の無水酢酸および - ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム ( ピンフレーム ) に移動した。

30

#### 【0242】

次いで、強制的空気オープンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。ポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

#### 【0243】

350 p s i で真空ブラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 u m の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、I P C - T M 6 5 0 2 . 4 . 9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

#### 【0244】

40

##### 実施例 1 2

B P D A / / 2 0 T F M B / 8 0 O D A

窒素不活性化されたグローブボックス中で、5.358 g ( 0 . 0 1 6 7 モル ) の 2 , 2 ' - ビス ( トリフルオロメチル ) ベンジジン ( T F M B )、13.399 g ( 0 . 0 6 6 9 モル ) の 4 , 4 ' - オキシジアニリンおよび172グラムの N , N - ジメチルアセトアミド ( D M A c ) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、24.243 g ( 0 . 0 8 2 4 モル ) の 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 ( B P D A ) を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体

50

が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

【0245】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR（登録商標）膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液（および担体シート）を、1：1比の無水酢酸および -ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

【0246】

次いで、強制的空気オープンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。ポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

【0247】

350psiで真空ブラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35umの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

【0248】

実施例13

実施例13は、本開示のポリイミドが回路上で良好な形態を有し、カバーレイとして有用であることを示す。

【0249】

フレキシブルプリント回路基板産業における標準手順を使用して、18ミクロンの厚さの銅箔によるPyralux（登録商標）APフレキシブル銅張積層体のシート（DuPontから入手可能）をフォトレジストで像形成して、銅エッチングし、異なる幅の像形成された銅箔線を作成した。実施例7で作製されるポリマー（膜厚32ミクロン）を、像形成された回路線の上に積層し、像形成されたフレキシブル回路上にカバーレイを形成した。ポリイミドカバーレイは、350psiおよび320 ピーク積層温度で真空ブラテンプレスにおいて積層した。ポリイミドカバーレイは、回路上で非常に良好な形態を示し、空隙がないことが観察された。ポリイミドカバーレイは、細線化がほとんどなく回路上部を被覆することが可能であった。

【0250】

実施例14

実施例14は、本開示のポリイミドが、320 の温度で積層される場合、良好な剥離強度を有することを示す。

【0251】

フレキシブルプリント回路基板産業における標準手順を使用して、Pyralux（登録商標）APフレキシブル銅張積層体の2枚のシート（DuPontから入手可能）をフォトレジストで像形成して、銅エッチングし、Pyralux（登録商標）APの片面から全ての銅箔を除去した。実施例7で作製されるポリマー（膜厚50um）を、2つの像形成されたPyralux（登録商標）APクラッド間に積層し、APクラッドの誘電表面は実施例7のポリマー膜に積層された。ポリイミド膜は、350psiおよび320 ピーク積層温度で真空ブラテンプレスにおいて積層した。AP誘電表面と実施例7のポリイミド膜との間の剥離強度は、IPC-TM650-2.4.9dによって測定した。AP誘電体と実施例7のポリイミド膜との間の剥離強度は1.4N/mmであった。

【0252】

実施例15

実施例15は、本開示のポリイミドは回路上で良好な形態を有し、ボンドブライとして有用であることを示す。



## 【0253】

フレキシブルプリント回路基板産業における標準手順を使用して、18ミクロンの厚さの銅箔によるPyralux（登録商標）APフレキシブル銅張積層体の2枚のシート（DuPontから入手可能）をフォトレジストで像形成して、銅エッチングし、異なる幅の像形成された銅箔線を作成した。実施例7で作製されるポリマー（膜厚100ミクロン）を、2つの像形成されたAPクラッドの像形成された回路線上に積層し、2つの像形成されたフレキシブル回路間にボンドブライを形成した。ポリマーボンドブライは、350psiおよび320℃ピーク積層温度で真空プラテンプレスにおいて積層した。ポリイミドボンドブライは、回路上で非常に良好な形態を示し、空隙がないことが観察された。ポリイミドボンドブライは、2つの像形成された回路間で細線化がほとんどなく、2つのAP像形成積層体上の回路を分離することが可能であった。

10

## 【0254】

## 実施例16

実施例16は、良好な剥離強度が金属合金で達成されることを示す。

## 【0255】

上記実施例7で製造された膜の2枚のシートを、Ulrichから入手可能なInconnel（登録商標）600金属合金箔（厚さ25ミクロン）の2枚のシート間に積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。1.8N/mmの平均剥離強度が測定された。

20

## 【0256】

## 比較例1

BPDA//ODA

比較例1は、TFMBを排除することが、剥離強度を含む特性を悪化させることを示す。

## 【0257】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、16.702g（0.0834モル）の4,4'-オキシジアニリンおよび159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド（DMAc）を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45℃グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、24.298g（0.08266モル）の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物（BPDA）を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストに使用するまで0℃で貯蔵した。

30

## 【0258】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR（登録商標）膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液（および担体シート）を、1:1比の無水酢酸およびN-ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

40

## 【0259】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150℃、250℃、300℃および325℃のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

## 【0260】

350psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35umの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

50

## 【0261】

## 比較例 2

54BPDA / 46PMDA / /ODA

比較例 2 は、膜が熱形成可能であっても、銅に対する低い接着性を有することを示す。

## 【0262】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、18.225 g (0.0910 モル) の 4,4'-オキシジアニリンおよび 159 グラムの N,N-ジメチルアセトアミド (DMAc) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、12.052 g (0.0409 モル) の 3,3',4,4'-ピフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) および 10.723 g (0.0492) のピロメリット酸二無水物 (PMDA) の混合物を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストに使用するまで 0 で貯蔵した。

10

## 【0263】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液 (および担体シート) を、1:1 比の無水酢酸および -ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム (ピンフレーム) に移動した。

20

## 【0264】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および 325 のオープン温度にそれぞれ約 30 分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表 1 に示す。

## 【0265】

350 psi で真空プラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

30

## 【0266】

## 比較例 3

PMDA / /TFMB

比較例 3 は、BPDA が PMDA と置き換えられる場合、ポリイミドが脆性であり、かつ低い剥離強度を有することを示す。

## 【0267】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、24.552 g (0.0767 モル) の 2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン (TFMB) および 159 グラムの N,N-ジメチルアセトアミド (DMAc) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、16.55 g (0.0759 モル) のピロメリット酸二無水物 (PMDA) を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストに使用するまで 0 で貯蔵した。

40

## 【0268】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリ

50

アミド酸溶液（および担体シート）を、1：1比の無水酢酸および - ピコリンを含んでなる触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

【0269】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度に約30分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

【0270】

350 p s iで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 u mの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

【0271】

比較例4

B P D A / / 50 m T O L / 50 O D A

比較例4は、TFMBを、化学的に同様のジアミンであるが、2,2'-メチルベンジン官能性と置き換えた場合、同等の剥離強度が得られないことを示す。

【0272】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、8.77 g (0.0413モル)の2,2'-ジメチル-4,4'-ジアミノビフェニル、8.271 g (0.0413モル)の4,4'-オキシジアニリンおよび159グラムのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、24.065 g (0.0818モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0で貯蔵した。

【0273】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR（登録商標）膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液（および担体シート）を、1：1比の無水酢酸および - ピコリンを含んでなる触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム（ピンフレーム）に移動した。

【0274】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

【0275】

350 p s iで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35 u mの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

【0276】

比較例5

20 P M D A / 80 O D P A / / R O D A

比較例5は低い機械特性を有する。

【0277】

窒素インレット、3つの独立制御攪拌器シャフト、低速アンカー混合機、高速ディスク

10

20

30

40

50

分散機、ならびに高剪断ローター - スターラー乳化機および熱電対を備えた、乾燥させた 50 ガロンのタンクに、20.02 kg (68.49 モル) の 1,3 - ビス (4 - アミノフェノキシ) ベンゼン (RODA) および 159.6 kg の N,N - ジメチルアセトアミド (DMAc) を添加した。

#### 【0278】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、35 で混合物を加熱および攪拌した。アンカー、分散機および乳化機の手速度は、極端に混合物を加熱することなく、効率的な混合および溶解を確実にするように、必要に応じて調節する。次に、16.99 kg (54.79 モル) の 4,4' - オキシジフタル酸無水物 (ODPA) および 2.88 kg (13.21 モル) のピロメリット酸二無水物 (PMDA) を、反応容器中のジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約 2000 のポイズの粘度を有するように、DMAc 中 6 重量 % の PMDA 溶液の化学量論的、あるいは BPD A 固体の当量の化学量論的量の添加による鎖延長によって調節した。完成した溶液を 20 ミクロンバッグフィルターを通して濾過し、混入空気を除去するために真空脱気した。ポリアミド酸溶液を約 -6 まで冷却し、無水酢酸脱水剤 (0.14 cm<sup>3</sup> / cm<sup>3</sup> ポリマー溶液)、イミド化触媒 3 - ピコリン (0.15 cm<sup>3</sup> / cm<sup>3</sup> ポリマー溶液) を測定し、混合して、スロットダイを使用して、90 の熱回転ドラム上へ膜をキャストした。得られたゲル膜をドラムから剥離し、テンターオープン中に入れ、膜を乾燥し、対流および放射加熱を使用し、98 % より高い固体レベルまで硬化した。

10

20

#### 【0279】

350 psi で真空ブラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

#### 【0280】

350 psi で真空ブラテンプレス中、さらに 2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。これらのクラッドの寸法安定性を IPC - TM 650 2.2.4 c によって測定した。結果を表 2 に要約する。

#### 【0281】

比較例 6

PMDA / / ODA

比較例 6 は、低い剥離強度を有する。

30

#### 【0282】

350 psi で真空ブラテンプレス中、2 枚の Kapt on (登録商標) H 膜のシート (DuPont から入手可能な 100 PFC 型) (E. I. du Pont de Nemours and Company から得たピロメリット酸二無水物 (PMDA) および 4,4' - オキシジアニリン (ODA) から構成されるポリイミド) を、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

40

#### 【0283】

比較例 7

60 PMDA / 40 BPD A / / 40 ODA / 60 PPD

比較例 7 は、低い剥離強度を有する。

#### 【0284】

350 psi で真空ブラテンプレス中、2 枚の Kapt on (登録商標) E 膜のシート (DuPont から入手可能) (E. I. du Pont de Nemours and Company から得たピロメリット酸二無水物 (PMDA)、3,3',4,4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPD A)、4,4' - オキシジアニリン (ODA) および 1,4 - フェニレンジアミン (PPD) から構成されるポリイミド) を、2

50

枚の厚さ 35  $\mu\text{m}$  の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

#### 【0285】

実施例 17 および 18 は、80 ~ 90 モル % の BPDA、10 ~ 20 モル % の ODPA および 100 モル % の TFMB から誘導されるポリイミドは、350 以上の温度で積層される場合、少なくとも 1.3 N/mm の剥離を有することを示す。

#### 【0286】

実施例 17

90 BPDA / 10 ODPA / / TFMB

不活性化窒素グローブボックス中で、20.68 g (0.064 モル) の 2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB) および 156 グラムの N, N - ジメチルアセトアミド(DMAc) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。

#### 【0287】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、40 で混合物を加熱および撹拌した。次に、16.91 g (0.057 モル) の 3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA) および 1.41 g (0.006 モル) の 4, 4' - オキシジフタル酸無水物(ODPA) を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。

#### 【0288】

全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約 2000 のポイズの粘度を有するように、DMAc 中 6 重量 % の PMDA 溶液の化学量論的量、あるいは BPDA 固体の当量の化学量論的量の添加による鎖延長によって調節した。溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで 0 で貯蔵した。

#### 【0289】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜のシート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。ポリマー(および担体シート)を、1:1 比の無水酢酸および - ピコリンを含んでなる触媒溶液に浸漬した。(部分的イミド化において)数分以内でゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

#### 【0290】

次いで、強制的空気オーブンを使用して膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。膜は、150、250 および 330 のオーブン温度に約 30 分間暴露した。膜をピンフレームから取り外し、分析した。

#### 【0291】

350 psi で真空プラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35  $\mu\text{m}$  の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC - TM 650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

#### 【0292】

実施例 18

80 BPDA / 20 ODPA / / TFMB

不活性化窒素グローブボックス中で、20.94 g (0.065 モル) の 2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB) および 156 グラムの N, N - ジメチルアセトアミド(DMAc) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 200 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。

#### 【0293】

ジアミンが完全に溶解し、淡黄色の溶液が得られるまで、数分間、40 で混合物を加

10

20

30

40

50

熱および撹拌した。次に、15.20 g (0.051 モル) の 3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) および 2.85 g (0.013 モル) の 4, 4' - オキシジフタル酸無水物 (ODPA) を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。

#### 【0294】

全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。得られたポリアミド酸溶液の粘度は、得られる溶液が約 2000 のボイズの粘度を有するように、DMAc 中 6 重量% の PMDA 溶液の化学量論的量、あるいは BPDA 固体の当量の化学量論的量の添加による鎖延長によって調節した。溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで 0 で貯蔵した。

10

#### 【0295】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜のシート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。ポリマー (および担体シート) を、1:1 比の無水酢酸および - ピコリンを含んでなる触媒溶液に浸漬した。(部分的イミド化において) 数分以内でゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム (ピンフレーム) に移動した。

#### 【0296】

次いで、強制的空気オーブンを使用して膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。膜は、150、250 および 330 のオーブン温度に約 30 分間暴露した。膜をピンフレームから取り外し、分析した。

20

#### 【0297】

350 psi で真空プラテンプレス中、2 枚の膜のシートを、2 枚の厚さ 35 μm の処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9 d 試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表 1 に示す。

#### 【0298】

比較例 8

60 BPDA / 40 ODPA / / TFMB

比較例 8 は、40 モルパーセントの ODPA が使用される場合、試験用の膜を製造することができなかったことを示す。

30

#### 【0299】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、23.912 g (0.0746 モル) の 2, 2' - ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン (TFMB) および 179 グラムの N, N - ジメチルアセトアミド (DMAc) を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された 250 ミリリットルのジャケット付きビーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、13.18 g (0.045 モル) の 3, 3', 4, 4' - ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA) および 9.03 g (0.029 モル) の 4, 4' - オキシジフタル酸無水物 (ODPA) を、反応容器中に含有される混合物としてジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、撹拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで 0 で貯蔵した。

40

#### 【0300】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標) 膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液 (および担体シート) を、1:1 比の無水酢酸および - ピコリンを含んでなる触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム (ピンフレーム) に移動した。

#### 【0301】

50

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。硬化後、極度にしわが寄って、カールし、固定フレームから裂けたため、この手順を使用して、試験を行うことが実行可能なポリイミド膜を得ることはできなかった。

#### 【0302】

比較例9

B P D A / / 1 0    T F M B / 9 0    O D A

比較例9は、10モルパーセントのTFMBが使用される場合、350 で積層される場合の剥離強度が低いことを示す。

10

#### 【0303】

窒素不活性化されたグローブボックス中で、2.675 g (0.00835モル)の2,2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン(TFMB)、15.049 g (0.071モル)の4,4'-オキシジアニリンおよび168グラムのN,N-ジメチルアセトアミド(DMAc)を、メカニカルスターラーを備えた乾燥された250ミリリットルのジャケット付きピーカーに添加した。45 グリコール水の再循環を使用して、ジアミンが完全に溶解し、ほぼ無色の溶液が得られるまで、数分間、混合物を加熱した。次に、24.27 g (0.083モル)の3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)を、反応容器中に含有されるジアミン溶液に添加した。全ての固体が溶解し、反応物がポリアミド酸溶液を形成するまで、攪拌を継続した。ポリアミド酸溶液をデカンテーションし、膜キャストイングに使用するまで0 で貯蔵した。

20

#### 【0304】

上記ポリアミド酸から誘導されるポリイミド膜を、触媒溶液を用いて化学的にイミド化した。化学的にイミド化された膜は、DuPont MYLAR (登録商標)膜の担体シート上にポリアミド酸溶液をキャストすることによって調製された。キャストされたポリアミド酸溶液(および担体シート)を、1:1比の無水酢酸および-ピコリンを含んだ触媒溶液に浸漬した。ゲル膜が形成された。ゲル膜を担体シートから剥離し、固定フレーム(ピンフレーム)に移動した。

#### 【0305】

次いで、強制的空気オーブンを使用してゲル膜を加熱し、さらにポリマーをイミド化して、溶媒を除去した。ゲル膜は、150、250、300 および325 のオープン温度にそれぞれ約30分間暴露した。得られるポリイミド膜をピンフレームから取り外し、分析した。データを表1に示す。

30

#### 【0306】

350 psiで真空プラテンプレス中、2枚の膜のシートを、2枚の厚さ35umの処理された銅箔のシートの間で積層した。剥離強度データは、IPC-TM650 2.4.9d試験方法によって測定した。異なる積層ピーク温度のデータを表1に示す。

#### 【0307】

一般的な説明または実施例における上記の活性の全てが必要とされるというわけではなく、特定の活性の一部は必要とされなくてもよく、かつさらなる活性が記載されるものに加えて実行されてもよいことに留意すべきである。またさらに、それぞれの活性が記載される順番が、必ずしも、それらが実行される順番であるというわけではない。本明細書を読んだ後、当業者は、それらの具体的な必要性または希望のために、どのような活性を使用することができるのかを決定することが可能である。

40

#### 【0308】

上記明細書において、本発明は具体的な実施形態に関して記載された。しかしながら、添付の請求の範囲に明かにされるような本発明の範囲から逸脱することなく、様々な修正および変更を実行することができることを当業者は認識する。本明細書で開示される全ての特徴は、同一、同等または同様の目的に役に立つ別の特徴によって置き換えられてもよい。したがって、本明細書は、限定的な意味よりもむしろ実例として見なされるべきであ

50

り、全てのそのような修正形態は本発明の範囲内に含まれるように意図される。

【0309】

利益、他の利点および問題への解決策は、具体的な実施形態に関して上記された。しかしながら、利益、利点、問題への解決策、ならびにいずれかの利益、利点または解決策が生じるか、もしくはより強調されるようになるいずれの要素も、いずれかまたは全ての請求の範囲の重要な、必要な、または本質的な特徴もしくは要素として解釈されるべきではない。

【0310】

【表1】

表1

実施例番号		Tg[損失 係数]	MD CTE [50- 250°C]	MD 引張係数	MD 引張強さ	MD 伸長率
1	BPDA//TFMB	347	11	1289	47	30
2	BPDA//90 TFMB/10 ODA	308.6	9.1	724	32.4	52.2
3	BPDA//80 TFMB/20 ODA	323	15.3	716	37.8	72.7
4	BPDA//70 TFMB/30 ODA	314	15	728	42.73	110.5
5	BPDA//60 TFMB/40 ODA	295.6	15.9	665	38	106
6	BPDA//50 TFMB/50 ODA	288.1	12.6	663	35.5	105
7	BPDA//43 TFMB/57 ODA					
8	BPDA//50 TFMB/50 ODA 350 psi					
	200 psi					
9	BPDA//43 TFMB/57 ODA					
10	BPDA//50 TFMB/50 ODA					
11	BPDA//30 TFMB/70 ODA					
12	BPDA//20 TFMB/80 ODA					
比較例 1	BPDA//ODA	292	31	377	24.9	80
比較例 2	54BPDA/46PMDA//ODA	314	41	425	29	120
比較例 3	PMDA//TFMB	400	-14	1600	72	25
比較例 4	BPDA//50mTOL/50ODA	313	26	687	39	66
比較例 5	20PMDA/80ODPA//RODA	236	>100	516	16.8	71.8
比較例 6	PMDA//ODA					
比較例 7	60PMDA/40BPDA// 40ODA/60PPD					
17	90BPDA/10ODPA//TFMB	332.2	10.14	780	39.7	65.1
18	80BPDA/20ODPA//TFMB	321	3.14	720	38.7	60.9
比較例 8	60BPDA/40ODPA//TFMB	試験用の膜に製造することができなかった。				
比較例 9	BPDA//10 TFMB/90 ODA					

【0311】



【表 2】

表1 続き

実施例番号	水分吸収	比誘電率 @ 1 kHz	330℃ での平均 剥離強度 (N/mm)	350℃ での平均 剥離強度 (N/mm)	380℃ での平均 剥離強度 (N/mm)	395℃ での平均 剥離強度 (N/mm)
1	0.38	2.77		0.1	1.1	1.4
2	0.42	3.14	1.1	1.6		
3	0.73	3.1	1.6	1.9		
4	0.844		2.1	2.0		
5	0.92		2.0	2.2		
6	1	3.28			2.0	
7			320℃で1.9	2.7	2.1	
8				3.3		
				3.3		
9				2.5		
10						
11			2.5	3.2		
12			1.1	3.2		
比較例 1	1.4	3.45		0.2	0.7	
比較例 2	1.5	3.3		0.2	0.6	
比較例 3	1.59	3.37		0	<0.1	
比較例 4	3.2	3.24		0.2	0.7	
比較例 5	0.62	3.43		1.6		
比較例 6				<0.1		
比較例 7				<0.1		
17	0.74	3.04	0.5	1.4		
18	0.74	2.98	0.9	1.3		
比較例 8						
比較例 9				0.7	1.6	

【 0 3 1 2 】

【表 3】

表2

実施例		MD エッチング	TD エッチング	MD 熱	TD 熱
7	BPDA//43 TFMB/57 ODA	-0.125	-0.081	-0.208	-0.183
比較例 5	20PMDA/80ODPA//RODA	-0.505	-0.506	-0.588	-0.583

10

20

30

40

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2013/046938

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. H05K1/00 H05K3/06  
ADD.

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)

H05K

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

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

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2009/035591 A1 (NISHIKAWA TAKAHIRO [JP] ET AL) 5 February 2009 (2009-02-05)  page 1, paragraph 12 - page 21, paragraph 224; figures  -----	1,6-8, 17,18, 23,24
Y	WO 2011/063247 A2 (DU PONT [US]; AUMAN BRIAN C [US]; DUNBAR MEREDITH L [US]; HE TAO [US];) 26 May 2011 (2011-05-26) page 1, line 28 - page 52, line 27  -----	1,6-8, 17,18, 23,24
A	WO 2012/011970 A1 (DU PONT [US]; CARNEY THOMAS EDWARD [US]; BARTOLIN JEFFREY MICHAEL [US]) 26 January 2012 (2012-01-26) page 1, line 5 - page 22, line 6  -----  -/-	1-24

☒ 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

\*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

30 September 2013

Date of mailing of the international search report

09/10/2013

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Geoghegan, C

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2013/046938

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2008/182112 A1 (KANESHIRO HISAYASU [JP] ET AL) 31 July 2008 (2008-07-31) page 1, paragraph 2 - page 7, paragraph 91 -----	1-24
A	WO 2011/019899 A1 (DU PONT [US]; CARNEY THOMAS EDWARD [US]; SIMONE CHRISTOPHER DENNIS [US]) 17 February 2011 (2011-02-17) page 11, line 10 - page 12, line 31 -----	1-24
A	US 2006/205891 A1 (TANAKA SHIGERU [JP] ET AL) 14 September 2006 (2006-09-14) page 24, paragraph 250 - page 25, paragraph 257 -----	1-24

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2013/046938

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2009035591 A1	05-02-2009	KR 20090004894 A TW 200806467 A US 2009035591 A1 WO 2007116685 A1	12-01-2009 01-02-2008 05-02-2009 18-10-2007
WO 2011063247 A2	26-05-2011	CN 102668108 A CN 102712753 A CN 102712754 A CN 102714192 A CN 102791769 A CN 102803345 A EP 2501740 A1 EP 2501741 A1 EP 2501742 A1 EP 2501743 A1 EP 2502269 A2 EP 2502280 A1 JP 2013511412 A JP 2013511599 A JP 2013511600 A JP 2013511601 A JP 2013511603 A JP 2013512535 A KR 20120096000 A KR 20120096001 A KR 20120096002 A KR 20120096003 A KR 20120101459 A KR 20120117783 A US 2012227790 A1 US 2012228616 A1 US 2012231257 A1 US 2012231263 A1 US 2012231264 A1 US 2012292086 A1 WO 2011063204 A1 WO 2011063209 A1 WO 2011063215 A1 WO 2011063229 A1 WO 2011063238 A1 WO 2011063247 A2	12-09-2012 03-10-2012 03-10-2012 03-10-2012 21-11-2012 28-11-2012 26-09-2012 26-09-2012 26-09-2012 26-09-2012 26-09-2012 26-09-2012 04-04-2013 04-04-2013 04-04-2013 04-04-2013 04-04-2013 11-04-2013 29-08-2012 29-08-2012 29-08-2012 29-08-2012 13-09-2012 24-10-2012 13-09-2012 13-09-2012 13-09-2012 13-09-2012 22-11-2012 26-05-2011 26-05-2011 26-05-2011 26-05-2011 26-05-2011 26-05-2011
WO 2012011970 A1	26-01-2012	CN 103168068 A EP 2596052 A1 JP 2013532752 A WO 2012011970 A1	19-06-2013 29-05-2013 19-08-2013 26-01-2012
US 2008182112 A1	31-07-2008	CN 101232995 A JP 5049784 B2 KR 20080034876 A US 2008182112 A1 US 2012156388 A1 WO 2007015545 A1	30-07-2008 17-10-2012 22-04-2008 31-07-2008 21-06-2012 08-02-2007
WO 2011019899 A1	17-02-2011	CN 102482436 A DE 112010003265 T5 JP 2013501850 A KR 20120055657 A	30-05-2012 18-04-2013 17-01-2013 31-05-2012

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/US2013/046938

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
		TW 201113153 A	16-04-2011
		US 2011039085 A1	17-02-2011
		US 2013236717 A1	12-09-2013
		WO 2011019899 A1	17-02-2011
-----			
US 2006205891 A1	14-09-2006	KR 20050113235 A	01-12-2005
		US 2006205891 A1	14-09-2006
		US 2008306220 A1	11-12-2008
		WO 2004094499 A1	04-11-2004
-----			

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

テーマコード(参考)

C 0 8 G 73/10

(31)優先権主張番号 61/663,258

(32)優先日 平成24年6月22日(2012.6.22)

(33)優先権主張国 米国(US)

(31)優先権主張番号 61/663,280

(32)優先日 平成24年6月22日(2012.6.22)

(33)優先権主張国 米国(US)

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC

(72)発明者 クリストファー デニス シモーネ

アメリカ合衆国 4 3 1 4 7 オハイオ州 ピッカリントン ベントウッド ファームズ ドライブ 1 2 5 9 8

(72)発明者 カール ロバート ヘーガー

アメリカ合衆国 4 3 0 6 8 オハイオ州 レイノルズバーグ スレイト リッジ ブールバード 7 7 6 2

(72)発明者 リチャード エー . ヴェッセル

アメリカ合衆国 2 7 6 1 3 ノースカロライナ州 ローリー ブッシュベルド レーン 1 0 0 1 7

F ターム(参考) 4J043 PA04 PC145 QB26 RA08 SA06 SB03 TA22 TB01 UA131 UA132

UB121 UB401 UB402 VA022 VA041 VA062 XA16 ZA02 ZA12 ZA32

ZA35 ZB50 ZB59

5E314 AA36 BB02 BB12 CC15 FF06 GG01 GG08 GG26

5E316 AA12 AA22 AA32 CC10 CC41 CC46 DD02 DD12 EE09 EE13

EE42 GG28 HH11 HH18