202406970

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本 (11)公開編號：TW 202406970 A

(43)公開日： 中華民國 113 (2024) 年 02 月 16 日

(21)申請案號：112111555 (22)申請日： 中華民國 112 (2023) 年 03 月 27 日

(51)Int. Cl.： *C08G61/02 (2006.01)* *C07C1/30 (2006.01)*
C07C15/50 (2006.01) *C08F12/06 (2006.01)*

(30)優先權：2022/03/29 日本 2022-054487

(71)申請人：日商日本化藥股份有限公司 (日本) NIPPON KAYAKU KABUSHIKI KAISHA (JP)
日本

(72)發明人：遠島行 TOHJIMA, TAKAYUKI (JP) ；橋本昌典 HASHIMOTO, MASANORI (JP) ；中西政 NAKANISHI, MASATAKA (JP) ；長谷川篤彥 HASEGAWA, ATSUHIKO (JP) ；今井嵩 IMAI, TAKASHI (JP) ；多田弥生 TADA, YAYOI (JP)

(74)代理人：洪武雄；陳昭誠

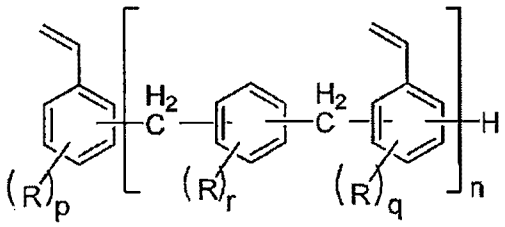
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：13 項 圖式數：14 共 81 頁

(54)名稱

化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法

(57)摘要

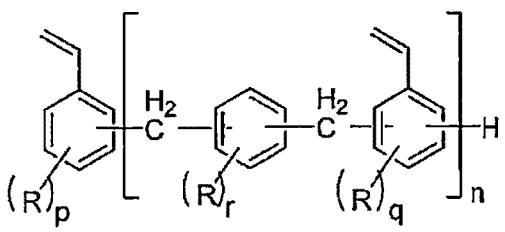
本發明提供一種具有優異的溶劑穩定性、低介電特性的化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物。本發明之化合物為下述式(1)所示之化合物，在前述化合物之總量中，式(1)中之 n 為 1 的化合物以 GPC 面積百分率計係未達 50%者。



(1)

(式(1)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數。n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。)

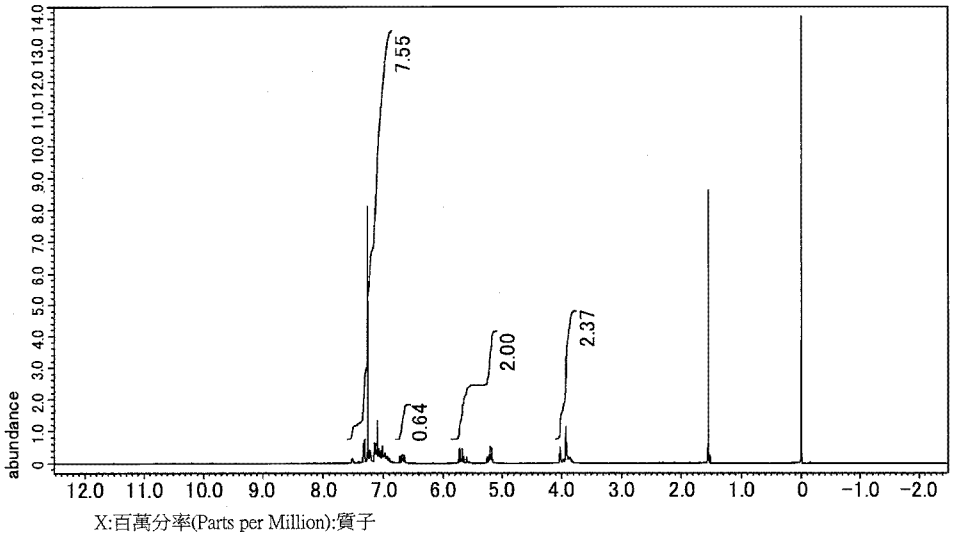
Provided are a compound having excellent solvent stability and low dielectric properties, a curable resin composition, and a cured product thereof. The compopund according to the present invention is a compound represented by the following formula (1), wherein the compound in which n is 1 in the formula (1) is less than 50% in terms of GPC area percentage with resepct to the total amount of the compound.



(1)

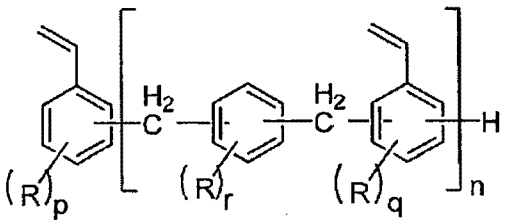
(In the formula (1), each of a plurality of R exists independently and represents a hydrocarbon group or a halogenated alkyl group having 1 to 10 carbon atoms. p, r are integers of 0 to 4, q is an integer of 0 to 3. n is the number of repetition, and the average value n_{ave} of n satisfies $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$.)

指定代表圖：



【圖3】

特徵化學式：



(1)

202406970

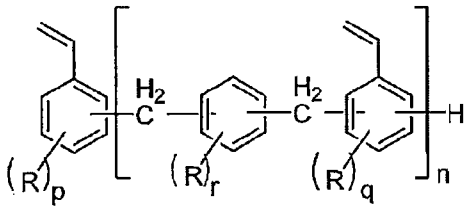
【發明摘要】

【中文發明名稱】 化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法

【英文發明名稱】 COMPOUND, CURABLE RESIN COMPOSITION, AND CURED PRODUCT THEREOF, AND METHOD FOR PRODUCING THE COMPOUND

【中文】

本發明提供一種具有優異的溶劑穩定性、低介電特性的化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物。本發明之化合物為下述式(1)所示之化合物，在前述化合物之總量中，式(1)中之 n 為 1 的化合物以 GPC 面積百分率計係未達 50%者。



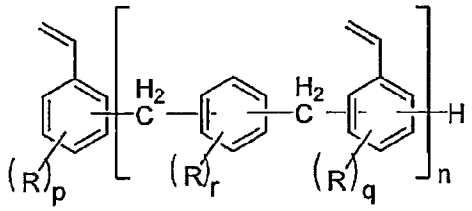
(1)

(式(1)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數。n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。)

【英文】

Provided are a compound having excellent solvent stability and low dielectric properties, a curable resin composition, and a cured product

thereof. The compopund according to the present invention is a compound represented by the following formula (1), wherein the compound in which n is 1 in the formula (1) is less than 50% in terms of GPC area percentage with resepct to the total amount of the compound.



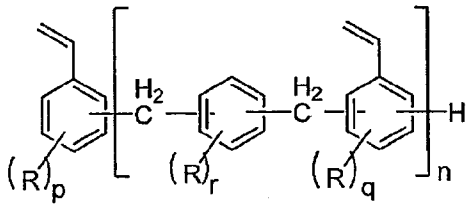
(1)

(In the formula (1), each of a plurality of R exists independently and represents a hydrocarbon group or a halogenated alkyl group having 1 to 10 carbon atoms. p, r are integers of 0 to 4, q is an integer of 0 to 3. n is the number of repetition, and the average value n_{ave} of n satisfies $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$.)

【指定代表圖】 圖3

【代表圖之符號簡單說明】 無。

【特徵化學式】



(1)

【發明說明書】

【中文發明名稱】 化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法

【英文發明名稱】 COMPOUND, CURABLE RESIN COMPOSITION, AND CURED PRODUCT THEREOF, AND COMPOUND MANUFACTURING METHOD

【技術領域】

【0001】本發明係關於化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法，係適於使用在半導體密封材、印刷配線基板、組裝(build-up)積層板等電氣與電子元件、碳纖維強化塑膠、玻璃纖維強化塑膠等輕量高強度材料、3D 列印用途。

【先前技術】

【0002】近年來，由於安裝電氣與電子元件之積層板其應用領域的擴大，要求的特性變得更加廣泛且高度化。以往的半導體晶片主要安裝在金屬製之引線框架，惟中央處理裝置(以下表示 CPU)等之高處理能力的半導體晶片越來越多地安裝在由高分子材料製成的積層板。

【0003】特別係使用於智慧型手機等的半導體封裝(以下簡稱 PKG)，為了滿足小型化、薄型化、高密度化的要求，而要求 PKG 基板的厚度變薄，然而 PKG 基板的愈薄則剛性愈低，因此在將 PKG 焊料安裝到母板(印刷電

路板：PCB)之際，會因發熱而產生大的翹曲等問題。為了減少這種情況，需要具有焊料安裝溫度以上之高 Tg 的 PKG 基板材料。

【0004】此外，在現在加速開發之第 5 代通信系統「5G」中，預計將進一步增進大容量化與高速通信。對於低正切損失材料之需求越來越大，而正在進行各種研究。專利文獻 1 中記載將(A)具有順丁烯二醯亞胺基之亞胺基化合物、(B)在 1 分子中具有脂肪族不飽和鍵之苯酚芳烷基樹脂作為必要成分的熱硬化性樹脂組成物。專利文獻 2 中記載烯丙醚改質聯苯芳烷基酚醛清漆樹脂。專利文獻 3 中記載具有苯乙烯結構的化合物。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻 1] 日本特開平 04-359911 號公報

[專利文獻 2] 國際公開 2016/002704 號

[專利文獻 3] 日本專利第 6951829 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】本案申請人對專利文獻 3 進行再試驗時，發現當以專利文獻 3 中記載的方法合成時，以將經合成的化合物溶解在甲苯等之溶劑之狀態保存之際，存在著結晶析出的問題。為了解決此結晶析出的問題，亦探討使用具有高分子量的 2-溴乙基苯結構的化合物前驅物，惟在這種情況下產生高分子側之苯乙烯化反應無法完全進行的問題。更且，亦探討使反應條

件更苛刻以促進反應，惟儘管反應的進行率(轉化率)增加，但雜質量的增加降低了電氣特性、和不預期的自由基聚合反應的進行，產生高分子量和凝膠化等其他問題。亦即，極難同時實現溶劑穩定性與雜質生成的抑制(低介電特性)。

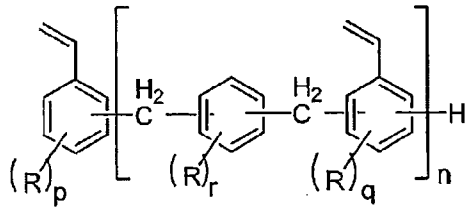
【0007】本發明係鑑於如此之狀況者，其目的在於提供一種具有優異的溶劑穩定性、低介電特性之化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法。

[用於解決課題之手段]

【0008】亦即，本發明關於下述〔1〕至〔13〕。

〔1〕一種下述式(1)所示之化合物，在前述化合物之總量中，式(1)中之 n 為 1 的化合物以 GPC 面積百分率計係未達 50%者。

【0009】

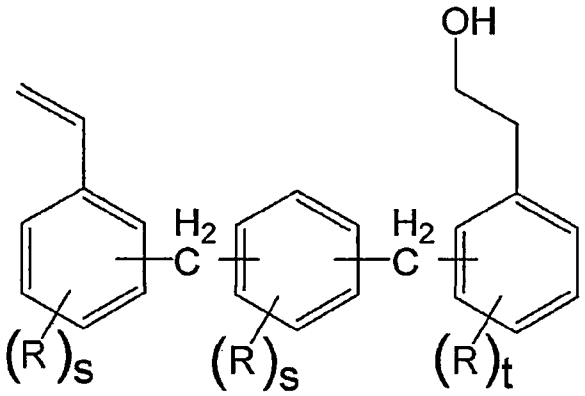


(1)

【0010】(式(1)中，存在複數個之 R 係分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。)

〔2〕如前項〔1〕所述之化合物，其中，下述式(2)至(4)所示之化合物之 HP-LC 之峰面積的總和(α)除以前述式(1)中之 n 為 1 的化合物之 HP-LC 之峰面積(β)的值(α/β)為 0.10 以下。

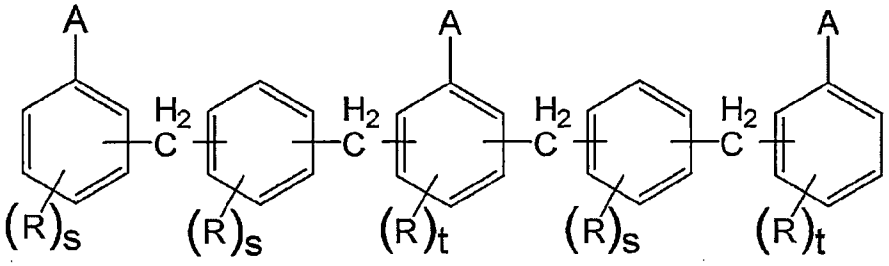
【0011】



(2)

【0012】(式(2)中，存在複數個之 R 係分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數。)

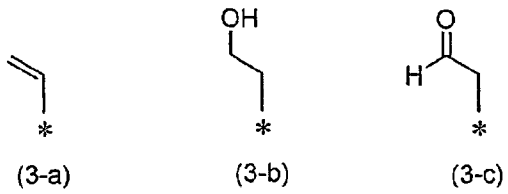
【0013】



(3)

【0014】(式(3)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。存在複數個之 A 分別獨立地為下述式(3-a)至(3-c)中之任 1 種。存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數。)

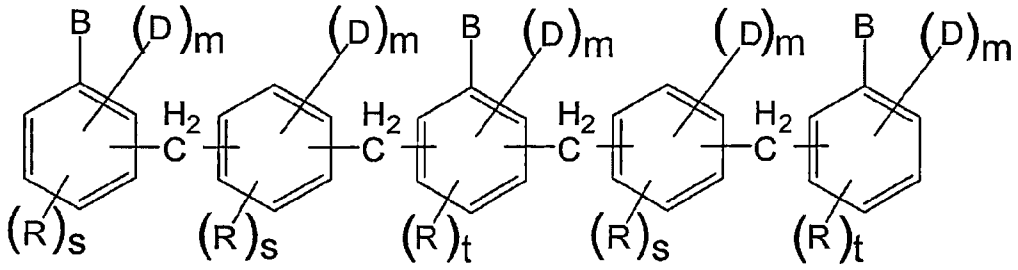
【0015】



(3-a)　(3-b)　(3-c)

【0016】(式(3-a)至(3-c)中，＊表示與式(3)之化合物之芳香環鍵結的位置。)

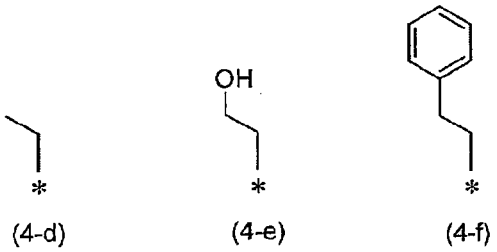
【0017】



(4)

【0018】(式(4)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。存在複數個之 B 分別獨立地為下述式(4-d)或(4-e)。D 為下述式(4-f)。存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數。式(4)中之 5 個 m 中之 1 個為 1，其餘的 4 個為 0。)

【0019】



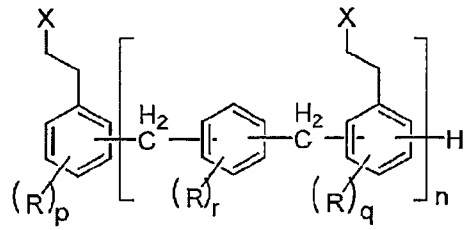
(4-d) (4-e) (4-f)

【0020】(式(4-d)至(4-f)中，＊表示與式(4)之化合物之芳香環鍵結的位置。)

〔3〕如前項〔1〕或〔2〕所述之化合物，其中，前述式(1)中，p=0、q=0、r=0。

〔4〕如前項〔1〕中〔3〕任一項所述之化合物，其中，前述式(1)所示之化合物衍生自下述式(5)所示之化合物。

【0021】



(5)

【0022】(式(5)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。X 表示鹵原子。)

〔5〕如前項〔1〕至〔4〕中任一項所述之混合物，其更含有阻聚劑。

〔6〕一種硬化性樹脂組成物，係含有前項〔1〕至〔4〕中任一項所述之化合物、或前項〔5〕所述之混合物。

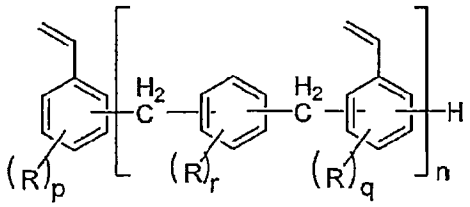
〔7〕如前項〔6〕所述之硬化性樹脂組成物，其係含有聚苯醚化合物、聚丁二烯及其改質物、聚苯乙烯及其改質物中之任 1 個以上。

〔8〕如前項〔6〕或〔7〕所述之硬化性樹脂組成物，其係含有自由基聚合起始劑。

〔9〕一種硬化物，係使前項〔1〕至〔4〕中任一項所述之化合物、前項〔5〕所述之混合物、或前項〔6〕至〔8〕中任一項所述之硬化性樹脂組成物硬化而得者。

〔10〕一種下述式(1)所示之化合物的製造方法，係使下述式(5)所示之化合物在鹼性觸媒之存在下，於下述式(5)所示之化合物之 4 至 7 重量倍之溶劑中進行脫鹵化氫反應而獲得。

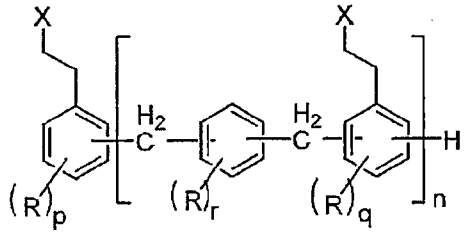
【0023】



(1)

【0024】(式(1)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。)

【0025】



(5)

【0026】(式(5)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。X 表示鹵原子。)

〔11〕如前項〔10〕所述之化合物的製造方法，其中，前述溶劑為非質子性極性溶劑與非水溶性溶劑的混合溶劑。

〔12〕如前項〔11〕所述之化合物的製造方法，其中，前述非質子性極性溶劑使用量為前述非水溶性溶劑之 1 至 10 重量倍。

〔13〕如前項〔11〕或〔12〕所述之化合物的製造方法，其中，使用二甲基亞碸作為前述非質子性極性溶劑，使用甲苯作為前述非水溶性溶劑。

[發明效果]

【0027】本發明之化合物溶劑溶解性優異，其硬化物具有低介電特性優異的特性。因此，係用於電氣電子元件之密封和電路基板、碳纖維複合材等的有用材料。

【圖式簡單說明】

【0028】

圖 1 表示合成例 1 之 GPC 圖表。

圖 2 表示實施例 1 之 GPC 圖表。

圖 3 表示實施例 1 之 ^{1}H-NMR 圖表。

圖 4 表示實施例 1 之 LC-MS 圖表。

圖 5 表示實施例 1 之 HP-LC 圖表。

圖 6 表示實施例 2 之 GPC 圖表。

圖 7 表示實施例 2 之 HP-LC 圖表。

圖 8 表示實施例 3 之 GPC 圖表。

圖 9 表示實施例 3 之 HP-LC 圖表。

圖 10 表示實施例 4 之 GPC 圖表。

圖 11 表示實施例 4 之 HP-LC 圖表。

圖 12 表示比較合成例 1 之 GPC 圖表。

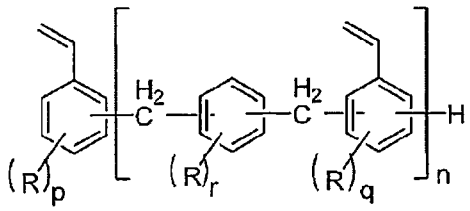
圖 13 表示比較合成例 2 之 GPC 圖表。

圖 14 表示比較合成例 2 之 HP-LC 圖表。

【實施方式】

【0029】本實施型態之化合物為下述式(1)所示者，前述化合物總量中，式(1)中之 n 為 1 的化合物之面積(訊號值的時間積分值)相對於藉由凝膠滲透層析術(以下，亦稱為 GPC)所得的層析圖中之具有式(1)所示之結構的化合物之面積(訊號值的時間積分值)之總和的比率(面積百分率)為未達 50%。在具有式(1)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積百分率為 50%以上之情況，保存含有前述式(1)所示之化合物的樹脂溶液之際，有著結晶析出(亦即，溶劑溶解性降低)之虞。

【0030】



(1)

【0031】(式(1)中，存在複數個之 R 係分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數。n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。)

【0032】前述式(1)中，p 及 r 通常為 0 至 4 之整數，較佳為 0 至 2，更佳為 0。q 通常為 0 至 3 之整數，較佳為 0 至 2，更佳為 0。n_{ave} 通常為 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$，較佳為 $1.1 \leqq n_{ave} \leqq 20$，更佳為符合 $1.1 \leqq n_{ave} \leqq 10$，特佳為符合 $1.1 \leqq n_{ave} \leqq 5$。n 之平均值 n_{ave} 可從藉由前述式(1)所示之化合物之凝膠滲透層析術(GPC)的測定求出的數目平均分子量(Mn)之值等算出。數目平均分子量較佳為 200 以上且未達 5000，更佳為 300 以上且未達 3000，特佳為 400 以上且未達 2000。數目平均分子量未達 5000，則藉由水洗之純化變得容易，屬於 200 以上，則目的化合物在溶劑餾去步驟中揮發的可能性小。

【0033】前述式(1)中，R 為碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基，較佳為碳數 1 至 10 之烴基，更佳為碳數 1 至 5 之烴基，特佳為碳數 1 至 3 之烴基。R 碳數少之情況下，暴露於高頻時難以產生分子振動，因此上述記載之中屬於碳數 1 至 3 之烴基之情況下，電氣特性特別優異。

【0034】又，本實施型態之 GPC 測定以以下條件進行。

＜GPC＞

GPC：在線脫氣裝置(DGU-20A3R)、二元移液裝置(LC-20AD)、自動進樣器(SIL-20AHT)、示差折射率檢測器(RID-20A)、管柱烘箱(CTO-20A)、系統控制器(CBM-20A)(均為島津製作所製)

管柱：Shodex KF-603×1、KF-602.5×1、KF-602×1、KF-601×1(均為昭和電工公司製)

保護管柱：Shodex KF-G 4A(昭和電工公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃

流速：1.5ml/min.

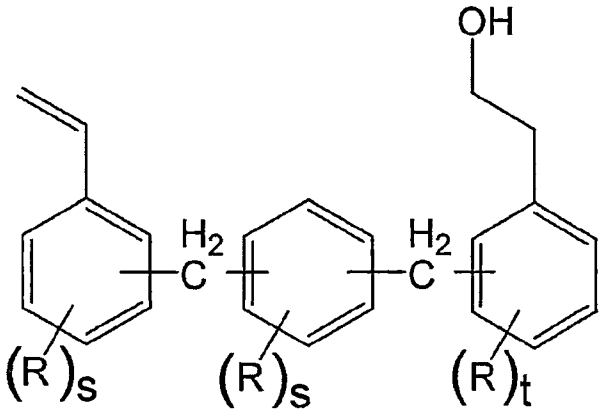
管柱溫度：40℃

檢測：RI(示差折射檢測器)

【0035】前述式(1)所示之化合物，有時含有作為副產物的下述式(2)至(4)所示之化合物，藉由高效能液相層析儀(HP-LC)而得的層析圖中之下述式(2)至(4)所示之化合物之峰面積的總和(α)除以前述式(1)之 n 為 1 的化合物之 HP-LC 之峰面積(β)的值(α/β)較佳為 0.10 以下，更佳為 0.07 以下。於此「峰面積」意指連接峰的雙尾的直線和峰所圍成的面積。實際上，係藉由半值寬度法的近似值或藉由積算峰時值輸出得到的計數數求出(JIS

K0214：2013)。下述式(2)至(4)所示之化合物由於在其結構中具有極性基，增加此等之含量，則介電特性劣化。(α/β)之值的下限值可為 0，惟較佳為 0.01。這是因為 0.01 以上，則密著性、溶劑溶解性、與具有極性基之化合物的相溶性提升。

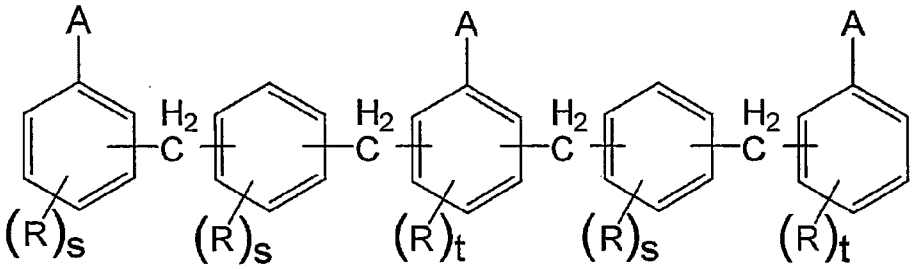
【0036】



(2)

【0037】(式(2)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。s 為 0 至 4 之整數。)

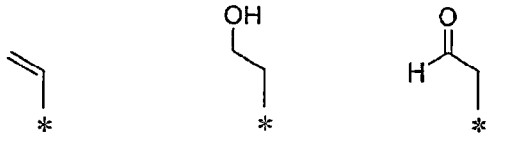
【0038】



(3)

【0039】(式(3)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。存在複數個之 A 分別獨立地為下述式(3-a)至(3-c)中之任 1 種。s 為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數。)

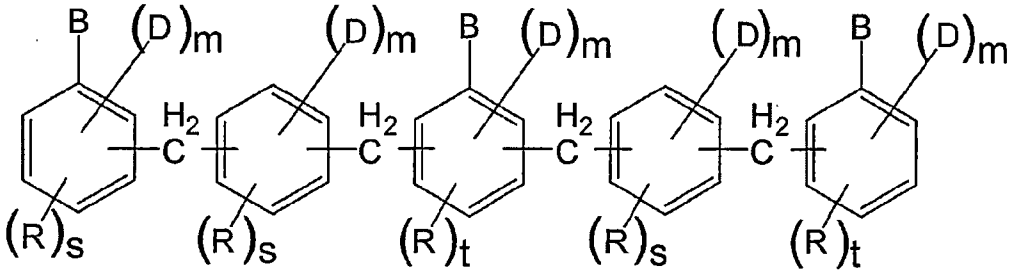
【0040】



(3-a) (3-b) (3-c)

【0041】(式(3-a)至(3-c)中，＊表示與式(3)之化合物之芳香環鍵結的位置。)

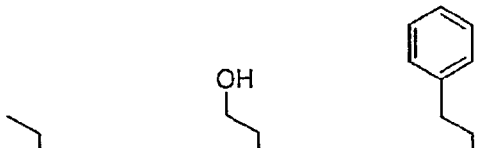
【0042】



(4)

【0043】(式(4)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。存在複數個之 B 分別獨立地為下述式(4-d)或(4-e)。D 為下述式(4-f)。存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數。式(4)中之 5 個 m 中之 1 個為 1，其餘的 4 個為 0。)

【0044】



(4-d) (4-e) (4-f)

【0045】(式(4-d)至(4-f)中，＊表示與式(4)之化合物之芳香環鍵結的位置。)

【0046】一般認為，如前述式(2)至(4)所示之化合物之副產物可藉由純化除去，惟在前述式(1)所示之化合物之情況下，難以藉由蒸餾、再結晶、

水洗等純化方法除去前述式(2)至(4)所示之化合物。具體而言，前述式(1)所示之化合物由於具有苯乙烯結構作為官能基，因此反應性高，在蒸餾等需要過熱的純化方法中進行不希望的聚合。此外，由前述式(1)所示之化合物在溶劑餾去後為液狀的化合物可知，難以形成結晶結構，因此難以以高收率使其再結晶。更且，在專利文獻 3 中亦已進行水洗，但效果小。

據此，本實施型態中，藉由調整前述式(1)所示之化合物之合成步驟中的反應溫度和溶劑量及溶劑之混合比，以控制前述式(2)至(4)所示之化合物的生成量。前述式(1)所示之化合物之合成方法的詳細內容係如後所述。

【0047】 又，本實施型態中，藉由液相層析質量分析(以下亦稱為 LC-MS)進行結構分析，藉由高效能液相層析儀(以下亦稱為 HP-LC)分析前述式(2)至(4)所示之化合物的含量。

＜LC-MS＞

裝置：超高速液相層析儀(UHPLC)系統(Ultimate3000)、質量分析計(Q-Exactive(註冊商標))(均為賽默飛世爾科技公司製)

管柱：ODS-2(GL Sciences 公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃：水=3：1(無漸變)

流速：0.5ml/min.

電離化模式：ESI

質量範圍：m/z=150-2000

＜HP-LC＞

裝置：二元移液裝置(LC-20AB)、在線脫氣裝置(DGU-20A3R)、自動進樣器(SIL-20A)、管柱烘箱(CTO-20A)、系統控制器(CBM-20A)、光二極體陣列檢測器(SPD-M20A)(均為島津製作所製)

管柱：ODS-2(GL Sciences 公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃：水=3：1(無漸變)

流速：0.5ml/min.

管柱溫度：40℃

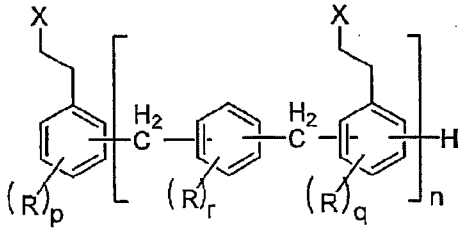
檢測：PDA(光二極體陣列檢測器)

檢測器：274nm

【0048】前述式(1)所示之化合物之羥基當量較佳為 100000g/eq.以下。羥基當量為 100000g/eq.以下，則不損電氣特性和低熱性，且提升密著性、溶劑溶解性、與具有極性基之化合物的相溶性。

【0049】前述式(1)所示之化合物衍生自下述式(5)所示之化合物。

【0050】



(5)

【0051】(式(5)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基。p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。X 表示鹵原子。)

【0052】前述式(5)中之 R 的定義、p、r、q、及 n 之平均值 n_{ave} 之較佳範圍係與前述式(1)相同。就反應性與原料之穩定性之觀點而言，R 表示鹵

化烷基時之 R 中的鹵原子且作為 X 較佳為溴原子或氯原子，特佳為溴原子。

【0053】前述式(1)所示之化合物，例如，可以藉由使前述式(5)所示之化合物在鹼性觸媒存在下於溶劑中進行脫鹵化氫反應(dehydrohalogenation)的方法而獲得。使用的溶劑量較佳為式(5)所示之化合物的 4 至 7 重量倍。

【0054】作為使用的溶劑，較佳為非質子性極性溶劑，可列舉：二甲基碸、二甲基亞碸、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、1，3-二甲基-2-咪唑啉酮、N-甲基吡咯啶酮等，亦可併用 2 種以上。

此外，亦較佳併用非質子性極性溶劑與非水溶性溶劑以形成混合溶劑。此時，作為非質子性極性溶劑，較佳為二甲基亞碸、二甲基甲醯胺、1,3-二甲基-2-咪唑啉酮、N-甲基吡咯啶酮。作為非水溶性溶劑，較佳為苯、甲苯、二甲苯、三甲苯、正己烷、環己烷、甲基環己烷。此等之中，作為最佳組合，係二甲基亞碸與甲苯之組合。

前述混合溶劑中，前述非質子性極性溶劑較佳為使用前述非水溶性溶劑之 1 至 10 重量倍，更佳為 1 至 8 倍，特佳為 2 至 6 倍。未達 1 倍之情況下，有著反應難以進行，且原料殘留之虞。超過 10 倍之情況下，反應促進效果雖高，惟前述式(2)至(4)所示之化合物的生成量易於增加。本反應在反應後半段，反應以非質子性極性溶劑層及非水溶性溶劑層之 2 層分離的狀態進行，因此就控制界面之反應性之觀點而言，較佳為上述範圍。

相對於前述式(5)所示之化合物，使用的溶劑總量較佳為 1 至 9 重量倍，更佳為 2 至 8 重量倍，特佳為 3 至 7 重量倍。未達 1 重量倍之情況下，

則有著因鹽析出而變得難以攪拌之虞，多於 9 重量倍之情況下，則有著罐效率(以 1 批可合成樹脂的量)顯著降低之虞。

【0055】反應溫度較佳為 0 至 80℃，更佳為 10 至 60℃，又更佳為 26 至 70℃。未達 0℃則有著反應無法充分地進行之虞，高於 80℃則併發苯乙烯結構之聚合反應，而有著進行凝膠化之虞。

【0056】觸媒並無特別限定，惟可列舉：氫氧化鈉、氫氧化鉀、碳酸鉀等鹼性觸媒。由於脫鹵化氫反應難以完全進行，因此可使用相對於基質大量過量的非質子性極性溶劑，脫鹵化氫反應可進行 2 次或 3 次以上之複數次。例如，可將前述式(2)所示之化合物在有機溶劑中鹼觸媒存在下實施脫鹵化氫反應而獲得的溶液水洗後，再次返回反應容器中，加入鹼觸媒使其再度反應。藉此可提高脫鹵化氫化反應之進行度。亦即，能夠使目的化合物中含有的殘留鹵之質量濃度減少。作為殘留鹵之質量濃度，較佳為目的物中之 1 至 10000ppm，更佳為 1 至 1000ppm，又更佳為 1 至 750ppm。前述式(1)所示之化合物中含有的殘留鹵之質量濃度高，則在暴露於高頻波之際引起分子振動，尤其有著對正切損失等之電氣特性產生不利影響之虞。此外，殘留鹵之質量濃度高之情況下，HAST 試驗(High Accelerated Stress Test)等之環境試驗中，有著引起金屬腐蝕和離子遷移等問題之風險增大之虞，因此較佳為上述鹵含量。

【0057】前述式(5)所示之化合物的製法並無特別限定，惟例如，可使具有(2-溴乙基)苯結構的化合物與雙鹵化甲基芳基化合物(或者，雙羥甲基芳基化合物等)在鹽酸或磺酸、活性白土等酸觸媒下反應，亦可使具有(2-溴乙基)苯結構的化合物與雙羥甲基芳基化合物在鹽酸或磺酸、活性白土等酸

觸媒下反應。將磺酸等作為觸媒之情況下，萃取步驟可在以氫氧化鈉或氫氧化鉀等鹼金屬中和後進行。針對萃取步驟，可單獨使用甲苯或二甲苯等之芳香族烴溶劑，亦可併用環己烷或甲苯等之非芳香族烴。萃取後，將有機層用水洗滌至廢水呈中性為止，使用蒸發器等餾去溶劑及過多的具有(2-溴乙基)苯結構的化合物，從而可獲得在目的分子內具有至少 2 個以上、2-溴乙基乙基苯結構的化合物。

【0058】作為具有(2-溴乙基)苯結構的化合物之饋入比率，相對於雙鹵化甲基芳基化合物(或者，雙羥甲基芳基化合物等)1 莫耳，較佳為 1.0 至 4.0 倍，更佳為 1.0 至 3.0，又更佳為 1.0 至 2.0。饋入比率為 4.0 倍以下，則在將含有前述式(1)所示之化合物的樹脂溶液冷藏或冷凍保管之際，可避免結晶的顯著析出。此外，饋入比率為 1.0 倍以上，則可避免顯著產生高分子量體，且能夠藉由水洗純化。

前述式(5)所示之化合物中，使用 GPC 分析之 RI(示差折射率)檢測器，取得層析圖之切片數據，並可藉由對應於式(5)中之 n 為 1 的化合物的切片數據之面積(面積百分率)相對於對應於式(5)所示之化合物的切片數據之面積(訊號值之時間積分值)的總和的比率而求出式(5)中之 n 為 1 的化合物之含有率。作為前述式(5)中之 n 為 1 的化合物之含有率(面積百分率)，較佳為 25 至 75%，更佳為 30 至 60%，又更佳為 35 至 50%。多於 75%，則在將含有前述式(1)所示之化合物的樹脂溶液冷藏或冷凍保管之際，有著結晶顯著析出之虞。此外，未達 25%，則有高分子量體之反應性降低之虞。這是因為當在前述較佳條件下合成由前述式(5)所示之化合物衍生的前述式(1)所示之化合物時，高分子量體愈高，反應愈難進行之故。

【0059】作為具有(2-溴乙基)苯結構之化合物，可列舉例如：(2-溴乙基)苯、1-(2-溴乙基)-2-甲基苯、1-(2-溴乙基)-3-甲基苯、1-(2-溴乙基)-4-甲基苯、1-(2-溴乙基)-2,3-二甲基苯、1-(2-溴乙基)-2,4-二甲基苯、1-(2-溴乙基)-2,5-二甲基苯、1-(2-溴乙基)-2,6-二甲基苯等，惟並非限定於此等者。可單獨使用此等，亦可併用 2 種以上。碳數多則溶劑溶解性提升，惟由於耐熱性會降低，因此較佳為無取代或由碳數 1 至 3 之烷基取代者，更佳為無取代或由碳數 1 至 2 之烷基取代者，最佳為無取代或由甲基取代者。

【0060】作為雙鹵化甲基芳基化合物，可列舉例如：二氟鄰二甲苯、二氟間二甲苯、二氟對二甲苯、二氯鄰二甲苯、二氯間二甲苯、二氯對二甲苯、二溴鄰二甲苯、二溴間二甲苯、二溴對二甲苯、二碘鄰二甲苯、二碘間二甲苯、二碘對二甲苯等，惟並非限定於此等者。可單獨使用此等，亦可併用 2 種以上。就合成時之原料之反應性的觀點而言，較佳為氯系化合物、溴系化合物、碘系化合物，更佳為氯系化合物、溴系化合物。

【0061】作為雙羥甲基芳基化合物，可列舉例如：鄰苯二甲醇、間苯二甲醇、對苯二甲醇等，惟並非限定於此等者。可單獨使用此等，亦可併用 2 種以上。相對於具有(2-溴乙基)苯結構的化合物 1 質量份，此等之使用量較佳為 0.05 至 0.8 質量份，更佳為 0.1 至 0.6 質量份。

【0062】具有(2-溴乙基)苯結構的化合物與鹵化甲基芳基化合物等反應之際，因應需要，除了作為觸媒之鹽酸、磷酸、硫酸、甲酸、對甲苯磺酸、甲磺酸之外，可使用氯化鋁、氯化鋅等之路易斯酸、活性白土、酸性白土、白碳(white carbon)、沸石、矽酸鋁等之固體酸、酸性離子交換樹脂等。可單獨使用此等亦可併用二種以上。相對於使用的具有(2-溴乙基)苯結

構的化合物 1 莫耳，觸媒之使用量為 0.05 至 0.8 莫耳，較佳為 0.1 至 0.7 莫耳。觸媒之使用量過多，則反應溶液之黏度過高而有攪拌困難之虞，過少則有反應進行變慢之虞。可因應需要選擇使用己烷、環己烷、辛烷、甲苯、二甲苯等有機溶劑進行反應，亦可以無溶劑進行反應。例如：在具有(2-溴乙基)苯結構的化合物、鹵化甲基芳基化合物、及溶劑之混合溶液添加酸性觸媒後，在觸媒包含水之情況下，藉由共沸將水從體系內除去。之後，在 40 至 180℃，較佳為 50 至 170℃下進行 0.5 至 40 小時反應。反應結束後，可以鹼水溶液中和酸性觸媒，惟亦可不進行中和而直接進行水洗步驟。針對水洗步驟，在油層加入非水溶性有機溶劑，重複水洗直到廢水成為中性為止。

【0063】前述式(5)所示之化合物之軟化點較佳為 80℃以下，更佳為 70℃以下。軟化點屬於 80℃以下，則將前述式(5)所示之化合物衍生至前述式(1)所示之化合物之際的黏度變低。藉此，容易確保流動性，不損害玻璃布和碳纖維等之纖維狀材料的浸漬性，且容易使硬化性樹脂組成物成為預浸體化等半硬化狀態(B 階段化)。在增加稀釋溶劑以降低黏度之情況下，浸漬步驟中之硬化性樹脂組成物可能無法充分地附著於纖維狀材料。

【0064】〔阻聚劑〕

本實施型態之化合物及硬化性樹脂組成物可含有阻聚劑。藉由含有阻聚劑，可提升保管穩定性，同時可控制反應開始溫度。藉由控制反應開始溫度，容易確保流動性、不損害玻璃布和碳纖維等之纖維狀材料的浸漬性，且容易成為預浸體化等 B 階段化。在預浸體化時聚合反應過度進行，則在積層步驟中易於發生積層變得困難等問題。

【0065】阻聚劑可在合成前述式(1)所示之化合物時添加，亦可在合成後添加。相對於前述式(1)所示之化合物 100 重量份，阻聚劑之使用量為 0.008 至 1 重量份，較佳為 0.01 至 0.5 重量份。

【0066】作為阻聚劑，可列舉例如：酚系、硫系、磷系、受阻胺系、亞硝基系、硝醯基自由基系等。此外，阻聚劑可使用 1 種類，亦可複數併用。此等之中，本實施型態中，較佳為酚系、受阻胺系、亞硝基系、硝醯基自由基系之阻聚劑。

【0067】作為上述酚系阻聚劑，可列舉例如：2,6-二-三級丁基對甲酚、丁基化羥基苯甲醚、2,6-二-三級丁基對乙基苯酚、硬脂醇-β-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苯基)丙酸酯、異辛基-3-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苯基)丙酸酯、2,4-雙-(正辛硫基)-6-(4-羥基-3,5-二-三級丁基苯胺)-1,3,5-三嗪、2,4-雙[(辛硫基)甲基]鄰甲酚等之單酚類、2,2'-亞甲基雙(4-甲基-6-三級丁基苯酚)、2,2'-亞甲基雙(4-乙基-6-三級丁基苯酚)、4,4'-硫代雙(3-甲基-6-三級丁基苯酚)、4,4'-亞丁基雙(3-甲基-6-三級丁基苯酚)、三乙二醇-雙[3-(3-三級丁基-5-甲基-4-羥基苯基)丙酸酯]、1,6-正己烷二醇-雙[3-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苯基)丙酸酯]、N,N'-六亞甲基雙(3,5-二-三級丁基-4-羥基-氫化肉桂醯胺)、2,2-硫代-二乙烯雙[3-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苯基)丙酸酯]、3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基膦酸-二乙基酯、3,9-雙[1,1-二甲基-2-{β-(3-三級丁基-4-羥基-5-甲基苯基) 丙醯氧基}乙基]2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷、雙(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基磺酸乙基)鈣等之雙酚類、1,1,3-參(2-甲基-4-羥基-5-三級丁基苯基)丁烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-參(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)苯、肆-[亞甲基-3-(3',5'-二-三級丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯]

甲烷、雙[3,3'-雙-(4'-羥基-3'-三級丁基苯基)丁酸]乙二醇酯、參-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)-異氰脲酸酯、1,3,5-參(3',5'-二-三級丁基-4'-羥基苄基)-S-三嗪-2,4,6-(1H,3H,5H)三酮、生育酚等之高分子型酚類等，惟並非限於此等者。

【0068】作為上述硫系阻聚劑，可列舉例如：二月桂基-3,3'-硫代二丙酸酯、二肉荳蔻基-3,3'-硫代二丙酸酯、二硬脂基-3,3'-硫代二丙酸酯等，惟並非限於此等者。

【0069】作為上述磷系阻聚劑，可列舉例如：亞磷酸三苯酯、亞磷酸二苯基異癸基酯、亞磷酸苯基二異癸基酯、亞磷酸參(壬基苯基)酯、二異癸基新戊四醇亞磷酸酯、亞磷酸參(2,4-二-三級丁基苯基)酯、環狀新戊烷四醯雙(十八基)亞磷酸酯、環狀新戊烷四醯雙(2,4-二-三級丁基苯基)亞磷酸酯、環狀新戊烷四醯雙(2,4-二-三級丁基-4-甲基苯基)亞磷酸酯、雙[2-三級丁基-6-甲基-4-{2-(十八基氧基羰基)乙基}苯基]氫亞磷酸酯等之亞磷酸酯類、9,10-二氫基-9-氧基-10-磷雜菲-10-氧化物、10-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)-9,10-二氫基-9-氧基-10-磷雜菲-10-氧化物、10-癸氧基-9,10-二氫基-9-氧基-10-磷雜菲-10-氧化物等之氧磷雜菲氧化物類等，惟並非限於此等者。

【0070】作為上述受阻胺系阻聚劑，可列舉例如：ADEKA 股份有限公司製 Adekastab LA-40MP、Adekastab LA-40Si、Adekastab LA-402AF、Adekastab LA-87、Adekastab LA-82、Adekastab LA-81、Adekastab LA-77Y、Adekastab LA-77G、Adekastab LA-72、Adekastab LA-68、Adekastab LA-63P、Adekastab LA-57、Adekastab LA-52、

BASF 日本股份有限公司製 Chimassorb2020FDL、Chimassorb944FDL、Chimassorb944LD、Tinuvin622SF、TinuvinPA144、Tinuvin765、Tinuvin770DF、TinuvinXT55FB、Tinuvin111FDL、Tinuvin783FDL、Tinuvin791FB 等，惟並非限定於此等者。

【0071】作為上述亞硝基系阻聚劑，可列舉例如：對亞硝基酚、N-亞硝基二苯基胺、N-亞硝基苯基羥基胺之銨鹽、(銅鐵靈)等，惟並非限於此等者。此等之中，較佳為 N-亞硝基苯基羥基胺之銨鹽(銅鐵靈)。

【0072】作為上述硝醯基自由基系阻聚劑，可列舉例如：二-三級丁基硝基氧化物、2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-側氧基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-胺基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-甲氧基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-乙醯氧基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物、4-苯甲醯氧基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物等，惟並非限於此等者。

【0073】〔聚苯醚化合物〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可含有聚苯醚化合物。

作為聚苯醚化合物，就耐熱性與電氣特性之觀點而言，較佳為具有乙烯性不飽和鍵的聚苯醚化合物，更佳為具有丙烯醯基、甲基丙烯醯基、或苯乙烯結構的聚苯醚化合物。作為市售品，可列舉 SA-9000(SABIC 公司製、具有甲基丙烯醯基的聚苯醚化合物)和 OPE-2St 1200(三菱瓦斯化學公司製、具有苯乙烯結構的聚苯醚化合物)等。

聚苯醚化合物之數目平均分子量(Mn)較佳為 500 至 5000，更佳為 2000 至 5000，又更佳為 2000 至 4000。分子量未達 500，則有著作為硬化物之

耐熱性不充分之傾向。此外，分子量大於 5000，則溶融黏度變高，無法獲得充分的流動性，從而有著變得易於成型不良之傾向。此外，反應性亦降低，需要長時間進行硬化反應，未被納入硬化體系之未反應物增加，硬化物之玻璃轉移溫度降低，硬化物之耐熱性降低之傾向。

聚苯醚化合物之數目平均分子量為 500 至 5000，則維持優異的介電特性之同時，可展現出優異的耐熱性及成型性等。又，於此之數目平均分子量，具體而言，可使用凝膠滲透層析術等測定。

【0074】聚苯醚化合物可為藉由聚合反應而得者，亦可為使數目平均分子量 10000 至 30000 左右之高分子量的聚苯醚化合物再分配反應而得者。此外，可藉由將此等作為原料並與甲基丙烯醯氯、丙烯醯氯、氯甲基苯乙烯等具有乙烯性不飽和鍵的化合物反應而賦予自由基聚合性。藉由再分配反應而得的聚苯醚化合物，係例如，在酚化合物與自由基起始劑之存在下，使高分子量之聚苯醚化合物於甲苯等之溶劑中加熱並進行再分配反應而獲得。藉由如此之再分配反應而得的聚苯醚化合物，由於在分子鏈之兩末端具有源自賦予硬化的酚系化合物之羥基，因此除了可進一步維持高耐熱性以外，即使以具有乙烯性不飽和鍵的化合物改質後，亦可在分子鏈之兩末端導入官能基，從而較佳。此外，藉由聚合反應而得的聚苯醚化合物顯示優異的流動性，從而較佳。

【0075】聚苯醚化合物之分子量的調整，在藉由聚合反應而得的聚苯醚化合物之情況下，可藉由調整聚合條件等而進行。此外，在藉由再分配反應而得的聚苯醚化合物之情況下，可藉由調整再分配反應之條件等而調整獲得的聚苯醚化合物之分子量。更具體而言，可考慮調整在再分配反應

中使用的酚系化合物之調配量等。亦即，酚系化合物之調配量愈多，則獲得的聚苯醚化合物之分子量愈低。此時，作為接受再分配反應之高分子量的聚苯醚化合物，可使用聚(2,6-二甲基-1,4-伸苯基醚)等。此外，作為使用於前述再分配反應的酚系化合物，並無特別限定，惟較佳使用例如：如雙酚 A、苯酚酚醛、甲苯酚酚醛等之在分子中具有 2 個以上酚羥基的多官能酚系化合物。此等可單獨使用，亦可組合使用 2 種以上。

【0076】聚苯醚化合物之含量並無特別限定，惟相對於前述式(1)所示之化合物 100 質量份，較佳為 5 至 1000 質量份，更佳為 10 至 750 質量份。聚苯醚化合物之含量屬於上述範圍，則不僅耐熱性等優異，且可獲得充分發揮聚苯醚化合物所具有的優異介電特性的硬化物，從而較佳。

【0077】〔聚丁二烯及其改質物〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可含有聚丁二烯及其改質物。

聚丁二烯及其改質物意指在分子內具有聚丁二烯，或者源自聚丁二烯之結構的化合物。源自聚丁二烯之結構，可藉由氫添加將部分不飽和鍵，或者全部變更為單鍵。

作為聚丁二烯及其改質物，可列舉例如：聚丁二烯、羥基末端聚丁二烯、末端(甲基)丙烯酸酯化聚丁二烯、羧酸末端聚丁二烯、胺末端聚丁二烯、苯乙烯丁二烯橡膠等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。此等之中，就介電特性之觀點而言，較佳為聚丁二烯或苯乙烯丁二烯橡膠。作為苯乙烯丁二烯橡膠(SBR)，可列舉例如：RICON-100、RICON-181、RICON-184(均為 CRAY VALLEY 公司製)、1,2-SBS(日本曹達公司製)等，作為聚丁二烯，可列舉 B-1000、B-2000、B-3000(均為日本

曹達公司製)等。作為聚丁二烯及苯乙烯丁二烯橡膠之分子量，重量平均分子量較佳為 500 至 10000，更佳為 750 至 7500，又更佳為 1000 至 5000。上述範圍之下限以下，則揮發量多，在製作預浸體時難以調整固形份，在上述範圍之上限以上，則與其他硬化性樹脂之相溶性劣化。一般而言，在如雙順丁烯二醯亞胺或聚順丁烯二醯亞胺之含有氧或氮等之雜原子的化合物之情況下，起因於其極性，而難以確保與主要由烴所構成的化合物或者僅由烴所構成的化合物之低極性化合物的相溶性。另一方面，前述式(1)所示之化合物起因於其自體非積極導入氧或氮等之雜原子的骨架設計，因此其與具有低極性且低介電特性的材料、或僅由烴所構成的化合物的相溶性亦優異。

【0078】聚丁二烯及其改質物之含量，並無特別限定，惟相對於前述式(1)所示之化合物 100 質量份，較佳為 5 至 1000 質量份，更佳為 10 至 750 質量份。聚丁二烯及其改質物屬於上述範圍，則不僅耐熱性等優異，且可獲得充分發揮聚丁二烯及其改質物所具有的優異介電特性的硬化物，從而較佳。

【0079】〔聚苯乙烯及其改質物〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可含有聚苯乙烯及其改質物。

聚苯乙烯及其改質物意指在分子內具有聚苯乙烯，或者源自聚苯乙烯之結構的化合物。

作為聚苯乙烯及其改質物，可列舉例如：聚苯乙烯、苯乙烯與 2-異丙烯基-2-噁唑啉共聚物(Epocros RPS-1005、RP-61 均為日本觸媒公司製)、SEP(苯乙烯-伸乙基與丙烯共聚物：SEPTON 1020 KURARAY 公司製)、

SEPS(苯乙烯-伸乙基與丙烯-苯乙烯共聚物：SEPTON 2002、SEPTON 2004F、SEPTON 2005、SEPTON 2006、SEPTON 2063、SEPTON 2104 均為 KURARAY 公司製)、SEEPS(苯乙烯-伸乙基/乙烯與丙烯-苯乙烯嵌段共聚物：SEPTON 4003、SEPTON 4044、SEPTON 4055、SEPTON 4077、SEPTON 4099 均為 KURARAY 公司製)、SEBS(苯乙烯-伸乙基與丁烯-苯乙烯 嵌段共聚物：SEPTON 8004、SEPTON 8006、SEPTON 8007L 均為 KURARAY 公司製)、SEEPS-OH(在苯乙烯-伸乙基/乙烯與丙烯-苯乙烯嵌段共聚物之末端具有羥基的化合物：SEPTON HG252 KURARAY 公司製)、SIS(苯乙烯-異戊二烯-苯乙烯 嵌段共聚物：SEPTON 5125、SEPTON 5127 均為 KURARAY 公司製)、氫化 SIS(氫化苯乙烯-異戊二烯-苯乙烯 嵌段共聚物：HYABRAR 7125F、HYABRAR 7311F 均為 KURARAY 公司製)、SIBS(苯乙烯-異丁烯-苯乙烯嵌段共聚物：SIBSTAR073T、SIBSTAR102T、SIBSTAR103T(均為 Kaneka 公司製)、SEPTON V9827(KURARAY 公司製))等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。聚苯乙烯及其改質物較佳為不具不飽和鍵者，因此其具有高耐熱性且難以氧化劣化。此外，聚苯乙烯及其改質物之重量平均分子量只要為 10000 以上則無特別限定，惟若過大，則除了聚苯醚化合物以外，與重量平均分子量 50 至 1000 左右之低分子量成分、及重量平均分子量 1000 至 5000 左右之寡聚物成分的相溶性劣化，且難以確保混合及溶劑穩定性，從而較佳為 10000 至 300000 左右。

【0080】聚苯乙烯及其改質物之含量並無特別限定，惟相對於前述式(1)所示之化合物 100 質量份，較佳為 5 至 1000 質量份，更佳為 10 至 750

質量份。苯乙烯及其改質物屬於上述範圍，則不僅耐熱性等優異，且可獲得充分發揮聚苯乙烯及其改質物所具有的優異介電特性的硬化物，從而較佳。

【0081】〔無機充填劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物亦可含有無機填充劑。作為無機填充劑，可列舉例如：熔融二氧化矽、結晶二氧化矽、多孔質二氧化矽、氧化鋁、鋯石、矽酸鈣、碳酸鈣、石英粉、碳化矽、氮化矽、氮化硼、氧化鋯、氮化鋁、石墨、鎂橄欖石、滑石、尖晶石、莫來石、二氧化鈦、滑石、黏土、氧化鐵石棉、玻璃粉等粉末、或將此等製成球形狀或粉碎後的無機填料等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0082】在獲得半導體密封用之硬化性樹脂組成物之情況下，於硬化性樹脂組成物 100 質量份中，無機填充材之使用量較佳為 80 至 92 質量份，更佳為 83 至 90 質量份。此外，在獲得層間絕緣層形成材料、銅積層板和預浸體、RCC 等之基板材料用之硬化性樹脂組成物之情況下，於硬化性樹脂組成物 100 質量份中，上述無機填充材之使用量較佳為 5 至 80 質量份，更佳為 10 至 60 質量份。

【0083】〔硬化促進劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可藉由添加硬化促進劑而提升硬化性。作為硬化促進劑，藉由紫外線或可見光之照射或加產生陰離子以促進硬化反應的陰離子系硬化促進劑，或者較佳為藉由紫外線或可見光之照射或加熱產生陽離子以促進硬化反應的陽離子系硬化促進劑。

作為陰離子系硬化促進劑，可列舉例如：2-甲基咪唑、2-乙基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑等之咪唑類、三乙基胺、三丁基胺等之三烷基胺、4-二甲基胺基吡啶、苄基二甲基胺、2,4,6,-參(二甲基胺基甲基)酚、1,8-二氮雜雙環(5,4,0)-十一碳烯等，較佳為 4-二甲基胺基吡啶、1,8-二氮雜雙環(5,4,0)-十一碳烯。除此之外，可列舉：三苯基膦等之膦類、四丁基銨鹽、三異丙基甲基銨鹽、三甲基癸基銨鹽、十六基三甲基銨鹽、十六烷基三甲基氫氧化銨等之 4 級銨鹽等。

作為陽離子系硬化促進劑，可列舉例如：三苯基苄基鏻鹽、三苯基乙基鏻鹽、四丁基鏻鹽等之 4 級鏻鹽(4 級鹽之相對離子為鹵素、有機酸根離子、氫氧根離子等，並無特別指定，惟特佳為有機酸根離子、氫氧根離子)、辛酸錫、羧酸鋅(2-乙基正己烷酸鋅、硬脂酸鋅、二十二酸鋅、肉豆蔻酸鋅)、磷酸酯鋅(辛基磷酸鋅、硬脂醇磷酸鋅)等之過度金屬化合物(過度金屬鹽)等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0084】硬化促進劑之調配量，相對於硬化性樹脂組成物中除以無機填充劑(填料)之不揮發分的合計 100 質量份，因應需要為 0.01 至 5.0 質量份。

【0085】〔聚合起始劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物，亦可藉由添加聚合起始劑提升硬化性。聚合起始劑係能使乙烯性不飽和鍵等之烯烴官能基聚合的化合物，且列舉：烯烴複分解聚合起始劑、陰離子聚合起始劑、陽離子聚合起始劑、及自由基聚合起始劑。其中，較佳使用具有硬化性及適度穩定性的自由基聚合起始劑。以鉬為中心金屬的 Schrock 觸媒等之烯烴複分解聚合起始劑

等之陰離子聚合起始劑、和三乙基鋁等之陽離子聚合起始劑之情況下，與空氣中的水分反應等從而穩定性差。

自由基聚合起始劑意指藉由紫外線或可見光之照射或加熱產生的自由基，使連鏈聚合反應起始的化合物。作為可使用的自由基聚合起始劑，可列舉有機過氧化物、偶氮系化合物、四苯-1,2-乙二醇(Benzopinacol)類等，就硬化溫度控制和脫氣抑制、對分解物之電氣特性影響小而言，較佳使用有機過氧化物。

作為上述有機過氧化物，可列舉例如：過氧化甲基乙基酮、過氧化乙醯丙基酮等之過氧化酮類、過氧化苯甲醯等之二醯基過氧化類、過氧化二異丙苯、1,3-雙-(三級丁基過氧異丙基)-苯等之二烷基過氧化類、過氧化苯甲酸三級丁酯、1,1-二-三級丁基過氧環己烷等之過氧縮酮類、α-過氧新癸酸異丙苯酯、過氧新癸酸三級丁酯、過氧新戊酸三級丁酯、過氧-2-乙基己酸 1,1,3,3-四甲基丁酯、過氧-2-乙基己酸三級戊酯、過氧-2-乙基己酸三級丁酯、過氧-3,5,5-三甲基己酸三級戊酯、過氧-3,5,5-三甲基己酸三級丁酯、過氧苯甲酸三級戊酯等之烷基過酸酯類、過氧二碳酸二-2-乙基己酯、雙(4-三級丁基環己基)過氧二碳酸酯、過氧異丙基碳酸三級丁酯、1,6-雙(三級丁基過氧羰氧基)正己烷等之過氧碳酸酯類、過氧化三級丁基氫、過氧化異丙苯氫、過氧化辛酸三級丁酯、過氧化月桂醯等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。上述有機過氧化物之中，較佳為過氧化酮類、過氧化二醯基類、過氧化氫類、過氧化二烷基類、過氧縮酮類、烷基過酸酯類、過氧碳酸酯類等，更佳為過氧化二烷基類。

作為上述偶氮系化合物，可列舉例如：偶氮二異丁腈、4,4'-偶氮雙(4-氰基戊酸)、2,2'-偶氮雙(2,4-二甲基戊腈)等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0086】作為聚合起始劑之添加量，以硬化性樹脂組成物中除以無機填充劑(填料)之不揮發分的合計設為 100 質量份之情況下，較佳為 0.01 至 5 質量份，特佳為 0.01 至 3 質量份。使用的聚合起始劑之量未達 0.01 質量份，則在聚合反應時有分子量無法充分地伸長之虞，多於 5 質量份，則有損害介電率、正切損失等之介電特性之虞。

【0087】〔難燃劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可使用難燃劑。作為難燃劑，可列舉例如：鹵素系難燃劑、無機系難燃劑(銻化合物、金屬氫氧化物、氮化合物、硼化合物等)、磷系難燃劑等，惟就達成無鹵素難燃性之觀點而言，較佳為磷系難燃劑。

作為上述磷系難燃劑可為反應型者、或添加型者。作為具體例，可列舉：磷酸三甲酯、磷酸三乙酯、磷酸三甲苯酯、三二甲苯磷酸酯、甲酚二苯基磷酸酯、甲酚-二-2,6-二甲苯磷酸酯、1,3-伸苯基雙(磷酸二二甲苯酯)、1,4-伸苯基雙(磷酸二二甲苯酯)、4,4'-聯苯(磷酸二二甲苯酯)等之磷酸酯類、9,10-二氫基-9-氧基-10-磷雜菲-10-氧化物、10(2,5-二羥基苯基)-10H-9-氧基-10-磷雜菲-10-氧化物等之磷烷類、及使環氧樹脂與前述磷烷類之活性氫反應而得的磷含有環氧化合物、赤磷等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。上述例示物質之中，較佳為磷酸酯類、磷烷類或磷含有環氧化合物，特佳為 1,3-伸苯基雙(磷酸二二甲苯酯)、1,4-伸

苯基雙(磷酸二二甲苯酯)、4,4'-聯苯(磷酸二二甲苯酯)或磷含有環氧化合物。

【0088】以硬化性樹脂組成物中除以無機填充劑(填料)之不揮發分的合計設為 100 質量份之情況下，難燃劑之含量較佳為 0.1 至 0.6 質量份之範圍。未達 0.1 質量份則有難燃性變得不充分之虞，多於 0.6 質量份則有硬化物之吸濕性、介電特性受到不良影響之虞。

【0089】〔光穩定劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可使用光穩定劑。作為光穩定劑，為受阻胺系之光穩定劑，特佳為 HALS(受阻胺系光穩定劑，Hindered Amine Light Stabilizers)等。作為 HALS，可列舉例如：二丁基胺與 1,3,5-三嗪與 N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基-1,6-六亞甲基二胺與 N-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)丁基胺之反應物、丁二酸二甲基-1-(2-羥基乙基)-4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶反應物、聚〔｛6-(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三嗪-2,4-二基｝｛(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基｝六亞甲基｛(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基｝〕、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)〔〔3,5-雙(1,1-二甲基乙基)-4-羥基苯基〕甲基〕丙二酸丁酯、雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、雙(1-辛氧基-2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)2-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)-2-正丁基丙二酸酯等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0090】光穩定劑之含量，以硬化性樹脂組成物中除以無機填充劑(填料)之不揮發分的合計設為 100 質量份之情況下，較佳為 0.001 至 10 質量

份之範圍。未達 0.001 質量份則有無法充分地發揮光穩定效果之虞，多於 10 質量份則有硬化物之吸濕性、介電特性受到不良影響之虞。

【0091】〔黏結劑樹脂〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可使用黏結劑樹脂。作為黏結劑樹脂，可列舉例如：丁縮醛系樹脂、乙縮醛系樹脂、丙烯酸系樹脂、環氧-耐綸系樹脂、NBR-酚系樹脂、環氧-NBR 系樹脂、矽氧系樹脂等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0092】黏結劑樹脂之調配量，較佳為不損害硬化物之難燃性、耐熱性的範圍，以硬化性樹脂組成物中除以無機填充劑(填料)之不揮發分的合計設為 100 質量份之情況下，較佳為 0.05 至 50 質量份，更佳為 0.05 至 20 質量份。

【0093】〔添加劑〕

本實施型態之硬化性樹脂組成物可使用添加劑。作為添加劑，可列舉例如：改質丙烯腈共聚物、聚乙烯、氟樹脂、矽凝膠、矽油、矽烷偶合劑之填充材的表面處理劑、離型劑、碳黑、酞青藍、酞青綠等之著色劑。

【0094】添加劑之調配量，相對於硬化性樹脂組成物 100 質量份，較佳為 1,000 質量份以下，更佳為 700 質量份以下之範圍。

【0095】本實施型態之硬化性樹脂組成物，可進一步使用：環氧樹脂、活性酯化合物、酚樹脂、胺樹脂、順丁烯二醯亞胺化合物、具有乙烯性不飽和鍵的化合物、異氰酸酯樹脂、聚醯胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、氰酸酯樹脂等，可使用 1 種類，亦可複數使用。此等之化合物中，就耐熱性、密著性、介電特性之平衡而言，較佳為含有：具有乙烯性不飽和鍵的化合物、

氰酸酯樹脂。藉由含有此等之化合物，可改善硬化物之脆性及提供對金屬的密著性，在回流焊時和冷熱循環等之可靠性試驗中可抑制封裝的裂紋。

【0096】除非另有規定，相對於前述式(1)所示之化合物，上述化合物之使用量較佳為 10 質量倍以下，更佳為 5 質量倍以下，特佳為 3 質量倍以下之質量範圍。此外，較佳下限值為 0.1 質量倍以上，更佳為 0.25 質量倍以上，又更佳為 0.5 質量倍以上。藉由設為上述範圍內，可在利用前述式(1)所示之化合物的耐熱性和介電特性之效果的同時，附加要添加的各化合物的效果。針對此等之成分，可使用以下例示者。

【0097】〔環氧樹脂〕

作為環氧樹脂，係例示以下較佳者，惟並非限於此等者。又，環氧樹脂之性狀可為液狀或固形，可使用 1 種類或複數併用。

【0098】作為液狀環氧樹脂，可列舉例如：雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、雙酚 AF 型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、環氧丙基酯型環氧樹脂、環氧丙基胺型環氧樹脂、苯酚酚醛型環氧樹脂、具有酯骨架之脂環式環氧樹脂、環己烷型環氧樹脂、環己烷二甲醇型環氧樹脂、環氧丙基胺型環氧樹脂、及具有丁二烯結構之環氧樹脂等。作為具體例，可列舉：「RE310S」、「RE410S」(以上，日本化藥公司製、雙酚 A 型環氧樹脂)、「RE303S」、「RE304S」、「RE403S」、「RE404S」(以上，日本化藥公司製、雙酚 F 型環氧樹脂)、「HP4032」、「HP4032D」、「HP4032SS」(以上，DIC 公司製、萘型環氧樹脂)、「828US」、「jER828EL」、「825」、「828EL」(以上，三菱化學公司製、雙酚 A 型環氧樹脂)、「jE807」、「1750」(以上，三菱化學公司製、雙酚 F 型環氧樹脂)、「jER152」(三菱化學公司

製、苯酚酚醛型環氧樹脂)、「630」、「630LSD」(以上，三菱化學公司製、環氧丙基胺型環氧樹脂)、「ZX1059」(新日鐵住金化學公司製、雙酚 A 型環氧樹脂與雙酚 F 型環氧樹脂之混合品)、「EX-721」(Nagase ChemteX 公司製、環氧丙基酯型環氧樹脂)、「CELLOXIDE 2021P」(DAICEL 公司製、具有酯骨架之脂環式環氧樹脂)、「PB-3600」(DAICEL 公司製、具有丁二烯結構之環氧樹脂)、「ZX1658」、「ZX1658GS」(以上，新日鐵住金化學公司製、液狀 1,4-環氧丙基環己烷型環氧樹脂)等。此等者可單獨使用 1 種，亦可組合使用 2 種以上。

【0099】作為固形環氧樹脂，可列舉例如：聯二甲酚型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、萘型 4 官能環氧樹脂、甲苯酚酚醛型環氧樹脂、雙環戊二烯型環氧樹脂、參酚型環氧樹脂、萘酚型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、伸萘基醚型環氧樹脂、蒽型環氧樹脂、雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 AF 型環氧樹脂、四苯基乙烷型環氧樹脂，較佳為萘酚型環氧樹脂、雙酚 AF 型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、及聯苯型環氧樹脂。作為具體例，可列舉：「HP4032H」(DIC 公司製、萘型環氧樹脂)、「HP-4700」、「HP-4710」(以上，DIC 公司製、萘型 4 官能環氧樹脂)、「N-690」(DIC 公司製、甲苯酚酚醛型環氧樹脂)、「N-695」(DIC 公司製、甲苯酚酚醛型環氧樹脂)、「HP-7200」(DIC 公司製、雙環戊二烯型環氧樹脂)、「HP-7200」、「HP-7200HH」、「HP-7200H」(以上，DIC 公司製、雙環戊二烯型環氧樹脂)、「EXA-7311」、「EXA-7311-G3」、「EXA-7311-G4」、「EXA-7311-G4S」、「HP-6000」(以上，DIC 公司製、伸萘基醚型環氧樹脂)、「EPPN-502H」(日本化藥公司製、參酚型環氧樹脂)、「NC-7000L」、「NC-7300」(以上，日本化藥

公司製、萘酚-甲苯酚酚醛型環氧樹脂)、「NC-3000H」、「NC-3000」、「NC-3000L」、「NC-3100」(以上，日本化藥公司製、聯苯芳烷基型環氧樹脂)、「XD-1000-2L」、「XD-1000-L」、「XD-1000-H」、「XD-1000-H」(以上，日本化藥公司製、雙環戊二烯型環氧樹脂)、「ESN475V」(新日鐵住金化學公司製、萘酚型環氧樹脂)、「ESN485」(新日鐵住金化學公司製、萘酚酚醛型環氧樹脂)、「YX-4000H」、「YX-4000」、「YL6121」(以上，三菱化學公司製、聯苯型環氧樹脂)、「YX-4000HK」(三菱化學公司製、聯二甲酚型環氧樹脂)、「YX-8800」(三菱化學公司製、蒽型環氧樹脂)、「PG-100」、「CG-500」(大阪燃氣化學公司製、芴系環氧樹脂)、「YL-7760」(三菱化學公司製、雙酚 AF 型環氧樹脂)、「YL-7800」(三菱化學公司製、芴型環氧樹脂)「jER1010」(三菱化學公司製、固體狀雙酚 A 型環氧樹脂)、「jER1031S」(三菱化學公司製、四苯基乙烷型環氧樹脂)等。此等者可單獨使用 1 種，亦可組合使用 2 種以上。

【0100】〔活性酯化合物〕

活性酯化合物意指在結構體中含有至少 1 個酯鍵結，且在酯鍵結之兩側鍵結有脂肪族鏈、脂肪族環或芳香族環的化合物。作為活性酯化合物，可列舉例如：酚酯類、硫酚酯類、N-羥基胺酯類、複數環羥基化合物之酯類等之在 1 分子中具有 2 個以上高反應活性酯基的化合物，係藉由羧酸化合物、醯氯、或硫羧酸化合物之至少一種化合物、與羥基化合物或硫醇化合物之至少一種化合物進行縮合反應而得。尤其，就耐熱性提升之觀點而言，較佳為由羧酸化合物、或醯氯與羥基化合物而得，作為羥基化合物，

較佳為酚化合物或萘酚化合物。活性酯化合物可單獨使用 1 種，亦可組合使用 2 種以上。

【0101】作為上述羧酸化合物，可列舉例如：苯甲酸、乙酸、丁二酸、順丁烯二酸、伊康酸、鄰苯二甲酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、焦蜜石酸等。

【0102】作為上述醯氯，可列舉例如：乙醯氯、丙烯醯氯、甲基丙烯醯氯、丙二醯氯、丁二醯二氯、二甘胺醯氯、戊二酸二氯、辛二酸二氯、癸二酸二氯、己二酸二氯、十二烷二醯氯、壬醯氯、2,5-呋喃二甲醯氯、鄰苯二甲醯氯、間苯二甲醯氯、對苯二甲醯氯、苯三甲醯氯、雙(4-氯羰基苯基)醚、4,4'-二苯基二碳醯氯、4,4'-偶氮二苯甲醯二氯等。

【0103】作為上述酚化合物及上述萘酚化合物，可列舉例如：氫醌、間苯二酚、雙酚 A、雙酚 F、雙酚 S、酸式酚酞、甲基化雙酚 A、甲基化雙酚 F、甲基化雙酚 S、酚、鄰甲酚、間甲酚、對甲酚、鄰苯二酚、α-萘酚、β-萘酚、1,5-二羥基萘、1,6-二羥基萘、2,6-二羥基萘、二羥基二苯甲酮、三羥基二苯甲酮、四羥基二苯甲酮、間苯三酚、苯三醇、雙環戊二烯型二酚化合物、苯酚酚醛、後述酚樹脂等。於此，「雙環戊二烯型二酚化合物」意指藉由雙環戊二烯 1 分子與酚 2 分子縮合而得的二酚化合物。

【0104】作為活性酯化合物之較佳具體例，可列舉：包含雙環戊二烯型二酚結構之活性酯化合物、包含萘結構之活性酯化合物、包含苯酚酚醛之乙醯化物的活性酯化合物、包含苯酚酚醛之苯甲醯化物的活性酯化合物、國際公開第 2020/095829 號實施例 2 所記載之化合物、國際公開第 2020/059625 號所揭示的化合物等。其中，更佳為包含萘結構之活性酯化

合物、包含雙環戊二烯型二酚結構之活性酯化合物。雙環戊二烯型二酚結構表示由伸苯基-二環戊烯-伸苯基所構成之 2 價結構單元。

【0105】作為活性酯化合物之市售品，例如：作為包含雙環戊二烯型二酚結構之活性酯化合物，可列舉「EXB9451」、「EXB9460」、「EXB9460S」、「HPC-8000-65T」、「HPC-8000H-65TM」、「EXB-8000L-65TM」、「EXB-8150-65T」(DIC 公司製)，作為包含萘結構之活性酯化合物，可列舉「EXB9416-70BK」(DIC 公司製)，作為包含苯酚酚醛之乙醯化物的活性酯化合物，可列舉「DC808」(三菱化學公司製)，作為包含苯酚酚醛之苯甲醯化物的活性酯化合物，可列舉「YLH1026」、「YLH1030」、「YLH1048」(三菱化學公司製)，作為屬於苯酚酚醛之乙醯化物的活性酯系硬化劑，可列舉「DC808」(三菱化學公司製)，作為含磷原子之活性酯系硬化劑，可列舉 DIC 公司製之「EXB-9050L-62M」等。

【0106】有關活性酯化合物及環氧樹脂之調配比，活性酯當量(α)與環氧當量(β)之比率(α/β)較佳為 0.5 至 1.5，更佳為 0.8 至 1.2，又更佳為 0.90 至 1.10。上述範圍以外之情況，則有體系中殘留過多環氧基或者活性酯基之虞，在高溫放置試驗(150℃、1000 小時等)和高溫高濕條件下(溫度：85℃、濕度：85%等)之長期可靠性試驗等有特性劣化之虞。

【0107】〔酚樹脂〕

酚樹脂意指在分子內具有 2 個以上酚羥基的化合物。作為酚樹脂，可列舉例如：酚類與醛類之反應物、酚類與二烯化合物之反應物、酚類與酮類之反應物、酚類與取代聯苯類之反應物、酚類與取代苯基類之反應物、

雙酚類與醛類之反應物等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

以下例示上述各原料之具體例，惟並非限於此等者。

＜酚類＞

酚、烷基取代酚、芳香族取代酚、氫醌、間苯二酚、萘酚、烷基取代萘酚、二羥基苯、烷基取代二羥基苯、二羥基萘等。

＜醛類＞

甲醛、乙醛、烷基醛、苯甲醛、烷基取代苯甲醛、羥基苯甲醛、萘醛、戊二醛、苯二甲醛、巴豆醛、肉桂醛、糠醛等。

＜二烯化合物＞

雙環戊二烯、萜類、乙烯基環己烯、降莰烷二烯、乙烯基降莰烷烯、四氫茚、二乙烯基苯、二乙烯基聯苯、二異丙烯基聯苯、丁二烯、異戊二烯等。

＜酮類＞

丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁酮、苯乙酮、二苯甲酮、苯乙酮等。

＜取代聯苯類＞

4,4’-雙(氯甲基)-1,1’-聯苯、4,4’-雙(甲氧基甲基)-1,1’-聯苯、4,4’-雙(羥基甲基)-1,1’-聯苯等。

＜取代苯基類＞

1,4-雙(氯甲基)苯、1,4-雙(甲氧基甲基)苯、1,4-雙(羥基甲基)苯等。

【0108】〔胺樹脂〕

胺樹脂意指在分子內具有 2 個以上胺基的化合物。作為胺樹脂，可列舉例如：二胺基二苯基甲烷、二胺基二苯碸、異佛酮二胺、萜二胺、苯胺酚醛(苯胺與福馬林之反應物)、N-甲苯胺酚醛(N-甲苯胺與福馬林之反應物)、鄰乙苯胺酚醛(鄰乙苯胺與福馬林之反應物)、2-甲苯胺與福馬林之反應物、2,6-二異丙苯胺與福馬林之反應物、2,6-二乙苯胺與福馬林之反應物、2-乙基-6-乙苯胺與福馬林之反應物、2,6-二甲苯胺與福馬林之反應物、苯胺與二甲苯氯之反應而得的苯胺樹脂、日本專利第 6429862 號公報所記載的苯胺與取代聯苯類(4,4'-雙(氯甲基)-1,1'-聯苯及 4,4'-雙(甲氧基甲基)-1,1'-聯苯等)之反應物、苯胺與取代苯基類(1,4-雙(氯甲基)苯、1,4-雙(甲氧基甲基)苯及 1,4-雙(羥基甲基)苯等)之反應物、4,4'-(1,3-伸苯基二亞異丙基)雙苯胺、4,4'-(1,4-伸苯基二亞異丙基)雙苯胺、苯胺與二異丙烯基苯之反應物、二聚二胺等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0109】〔順丁烯二醯亞胺化合物〕

順丁烯二醯亞胺化合物意指在分子內具有 1 個以上順丁烯二醯亞胺基的化合物。本實施型態之硬化性樹脂組成物可含有順丁烯二醯亞胺化合物。作為順丁烯二醯亞胺化合物，可列舉例如：4,4'-二苯基甲烷雙順丁烯二醯亞胺、聚苯基甲烷順丁烯二醯亞胺、間伸苯基雙順丁烯二醯亞胺、2,2'-雙〔4-(4-順丁烯二醯亞胺苯氧基)苯基〕丙烷、3,3'-二甲基-5,5'-二乙基-4,4'-二苯基甲烷雙順丁烯二醯亞胺、4-甲基-1,3-伸苯基雙順丁烯二醯亞胺、4,4'-二苯基醚雙順丁烯二醯亞胺、4,4'-二苯基碸雙順丁烯二醯亞胺、1,3-雙(3-順丁烯二醯亞胺苯氧基)苯、1,3-雙(4-順丁烯二醯亞胺苯氧基)苯)、

Xyloc 型順丁烯二醯亞胺化合物(ANILIX 順丁烯二醯亞胺、三井化學 FINE 公司製)、聯苯芳烷基型順丁烯二醯亞胺化合物(日本特開 2009-001783 號公報之實施例 4 記載之藉由將包含順丁烯二醯亞胺化合物(M2)的樹脂溶液在減壓下溶劑餾去而固形化者)、雙胺基異丙苯基苯型順丁烯二醯亞胺(國際公開第 2020/054601 號記載之順丁烯二醯亞胺化合物)、日本專利-6629692 號或、國際公開第 2020/217679 號記載之具有茚烷結構的順丁烯二醯亞胺化合物、MATERIAL STAGE Vol.18,No.12 2019『~續・環氧樹脂 CAS 編號物語~硬化劑 CAS 編號備忘錄 第 31 回 雙順丁烯二醯亞胺(1)』、和 MATERIAL STAGE Vol.19,No.2 2019『~續・環氧樹脂 CAS 編號物語~硬化劑 CAS 編號備忘錄 第 32 回 雙順丁烯二醯亞胺(2)』中公開的順丁烯二醯亞胺化合物等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0110】相對於前述式(1)所示之化合物，作為式順丁烯二醯亞胺化合物的添加量較佳為 10 質量倍以下，更佳為 5 質量倍以下，特佳為 3 質量倍以下之質量範圍。此外，較佳下限值為 0.01 質量倍以上，更佳為 0.1 質量倍以上。屬於上述範圍，則可發揮前述式(1)所示之化合物之耐熱性、介電特性、低吸水性之效果。

【0111】〔含有乙烯性不飽和鍵之化合物〕

含有乙烯性不飽和鍵之化合物意指，無論使用或不使用聚合起始劑，在分子內具有 1 個以上可藉由熱或者光聚合之乙烯性不飽和鍵的化合物。

作為含有乙烯性不飽和鍵的化合物，可列舉例如：前述之酚樹脂與含乙烯性不飽和鍵之鹵素系化合物(氯甲基苯乙烯、烯丙基氯、甲基烯丙基氯、

丙烯醯氯、甲基丙烯醯氯等)之反應物、含有乙烯性不飽和鍵之酚類(2-烯丙基酚、2-丙烯基酚、4-烯丙基酚、4-丙烯基酚、丁香酚、異丁香酚等)與鹵素系化合物(1,4-雙(氯甲基)苯、4,4'-雙(氯甲基)聯苯、4,4'-二氟二苯甲酮、4,4'-二氯二苯甲酮、4,4'-二溴二苯甲酮、三聚氯化氰等)之反應物、環氧樹脂或醇類與(甲基)丙烯酸類(丙烯酸、甲基丙烯酸等)之反應物及此等之酸變性化物等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0112】〔異氰酸酯樹脂〕

異氰酸酯樹脂意指在分子內具有 2 個以上異氰酸酯基的化合物。作為異氰酸酯樹脂，可列舉例如：對伸苯基二異氰酸酯、間伸苯基二異氰酸酯、對二甲苯二異氰酸酯、間二甲苯二異氰酸酯、2,4-甲苯二異氰酸酯、2,6-甲苯二異氰酸酯、4,4'-二苯基甲烷二異氰酸酯、萘二異氰酸酯等之芳香族二異氰酸酯類、異佛酮二異氰酸酯、六亞甲基二異氰酸酯、4,4'-二環己基甲烷二異氰酸酯、氫化二甲苯二異氰酸酯、降莰烯二異氰酸酯、離胺酸二異氰酸酯等之脂肪族或脂環結構之二異氰酸酯類、異氰酸酯單體之一種類以上的彈體、或將上述二異氰酸酯化合物 3 聚而成的異氰酸酯體等之聚異氰酸酯、藉由上述異氰酸酯化合物與多元醇化合物之胺甲酸乙酯化反應而得的聚異氰酸酯等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

【0113】〔聚醯胺樹脂〕

作為聚醯胺樹脂，可列舉例如：二胺、二異氰酸酯、噁唑啉之任 1 種以上與二羧酸之反應物、二胺與醯氯之反應物、內醯胺化合物之開環聚合物。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

以下例示上述各原料之具體例，惟並非限於此等者。

＜二胺＞

乙二胺、三亞甲基二胺、四亞甲基二胺、五亞甲基二胺、六亞甲基二胺、庚亞甲基二胺、辛亞甲基二胺、壬亞甲基二胺、癸二胺、十一烷二胺、十二烷二胺、十三烷二胺、十四烷二胺、十五烷二胺、十六烷二胺、十七烷二胺、十八烷二胺、十九烷二胺、二十烷二胺、2-甲基-1,5-二胺基戊烷、2-甲基-1,8-二胺基辛烷、二聚二胺、環己烷二胺、雙-(4-胺基環己基)甲烷、雙(3-甲基-4-胺基環己基)甲烷、二甲苯二胺、降莰烯二胺、異佛酮二胺、雙胺基甲基三環癸烷、伸苯基二胺、二乙基甲苯二胺、萘二胺、二胺基二苯基甲烷、雙(4-胺基-3,5-二甲基苯基)甲烷雙(4-胺基-3,5-二乙基苯基)甲烷、4,4’-亞甲基雙-鄰甲苯胺、4,4’-亞甲基雙-鄰乙苯胺、4,4’-亞甲基雙-2-乙基-6-甲苯胺、4,4’-亞甲基雙-2,6-二異丙苯胺、4,4-乙二苯胺、二胺基二苯碸、二胺基二苯基醚、1,3-雙(3-胺基苯氧基)苯、1,3-雙(4-胺基苯氧基)苯、4,4-雙(4-胺基苯氧基)聯苯、2,2-雙[4-(4-胺基苯氧基)苯基]丙烷、雙[4-(4-胺基苯氧基)苯基]碸、2,2-雙(3-胺基-4-羥基苯基)丙烷、2,2-雙(4-胺基苯基)六氟丙烷、4,4’-(1,3-伸苯基二亞異丙基)雙苯胺、4,4’-(1,4-伸苯基二亞異丙基)雙苯胺、9,9-雙(4-胺基苯基)芴、2,7-二胺基芴、胺基苄基胺、二胺基二苯甲酮等。

＜二異氰酸酯＞

苯二異氰酸酯、甲苯二異氰酸酯、1,3-雙(異氰酸基甲基)苯、1,3-雙(異氰酸基甲基)環己烷、雙(4-異氰酸基苯基)甲烷、異佛酮二異氰酸酯、1,3-雙

(2-異氰酸基-2-丙基)苯、2,2-雙(4-異氰酸基苯基)六氟丙烷、二環己基甲烷-4,4'-二異氰酸酯等。

＜二羧酸＞

草酸、丙二酸、丁二酸、戊二酸、己二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十一烷二酸、十二烷二酸、對苯二甲酸、間苯二甲酸、5-羥基間苯二甲酸、2-氯對苯二甲酸、2-甲基對苯二甲酸、5-甲基間苯二甲酸、5-間苯二甲酸磺酸鈉、六氫對苯二甲酸、六氫間苯二甲酸、環己烷二羧酸、聯苯二羧酸、萘二羧酸、二苯甲酮二羧酸、呋喃二羧酸、4,4'-二羧基二苯基醚、4,4'-二羧基二苯基硫醚等。

＜醯氯＞

乙醯氯、丙烯醯氯、甲基丙烯醯氯、丙二醯氯、丁二醯二氯、二甘胺醯氯、戊二酸二氯、辛二酸二氯、癸二酸二氯、己二酸二氯、十二烷二醯氯、壬醯氯、2,5-呋喃二甲醯氯、鄰苯二甲醯氯、間苯二甲醯氯、對苯二甲醯氯、苯三甲醯氯、雙(4-氯羰基苯基)醚、4,4'-二苯基二碳醯氯、4,4'-偶氮二苯甲醯二氯等。

＜內醯胺＞

ε-己內醯胺、ω-十一烷內醯胺、ω-月桂內醯胺等。

【0114】〔聚醯亞胺樹脂〕

作為聚醯亞胺樹脂，可列舉例如：前述二胺與以下例示的四羧酸二酐之反應物，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

＜四羧酸二酐＞

4,4'-(六氟亞異丙基)二鄰苯二甲酸酐、5-(2,5-二側氧基四氫-3-呋喃基)-3-甲基-環己烯-1,2 二羧酸酐、焦蜜石酸二酐、1,2,3,4-苯四羧酸二酐、3,3',4,4'-二苯甲酮四羧酸二酐、2,2',3,3'-二苯甲酮四羧酸二酐、3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐、3,3',4,4'-二苯碸四羧酸二酐、2,2',3,3'-聯苯四羧酸二酐、亞甲基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,1-亞乙基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、2,2'-亞丙基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,2-伸乙基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,3-三亞甲基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,4-四亞甲基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,5-五亞甲基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、4,4'-氧基二鄰苯二甲酸二酐、硫代-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、磺醯基-4,4'-二鄰苯二甲酸二酐、1,3-雙(3,4-二羧基苯基)苯二酐、1,3-雙(3,4-二羧基苯氧基)苯二酐、1,4-雙(3,4-二羧基苯氧基)苯二酐、1,3-雙[2-(3,4-二羧基苯基)-2-丙基]苯二酐、1,4-雙[2-(3,4-二羧基苯基)-2-丙基]苯二酐、雙[3-(3,4-二羧基苯氧基)苯基]甲烷二酐、雙[4-(3,4-二羧基苯氧基)苯基]甲烷二酐、2,2-雙[3-(3,4-二羧基苯氧基)苯基]丙烷二酐、2,2-雙[4-(3,4-二羧基苯氧基)苯基]丙烷二酐、雙(3,4-二羧基苯氧基)二甲基矽烷二酐、1,3-雙(3,4-二羧基苯基)-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷二酐、2,3,6,7-萘四羧酸二酐、1,4,5,8-萘四羧酸二酐、1,2,5,6-萘四羧酸二酐、3,4,9,10-苝四羧酸二酐、2,3,6,7-蒽四羧酸二酐、1,2,7,8-菲四羧酸二酐、乙烯四羧酸二酐、1,2,3,4-丁烷四羧酸二酐、1,2,3,4-環丁烷四羧酸二酐)、環戊烷四羧酸二酐、環己烷-1,2,3,4-四羧酸二酐、環己烷-1,2,4,5-四羧酸二酐、3,3',4,4'-雙環己基四羧酸二酐、羰基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、亞甲基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、1,2-伸乙基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、1,1-亞乙基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、2,2-亞丙基-4,4'-

雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、氧基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、硫代-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、磺醯基-4,4'-雙(環己烷-1,2-二羧酸)二酐、雙環[2,2,2]辛-7-烯-2,3,5,6-四羧酸二酐、rel-[1S,5R,6R]-3-氧雜雙環[3,2,1]辛-2,4-二酮-6-螺-3'-(四氫呋喃-2',5'-二酮)、4-(2,5-二側氧基四氫呋喃-3-基)-1,2,3,4-四氫萘-1,2-二羧酸酐、乙二醇-雙-(3,4-二羧酸酐苯基)醚、4,4'-聯苯雙(偏苯三酸單酯酸酐)、9,9'-雙(3,4-二羧基苯基)芴二酐等。

【0115】〔氰酸酯樹脂〕

氰酸酯樹脂係使酚樹脂與鹵化氰反應而得的氰酸酯化合物，作為具體例，可列舉：二氰基苯、三氰基苯、二氰基萘、二氰聯苯、2,2'-雙(4-氰基苯基)丙烷、雙(4-氰基苯基)甲烷、雙(3,5-二甲基-4-氰基苯基)甲烷、2,2'-雙(3,5-二甲基-4-氰基苯基)丙烷、2,2'-雙(4-氰基苯基)乙烷、2,2'-雙(4-氰基苯基)六氟丙烷、雙(4-氰基苯基)碸、雙(4-氰基苯基)硫醚、苯酚酚醛氰酸酯、羥基轉化為氰酸酯基的苯酚-雙環戊二烯共縮合物者等，惟並非限於此等者。此外，可使用 1 種類，亦可複數使用。

此外，合成方法記載於日本特開 2005-264154 號公報之氰酸酯化合物，由於低吸濕性、難燃性、介電特性優異，因此特佳作為氰酸酯化合物。

為了因應需要使氰酸基三聚形成均三嗪環，氰酸酯樹脂中可含有環烷酸鋅、環烷酸鈷、環烷酸銅、環烷酸鉛、辛基酸鋅、辛基酸錫、乙醯丙酮鉛、順丁烯二酸二丁基錫等之觸媒。

【0116】相對於氰酸酯樹脂 100 質量份，觸媒較佳使用 0.0001 至 0.10 質量份，較佳為 0.00015 至 0.0015 質量份。

【0117】本實施型態之硬化性樹脂組成物係藉由將上述各成分以所定比率調製而獲得，在 130 至 180℃下預備硬化 30 至 500 秒之範圍，更且藉由在 150 至 200℃下後硬化 2 至 15 小時而進行充分的硬化反應，從而獲得本實施型態之硬化物。此外，亦可使硬化性樹脂組成物之成分均勻地分散或溶解於溶劑等，除去溶劑後使其硬化。

【0118】本實施型態之硬化性樹脂組成物的調製方法並無特別限定，惟可將各成分均勻地混合，亦可預聚合化。例如，在硬化促進劑或聚合起始劑之存在下或不存在下、溶劑之存在下或不存在下，對調配有前述式(1)所示之化合物及其他之化合物的混合物加熱，藉此預聚合化。同樣地可追加胺化合物、具有乙烯性不飽和鍵的化合物、順丁烯二醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、聚丁二烯及其改質物、聚苯乙烯及其改質物等之化合物、無機填充劑、及其他添加劑並預聚合化。各成分之混合或預聚合化，在溶劑之不存在下，例如，使用擠出機、捏合機、輥壓機等，在溶劑之存在下，則使用附攪拌裝置之反應器等。

【0119】作為均勻混合的方法，在 50 至 100℃之範圍內的溫度，使用捏合機、輥壓機、行星攪拌機等之裝置進行混煉，而獲得均勻的樹脂組成物。亦可將獲得的樹脂組成物粉碎後，以壓錠機等之成型機成型為圓柱的錠狀，或者製成顆粒狀之粉體，或者製成粉狀之成型體，或者將此等組成物熔融在表面支撐體上熔融而成型 0.05mm 至 10mm 之厚度的片狀，從而獲得硬化性樹脂組成物成型體。獲得的成型體在 0 至 20℃下變成不黏的成型體，即使在-25 至 0℃下保存 1 週以上，流動性、硬化性亦幾乎不會降低。

可使用轉送模製成型機、壓縮模製成型機，將獲得的成型體成型為硬化物。

【0120】本實施型態之硬化性樹脂組成物亦可添加有機溶劑製成清漆狀的組成物(以下簡稱為清漆)。因應需要，使本實施型態之硬化性樹脂組成物溶解在甲苯、二甲苯、丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁酮、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、N-甲基吡咯啶酮等之溶劑，製成清漆，使其浸漬在玻璃纖維、碳纖維、聚酯纖維、聚醯胺纖維、氧化鋁纖維、紙等之基材並加熱乾燥，將獲得的預浸體熱壓成型，藉此可獲得本實施型態之硬化性樹脂組成物的硬化物。此時，本實施型態之硬化性樹脂組成物與該溶劑之混合物中，溶劑的使用量為 10 至 70 重量%，較佳為 15 至 70 重量%。此外，如果係液狀組成物，則可直接藉由例如 RTM 方式獲得含有碳纖維的硬化性樹脂硬化物。

【0121】此外，亦可將本實施型態之硬化性組成物使用作為薄膜型組成物的改質劑。具體而言，可使用於 B-階段中之使柔韌性等提升之情況。如此之薄膜型的樹脂組成物，將本實施型態之硬化性樹脂組成物作為前述硬化性樹脂組成物清漆塗佈在剝離薄膜上，在加熱下除去溶劑後，藉由進行 B 階段化，而獲得片狀的接著劑。該片狀接著劑可使用作為多層基板等中之層間絕緣層。

【0122】本實施型態之硬化性樹脂組成物亦可藉由加熱熔融、低黏度化，並使之含浸於玻璃纖維、碳纖維、聚酯纖維、聚醯胺纖維、氧化鋁纖維等之強化纖維而獲得預浸體。作為其具體例，可列舉例如：E 玻璃布、D 玻璃布、S 玻璃布、Q 玻璃布、球狀玻璃布、NE 玻璃布、及 T 玻璃布等之玻

璃纖維，玻璃以外之無機物的纖維和聚對苯二甲醯對苯二胺(Kevlar(註冊商標)、杜邦公司製)、全芳香族聚醯胺、聚酯、聚對苯并噁唑、聚醯亞胺及碳纖維等之有機纖維，惟並非限定於此等。作為基材之形狀，並無特別限定，惟可列舉例如：織布、不織布、粗紗、短切原絲氈等。此外，作為織布的編織方法，已知有平紋織物、方平組織織物、斜紋織物，可依據作為目的之用途和性能從此等習知者中適宜選擇使用。此外，較佳使用經開纖處理的織布或以矽烷偶合劑等進行表面處理的玻璃織布。基材之厚得，並無特別限定，惟較佳為 0.01 至 0.4mm 左右。此外，亦可藉由使強化纖維浸漬於前述清漆並進行加熱乾燥而獲得預浸體。

【0123】此外，亦可使用上述預浸體製造積層板。積層板只要具備 1 片以上的預浸體則無特別限定，可具有任何其他層。作為積層板之製造方法，並無特別限定可適宜適用一般習知的方法。例如，覆金屬箔積層板成型時，可使用多段壓機、多段真空壓機、連續成型機、高壓罐成型機等，藉由將上述預浸體彼此積層並加熱加壓成型而獲得積層板。此時，加熱溫度並無特別限定，惟較佳為 65 至 300℃，更佳為 120 至 270℃。此外，加壓壓力並無特別限定，惟加壓過大，則難以調整積層板之樹脂的固形份且品質不穩定，此外，壓力過小，則出現氣泡和積層間之密著性變差，因此，較佳為 2.0 至 5.0MPa，更佳為 2.5 至 4.0MPa。本實施型態之積層板藉由具備由金屬箔所構成之層，可較佳使用作為後述覆金屬箔積層板。

將上述預浸體裁切成所望的形狀，依據需要與銅箔等積層後，以壓成型法或高壓罐成型法、片材捲繞成型法等對積層物施壓的同時，使硬化性

樹脂組成物加熱硬化，藉此可獲得電氣電子用積層板(印刷配線板)、碳纖維強化材。

【0124】本實施型態之硬化性樹脂組成物亦可作為樹脂片。作為從本實施型態之硬化性樹脂組成物獲得樹脂片之方法，可列舉例如：將硬化性樹脂組成物塗佈在支撐薄膜(支撐體)上後使其乾燥，在支撐薄膜上形成樹脂組成物層的方法。在將本實施型態之硬化性樹脂組成物使用於樹脂片之情況下，該薄膜在真空積層法中之積層的溫度條件(70℃至140℃)下軟化，與電路基板之積層同時，重要的係顯示出允許樹脂填充電路基板中存在的導通孔或通孔內的流動性(樹脂流動)，並調配表現如此之特性的前述各成分而較佳。又，在獲得的樹脂片和電路基板(銅積層板等)中，不會發生起因於相分離等而顯示出局部相異的特性值現象，為了在任意部位中表現一定的性能，因此需要外觀均勻性。

【0125】於此，電路基板之貫通孔的直徑為0.1至0.5mm、深度為0.1至1.2mm，在該範圍中能夠進行樹脂填充而較佳。又，在電路基板之兩面積層之情況下，期望使貫通孔填充1/2左右。

【0126】作為製造前述樹脂片之具體方法，可列舉：調配有機溶劑調製經清漆化的樹脂組成物後，將前述清漆化樹脂組成物塗佈在支撐薄膜(Y)之表面，進一步加熱、或吹熱風等乾燥有機溶劑以形成樹脂組成物層(X)的方法。

【0127】作為於此使用的有機溶劑，較佳使用例如：丙酮、甲基乙基酮、環己酮等之酮類、乙酸乙酯、乙酸丁酯、乙酸賽璐蘇、丙二醇單甲醚乙酸酯、卡必醇乙酸酯等之乙酸酯類、賽璐蘇、丁基卡必醇等之卡必醇類、

甲苯、二甲苯等之芳香族烴類、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、N-甲基吡咯啶酮等，此外，較佳以不揮發分 30 至 60 質量%之比率使用。

【0128】又，形成的前述樹脂組成物層(X)之厚度必須為導體層之厚度以上。由於電路基板所具有的導體層之厚度在 5 至 70μm 之範圍，因此前述樹脂組成物層(X)之厚度較佳具有 10 至 100μm 之厚度。又，本實施型態中之前述樹脂組成物層(X)可被後述保護薄膜保護。藉由以保護薄膜保護，可防止灰塵附著至樹脂組成物層表面和樹脂組成物層表面的划痕。

【0129】前述支撐薄膜及保護薄膜，可列舉：聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯等之聚烯烴、聚對酞酸乙二酯(PET)、聚萘二甲酸乙二酯等之聚酯、聚碳酸酯、聚醯亞胺，以及離型紙或銅箔、鋁箔等之金屬箔等。又，支撐薄膜及保護薄膜可實施 MAD 處理、電暈處理、及離型處理。支撐薄膜之厚度並無特別限定，惟係在 10 至 150μm，較佳為 25 至 50μm 之範圍內使用。此外，保護薄膜之厚度較佳為 1 至 40μm。

【0130】前述支撐薄膜(Y)在積層於電路基板後或在藉由加熱硬化形成絕緣層後剝離。在構成樹脂片之樹脂組成物層加熱硬化後，剝離支撐薄膜(Y)，則可防止硬化步驟中灰塵等之附著。在硬化後進行剝離之情況下，則預先對支撐薄膜實施離型處理。

【0131】又，可從依據前述而得的樹脂片製造多層印刷電路基板。例如，在以保護薄膜保護前述樹脂組成物層(X)之情況下，將此等剝離後，將前述樹脂組成物之層(X)以直接接觸電路基板之方式在電路基板之單面或兩面，藉由例如真空積層法積層。積層之方法可為分批式，亦可為使用輥壓機的連續式。此外，依據需要，可在進行積層前依據需要加熱(預熱)樹脂

片及電路基板。積層之條件，較佳為將壓著溫度(積層溫度)設為 70 至 140℃、將壓著壓力設為 1 至 11kgf/cm^2(9.8×10^4 至 107.9×10^{4}N/m^2)、將空氣壓在 20mmHg(26.7hPa)以下之減壓下積層。

【0132】此外，可使用本實施型態之硬化性樹脂組成物製造半導體裝置。作為半導體裝置，可列舉例如：DIP(雙列直插封裝)、QFP(四方扁平封裝)、BGA(球柵陣列)、CSP(微晶尺寸封裝)、SOP(小外形封裝)、TSOP(薄小外形封裝)、TQFP(薄四方扁平封裝)等。

【0133】本實施型態之硬化性樹脂組成物及其硬化物可用於廣泛的領域。具體而言，可使用於成型材料、接著劑、複合材料、塗料等各種用途。由於本實施型態記載之硬化性樹脂組成物的硬化物顯示優異的耐熱性與介電特性，因此較佳使用於半導體元件用密封材、液晶表示元件用密封材、有機 EL 元件用密封材、積層板(印刷配線板、BGA 用基板、組裝基板等)等之電氣與電子元件和碳纖維強化塑膠、玻璃纖維強化塑膠等之輕量高強度結構材用複合材料、3D 列印等。

[實施例]

【0134】其次藉由實施例更具體地說明本發明。以下，除非另有說明，否則份係質量份。然而，本發明不限於此等實施例。

【0135】以下記載實施例中使用的各種分析方法。

＜重量平均分子量(Mw)、數目平均分子量(Mn)、前述式(1)中之 n 為 1 的化合物之化合物總量中的 GPC 面積百分率＞

使用聚苯乙烯標準液，藉由聚苯乙烯換算算出重量平均分子量(Mw)及數目平均分子量(Mn)。

GPC：在線脫氣裝置(DGU-20A3R)、二元移液裝置(LC-20AD)、自動進樣器(SIL-20AHT)、示差折射率檢測器(RID-20A)、管柱烘箱(CTO-20A)、系統控制器(CBM-20A)(均為島津製作所製)

管柱：Shodex KF-603×1、KF-602.5×1、KF-602×1、KF-601×1(均為昭和電工公司製)

保護管柱：Shodex KF-G 4A(昭和電工公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃

流速：1.5ml/min.

管柱溫度：40℃

檢測：RI(示差折射率檢測器)

取得層析圖之切片數據，算出對應於式(1)中之 n 為 1 的化合物之切片數據之面積相對於對應於式(1)所示之化合物的切片數據之面積(訊號值之時間積分值)的總和的比率(面積百分率)。

＜式(2)至(4)所示之化合物的含有率＞

HP-LC：二元移液裝置(LC-20AB)、在線脫氣裝置(DGU-20A3)、自動進樣器(SIL-20A)、管柱烘箱(CTO-20A)、系統控制器(CBM-20A)、光二極體陣列檢測器(SPD-M20A)(均為島津製作所製)

管柱：ODS-2(GL Sciences 公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃：水=3：1(無漸變)

流速：0.5ml/min.

管柱溫度：40℃

檢測：PDA(光二極體陣列檢測器)

檢測器：274nm

藉由高效能液相層析儀(HP-LC)而得的層析圖中，算出式(2)至(4)所示之化合物之峰面積的總和(α)、及式(1)中之 n 為 1 的化合物之峰面積(β)，並算出(α/β)。

＜結構分析＞

LC-MS：超高速液相層析儀(UHPLC)系統(Ultimate3000)、質量分析計(Q-Exactive(註冊商標))(均為賽默飛世爾科技公司製)

管柱：ODS-2(GL Sciences 公司製)

合併洗脫液：四氫呋喃：水=3：1(無漸變)

流速：0.5ml/min.

電離化模式：ESI

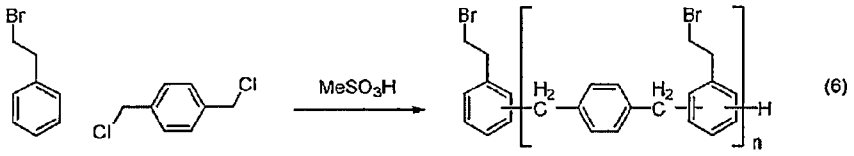
質量範圍：m/z=150-2000

【0136】〔合成例 1〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，設置抽氣器及鹼阱(base trap)。在此燒瓶中饋入(2-溴乙基)苯(東京化成公司製)370.1 份、α,α'-二氯-對二甲苯(東京化成公司製)175.1 份、甲磺酸(東京化成公司製)27.3 份，一邊以鹼阱收集產生的氯化氫，一邊以 130℃反應 6 小時。加入甲醇 50 份、環己烷 700 份，以 30%氫氧化鈉水溶液 56.8 份中和後，將有機層以水 100 份洗滌 5 次。加熱減壓下，藉由餾去溶劑及過多的(2-溴乙基)苯，而獲得作為液狀樹脂之具有下述式(6)所示之(2-溴乙基)苯結構的化合物(BEB-1) 380 份 (Mn:938、Mw:1290)。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 1。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.2。此外，GPC

圖表之具有式(6)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(6)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(面積百分率)為 45%。

【0137】

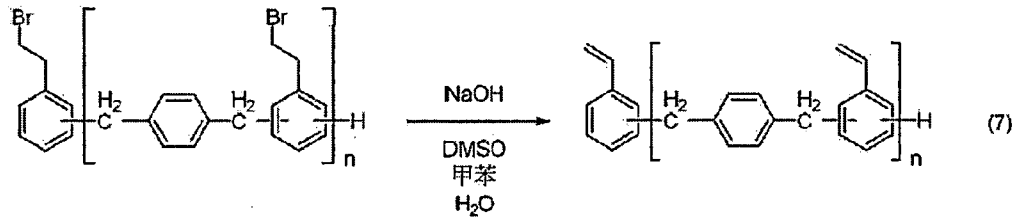


【0138】〔實施例 1〕

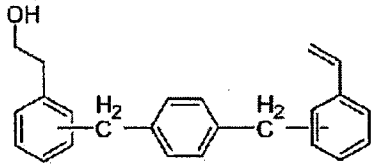
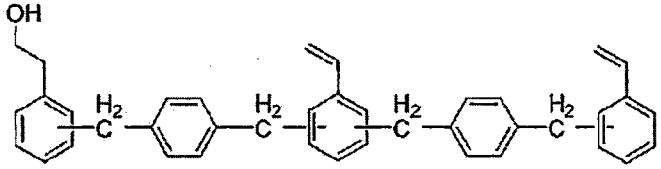
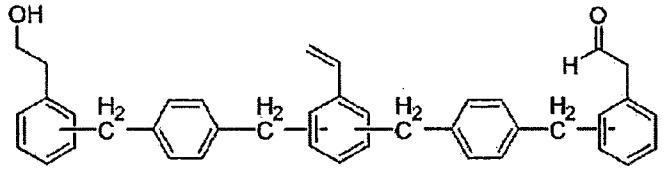
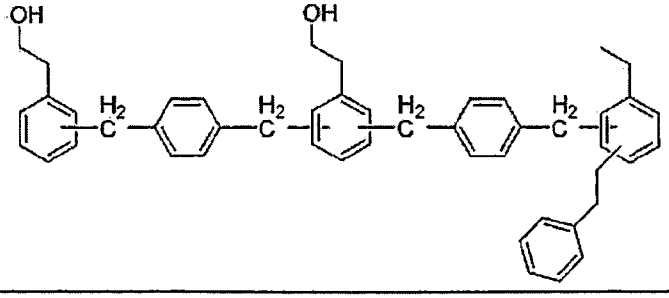
在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，加入合成例 1 中獲得的 BEB-1 300 份、甲苯 245 份、二甲基亞碸 735 份、4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物 自由基 0.15 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 146.4 份，在 40℃連續反應 6 小時。加入水 100 份，將有機層洗滌後，將有機層返回反應容器中。加入二甲基亞碸 735 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 9.8 份，在 40℃再次反應 1 小時，加入甲苯 1050 份，以水 100 份重複洗滌有機層直至廢水呈中性為止。使用蒸發器減壓濃縮，獲得在下述式(7)所示之分子內具有 2 個以上苯乙烯結構的化合物(O-1)180 份。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 2。此外，將獲得的化合物之 ^{1}H-NMR 數據(重氯仿)示於圖 3。在 ^{1}H-NMR 圖表之 5.10-5.30ppm、5.50-5.85ppm、及、6.60-6.80ppm 觀察到源自乙烯基的訊號。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.3。此外，GPC 圖表之具有式(7)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(7)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(面積百分率)為 40% (樹脂成分之平均分子量為 Mn：803、Mw：1190)。將 LC-MS 圖表示於圖 4，將 HP-LC 圖表示於圖 5。藉由 LC-MS 分析檢測表 1 所示之化合物 V 至 Y (表

1 記載代表結構式)。化合物 W 中，2-苯基乙醇結構與苯乙烯結構之位置沒有特別的順序。化合物 X 中，2-苯基乙醇結構、苯乙烯結構與 2-苯乙醛結構之位置沒有特別的順序。化合物 Y 中，2-苯基乙醇結構與乙苯結構之位置沒有特別的順序，苯乙基可與任何芳香環鍵合。

【0139】



【0140】[表 1]

化合物	HPLC 滯留時間（分鐘）	代表結構式
V	6.4	
W	6.6	
X	7.6	
Y	8.0	

【0141】〔實施例 2〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，加入合成例 1 中獲得的 BEB-1 300 份、甲苯 245 份、二甲基亞碸 735 份、4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物 自由基 0.15 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 107.4 份，在 40℃連續反應 6 小時。加入水 100 份，將有機層洗滌後，將有機層返回反應容器中。加入二甲基亞碸 735 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 9.8 份，在 40℃再次反應 1 小時，加入甲苯 1050 份，以水 100 份重複洗滌有機層直至廢水呈中性為止。使用蒸發器減壓濃縮，獲得在前述式(7)所示之分子內具有 2 個以上苯乙烯結構的化合物(O-2)。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 6。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.4。此外，GPC 圖表之具有式(7)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(7)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(面積百分率)為 41% (樹脂成分之平均分子量為 Mn：799、Mw：1297)。將 HP-LC 圖表示於圖 7。

【0142】〔實施例 3〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，加入合成例 1 中獲得的 BEB-1 300 份、甲苯 375 份、二甲基亞碸 1125 份、4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物 自由基 0.15 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 146.4 份，在 40℃連續反應 6 小時。加入水 100 份，將有機層洗滌後，將有機層返回反應容器中。加入二甲基亞碸 735 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 9.8 份，在 40℃再次反應 1 小時，加入甲苯 1050 份，以水 100 份重複洗滌有機層直至廢水呈中性為止。使用蒸發器減壓濃縮，獲得在前述式(7)所示之分子內具有 2 個以上苯乙烯結構的化合物(O-3)。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 8。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.3。此外，

GPC 圖表之具有式(7)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(7)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(面積百分率)為 35% (樹脂成分之平均分子量為 Mn：834、Mw：1170)。將 HP-LC 圖表示於圖 9。

【0143】〔實施例 4〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，加入合成例 1 中獲得的 BEB-1 300 份、甲苯 245 份、二甲基亞碸 735 份、4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶-1-氧化物 自由基 0.15 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 146.4 份，在 25℃連續反應 6 小時。加入水 100 份，將有機層洗滌後，將有機層返回反應容器中。加入二甲基亞碸 735 份、50wt%氫氧化鈉水溶液 9.8 份，在 25℃再次反應 1 小時，加入甲苯 1050 份，以水 100 份重複洗滌有機層直至廢水呈中性為止。使用蒸發器減壓濃縮，獲得在前述式(7)所示之分子內具有 2 個以上苯乙烯結構的化合物(O-4)180 份。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 10。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.5。此外，GPC 圖表之具有式(7)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(7)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(面積百分率)為 41% (樹脂成分之平均分子量為 Mn：802、Mw：1291)。將 HP-LC 圖表示於圖 11。

【0144】〔比較合成例 1〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，設置抽氣器及鹼阱。在此燒瓶饋入(2-溴乙基)苯(東京化成公司製)296 份、α,α'-二氯-對二甲苯(東京化成公司製)70 份、甲磺酸(東京化成公司製)18.4 份，一邊以鹼阱收集產生的氯化氫，一邊以 130℃反應 6 小時。加入甲醇 50 份、環己烷 700 份，以

30%氫氧化鈉水溶液 26.8 份中和後，將有機層以水 100 份洗滌 5 次。加熱減壓下，藉由餾去溶劑及過多的(2-溴乙基)苯，而獲得作為液狀樹脂之具有前述式(6)所示之(2-溴乙基)苯結構的化合物(BEB-2)171 份(Mn：793、Mw：970)。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 12。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 1.6。此外，GPC 圖表之具有式(6)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(6)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(GPC 面積百分率)為 65%。

【0145】〔比較合成例 2〕

在裝有溫度計、冷卻管、攪拌機的燒瓶中，加入比較合成例 1 中獲得的 BEB-2 22 份、甲苯 50 份、二甲基亞碸 150 份、水 15 份、氫氧化鈉 5.4 份，在 40℃連續反應 6 小時。加入甲苯 100 份，以水 100 份重複洗滌有機層直至廢水呈中性為止。使用蒸發器減壓濃縮，獲得在前述式(7)所示之分子內具有 2 個以上苯乙烯結構的化合物(O-5)12.5 份。將獲得的化合物之 GPC 圖表示於圖 13。依據 GPC 圖表之面積百分率計算的重複單元 n 之平均值 n_{ave} 為 2.2。此外，生成物中，具有式(7)中之 n 為 1 之結構的化合物之面積相對於具有式(7)所示之結構的化合物之面積的總和的比率(GPC 面積百分率)為 65%(樹脂成分之平均分子量為 Mn：624、Mw：778)。將 HPLC 圖表示於圖 14。

【0146】作為化合物 O-1 至 O-5 之分子量數據，數目平均分子量(Mn)、重量平均分子量(Mw)及式(1)中之 n 為 1 的化合物之面積百分率作為「n=1 含量(GPC 面積%)」，藉由 HPLC 獲得的層析圖中之式(2)至(4)所示之化合物之峰面積的總和 α 作為「各化合物中之 V 至 Y 之化合物之含量的合計

(HP-LC 面積)」，式(1)之 n 為 1 的化合物之峰面積 β 作為「n=1 含量(HP-LC 面積)」，以及 α 除以 β 之值(α/β)記載於表 2。

【0147】[表 2]

化合物		O-1	O-2	O-3	O-4	O-5
分子量數據(GPC)	Mn	803	799	834	802	624
	Mw	1190	1297	1170	1291	778
	n=1 含量(GPC 面積%)	40	41	35	41	65
α	各化合物中之V至Y之化合物之含量的合計(HP-LC 面積)	2.7	2.2	0.9	3.5	2.2
β	n=1含量(HP-LC面積)	37	35	33	41	59
α / β		0.07	0.06	0.03	0.09	0.04

【0148】〔實施例 5 至 8、比較例 1〕

＜溶劑溶解後之穩定性試驗＞

在 5mL 玻璃製樣品瓶調配化合物 O-1 至 O-51.2g、甲苯 0.8g 後，使用輥式混合機(MIX-ROTAR VMR-5：AS ONE 公司製)，在 25℃下以轉速 100rpm 攪拌 1 小時，調製各化合物之固形份 60wt%甲苯溶液。將獲得的溶液保存在-18℃之冷凍庫，10 分鐘後取出樣品並依據以下判定基準實施評估。將結果示於表 3。

・結晶無析出之情況：○

・結晶析出之情況：x

【0149】＜介電率試驗與正切損失試驗＞

將化合物 O-1 至 O-5 一邊以鏡面銅箔(T4X：福田金屬銅箔公司製)挾持，一邊真空壓成型，並在 220℃硬化 2 小時。其後，使用雷射裁剪機，

裁切成寬度 1.7mmx長度 100mmx厚度 0.2mm 的樣品尺寸，並使用 ATE(股)公司製的 10GHz 空腔共振器，藉由空腔共振器擾動法進行測試。將評估結果示於表 3。

【0150】[表 3]

介電正切=>正切損失

		實施例5	實施例6	實施例7	實施例8	比較例1
化合物		O-1	O-2	O-3	O-4	O-5
溶劑溶解後之穩定性		○	○	○	○	×
介電特性	介電率 (10GHz)	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	介電正切 (10GHz)	0.0015	0.0015	0.0013	0.0019	0.0016

【0151】依據表 3 之結果，確認出實施例 5 至 8 具有優異的溶劑溶解後之穩定性的同時介電特性優異。

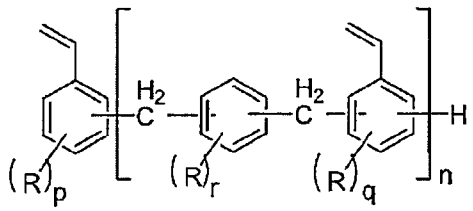
本申請係基於 2022 年 3 月 29 日所申請的日本申請專利第 2022-54487 號主張優先權。

【符號說明】

無。

【發明申請專利範圍】

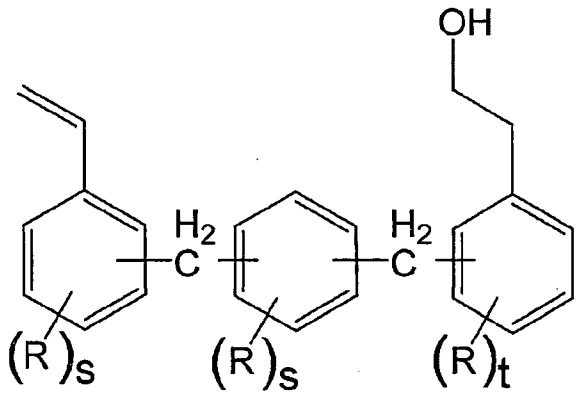
【請求項1】一種下述式(1)所示之化合物，在前述化合物之總量中，式(1)中之 n 為 1 的化合物以 GPC 面積百分率計係未達 50%；



(1)

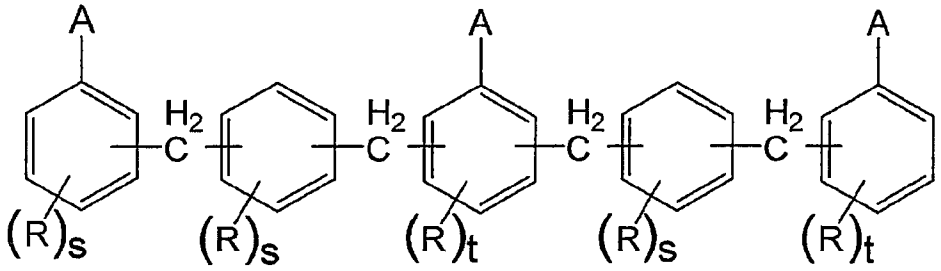
式(1)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數；n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$。

【請求項2】如請求項 1 所述之化合物，其中，下述式(2)至(4)所示之化合物之 HP-LC 之峰面積的總和(α)除以前述式(1)中之 n 為 1 的化合物之 HP-LC 之峰面積(β)的值(α/β)為 0.10 以下；



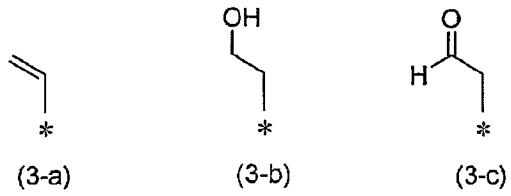
(2)

式(2)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數；



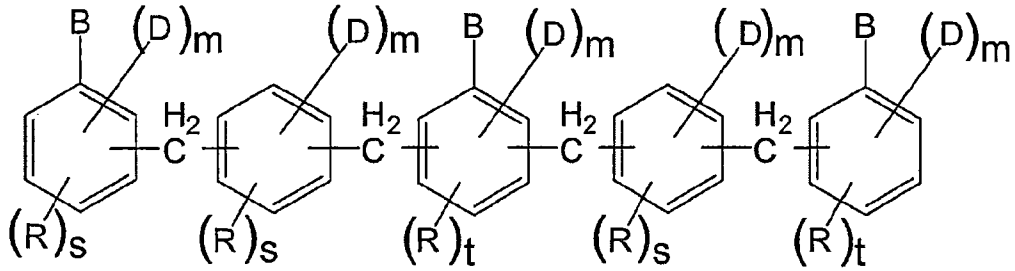
(3)

式(3)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；存在複數個之 A 分別獨立地為下述式(3-a)至(3-c)中之任 1 種；存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數；



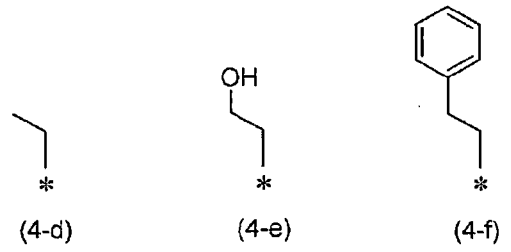
(3-a)　(3-b)　(3-c)

式(3-a)至(3-c)中，＊表示與式(3)之化合物之芳香環鍵結的位置；



(4)

式(4)中，存在複數個之 R 分別獨立地表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；存在複數個之 B 分別獨立地為下述式(4-d)或(4-e)；D 為下述式(4-f)；存在複數個之 s 分別獨立地為 0 至 4 之整數，t 為 0 至 3 之整數；式(4)中之 5 個 m 中之 1 個為 1，其餘的 4 個為 0；

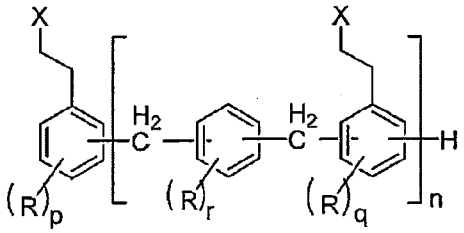


(4-d)　(4-e)　(4-f)

式(4-d)至(4-f)中，＊表示與式(4)之化合物之芳香環鍵結的位置。

【請求項3】如請求項 1 或 2 所述之化合物，其中，前述式(1)中，p=0，q=0，r=0。

【請求項4】如請求項 1 至 3 中任一項所述之化合物，其中，前述式(1)所示之化合物衍生自下述式(5)所示之化合物；



(5)

式(5)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$；X 表示鹵原子。

【請求項5】如請求項 1 至 4 中任一項所述之混合物，其更含有阻聚劑。

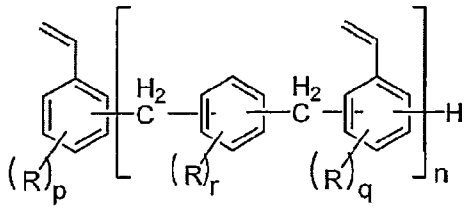
【請求項6】一種硬化性樹脂組成物，係含有請求項 1 至 4 中任一項所述之化合物、或請求項 5 所述之混合物。

【請求項7】如請求項 6 所述之硬化性樹脂組成物，其係含有聚苯醚化合物、聚丁二烯及其改質物、聚苯乙烯及其改質物中之任 1 個以上。

【請求項8】如請求項 6 或 7 所述之硬化性樹脂組成物，其係含有自由基聚合起始劑。

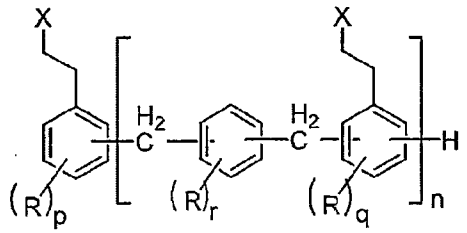
【請求項9】一種硬化物，係使請求項 1 至 4 中任一項所述之化合物、請求項 5 所述之混合物、或請求項 6 至 8 中任一項所述之硬化性樹脂組成物硬化而得者。

【請求項10】一種下述式(1)所示之化合物的製造方法，係使下述式(5)所示之化合物在鹼性觸媒之存在下，於下述式(5)所示之化合物之 4 至 7 重量倍之溶劑中進行脫鹵化氫反應而獲得；



(1)

式(1)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$；



(5)

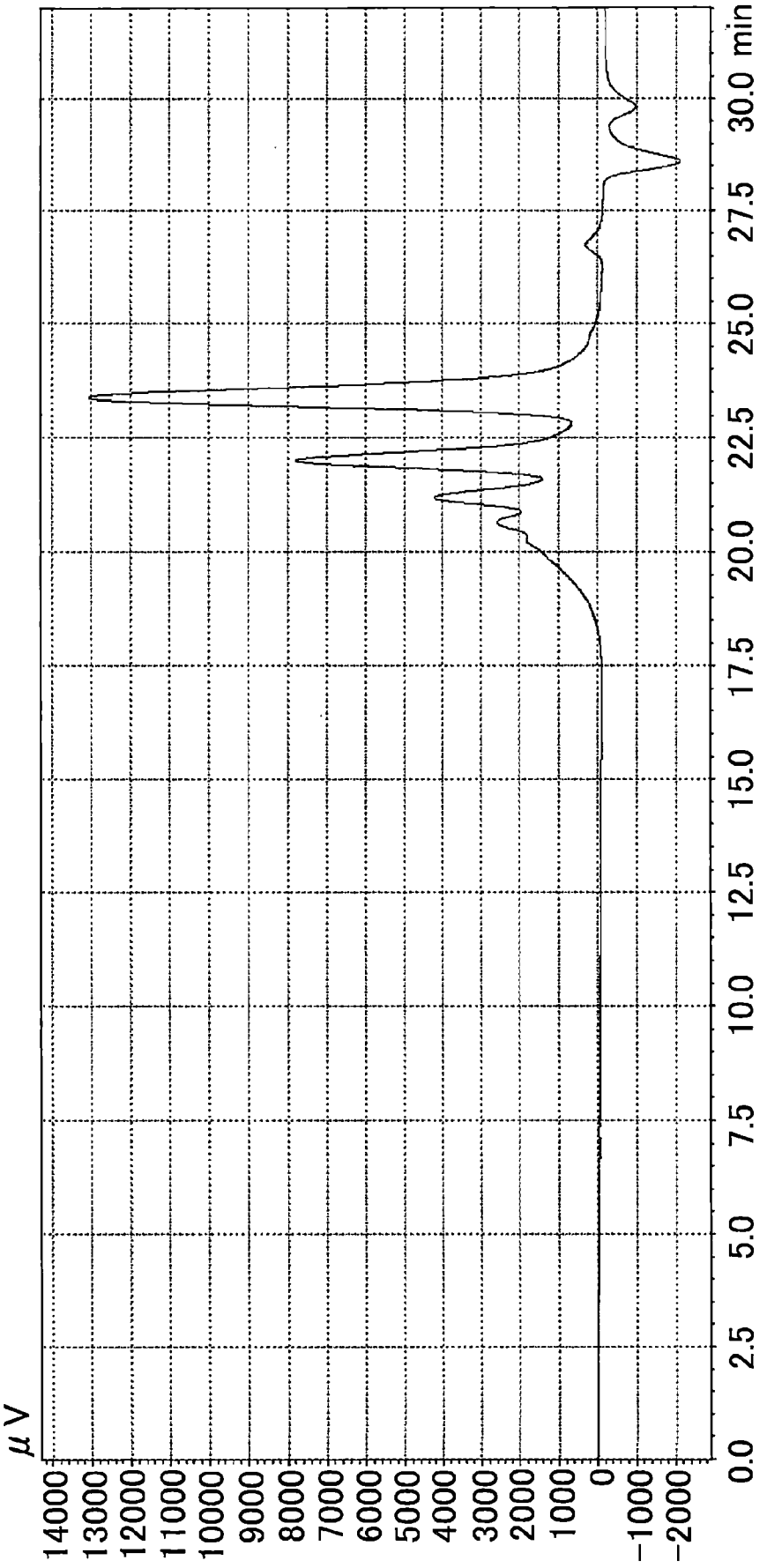
式(5)中，存在複數個之 R 分別獨立地存在，且表示碳數 1 至 10 之烴基或鹵化烷基；p、r 為 0 至 4 之整數，q 為 0 至 3 之整數，n 為重複數，n 之平均值 n_{ave} 符合 $1 \leqq n_{ave} \leqq 20$；X 表示鹵原子。

【請求項11】如請求項 10 所述之化合物的製造方法，其中，前述溶劑為非質子性極性溶劑與非水溶性溶劑的混合溶劑。

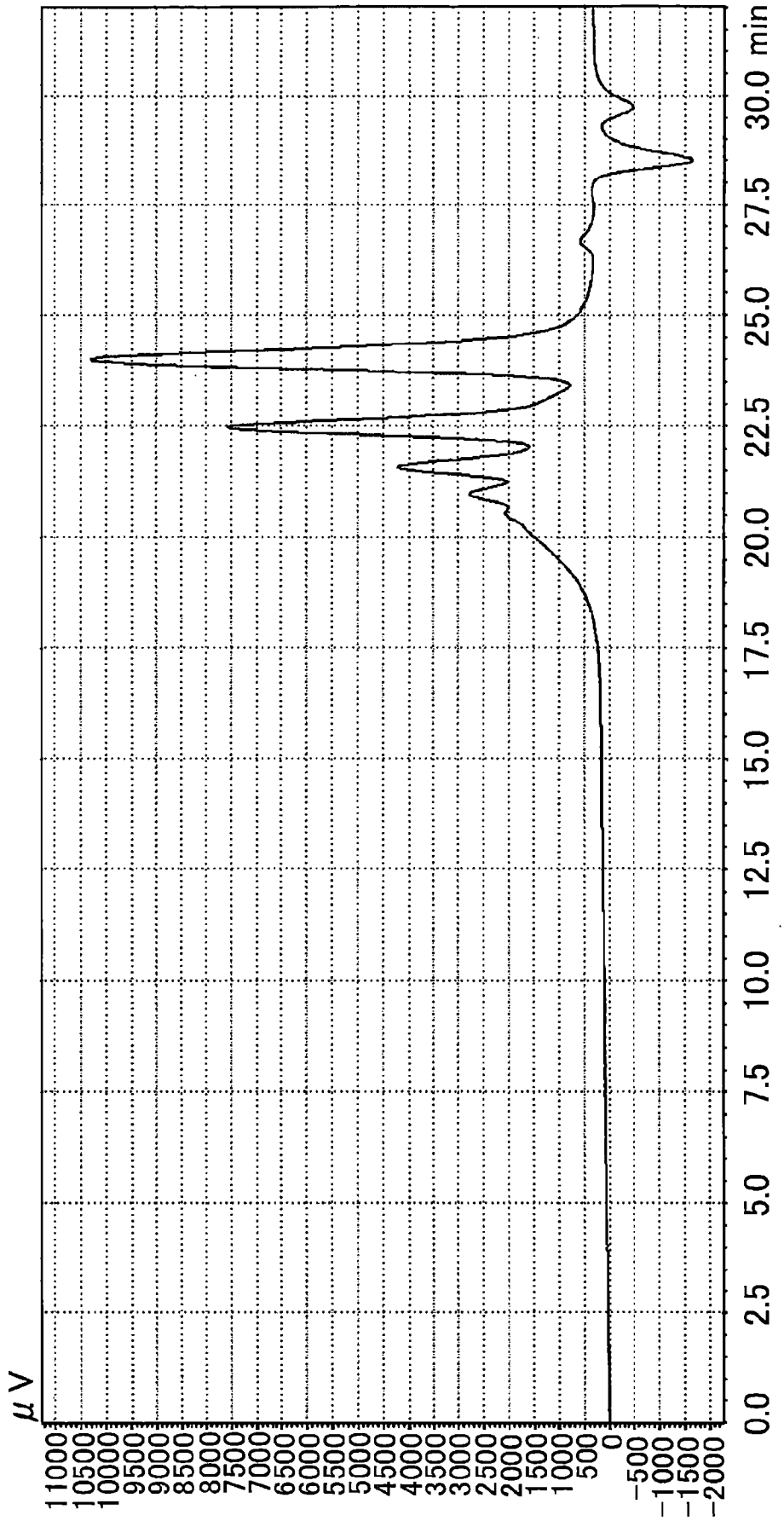
【請求項12】如請求項 11 所述之化合物的製造方法，其中，前述非質子性極性溶劑之使用量為前述非水溶性溶劑之 1 至 10 重量倍。

【請求項13】如請求項 11 或 12 所述之化合物的製造方法，其中，係使用二甲基亞碸作為前述非質子性極性溶劑，使用甲苯作為前述非水溶性溶劑。

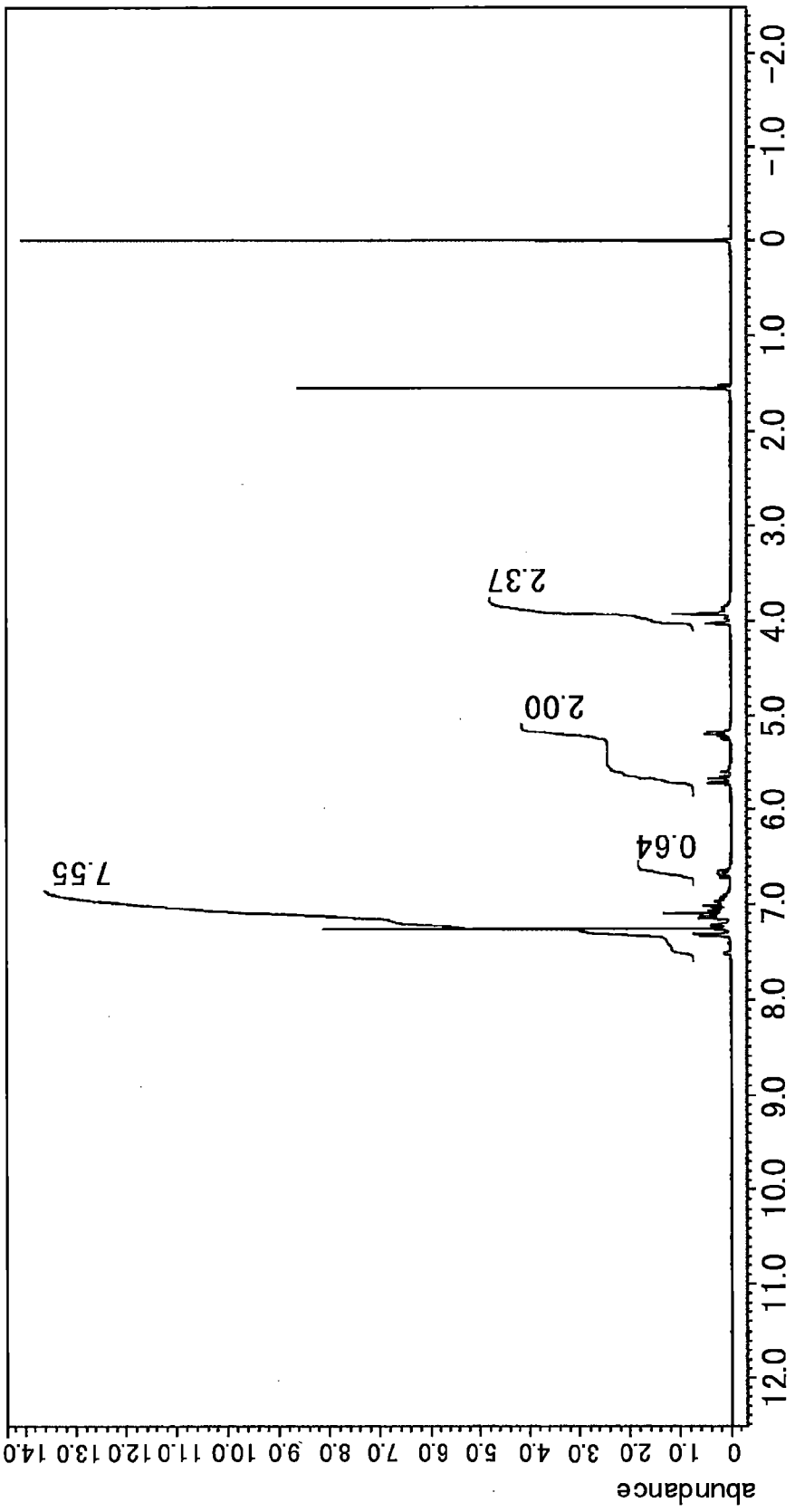
【發明圖式】


μV
14000
13000
12000
11000
10000
9000
8000
7000
6000
5000
4000
3000
2000
1000
0
−1000
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

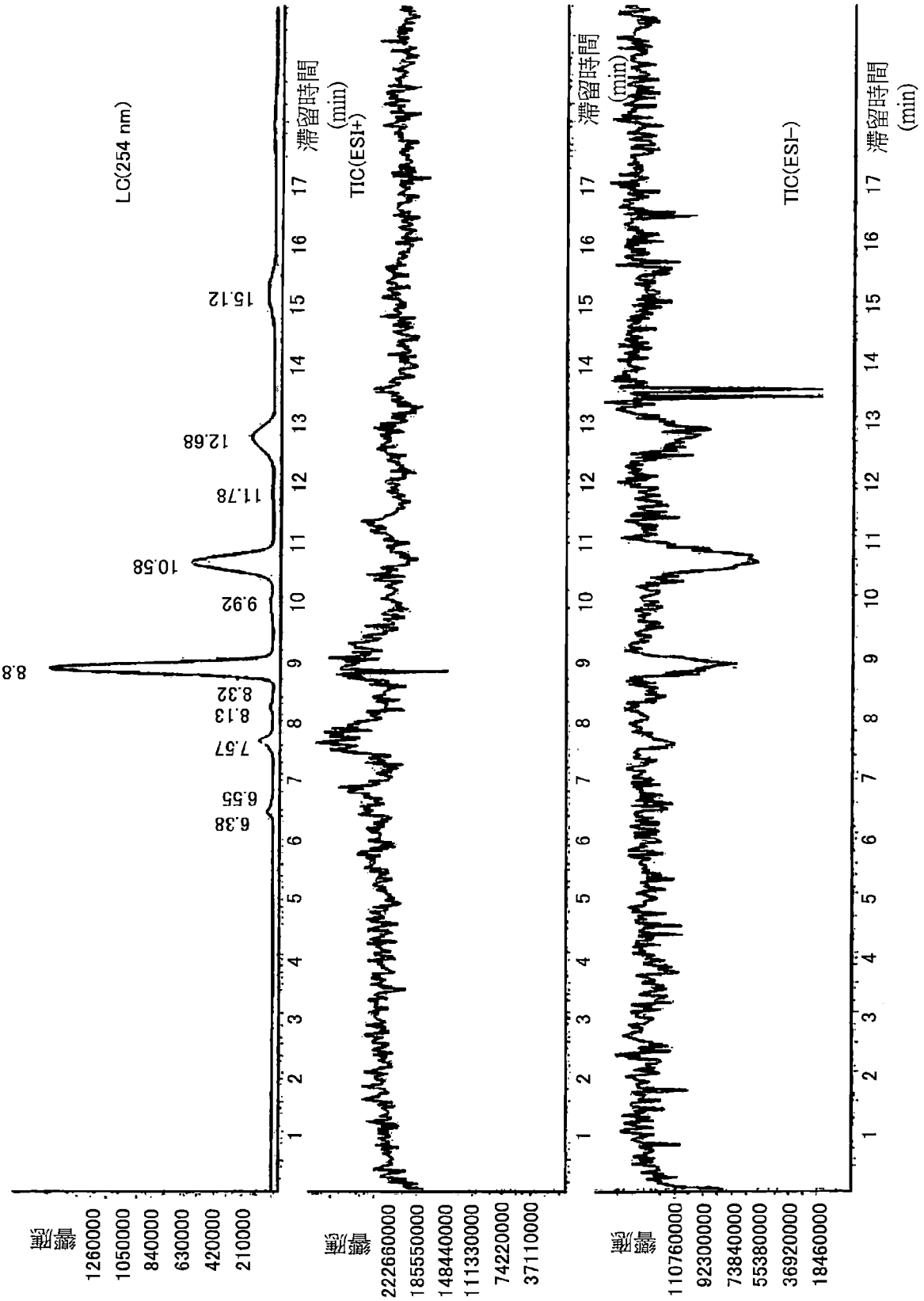
【圖1】


μV
11000
10500
10000
9500
9000
8500
8000
7500
7000
6500
6000
5500
5000
4500
4000
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
0
−500
−1000
−1500
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

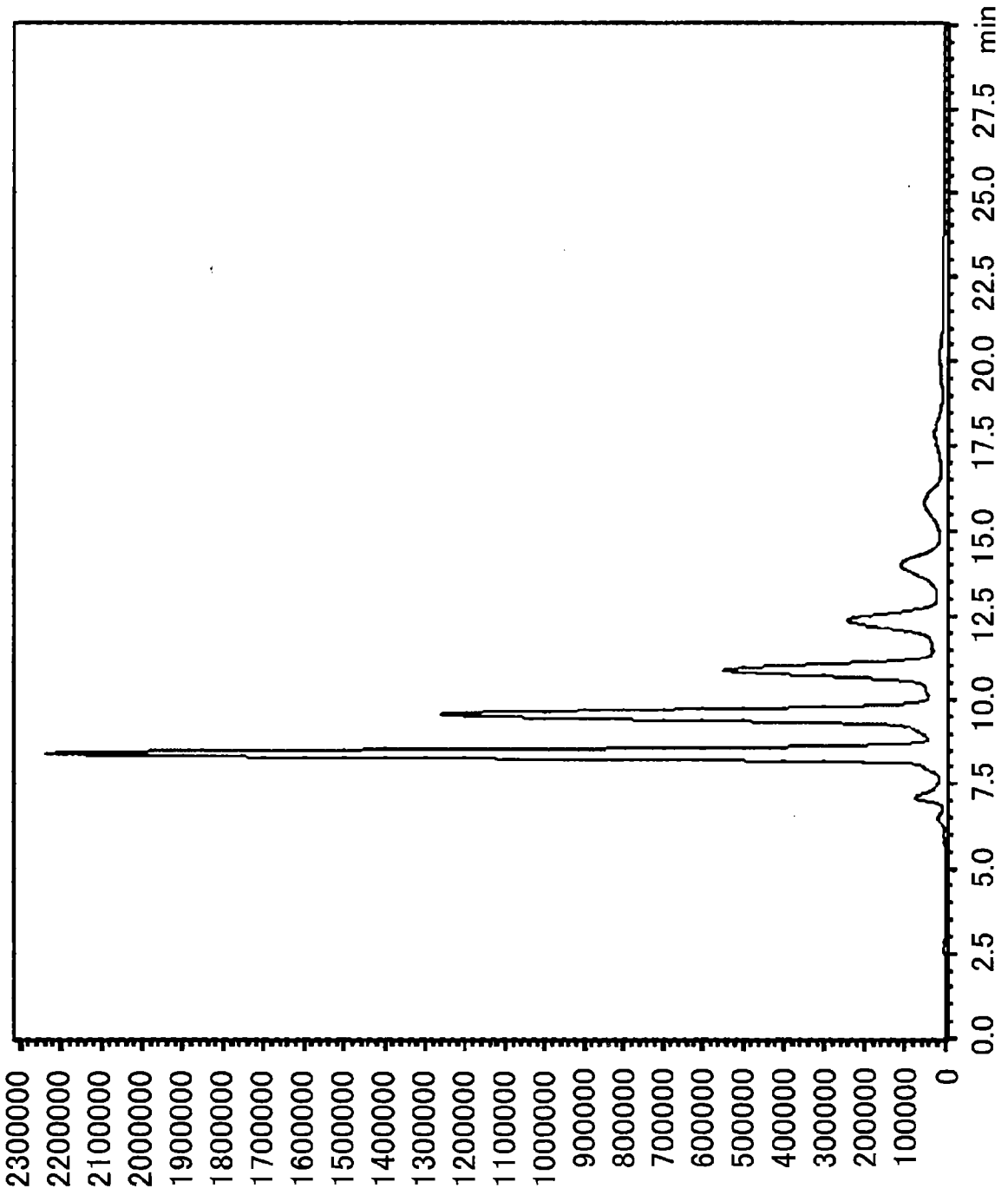
【圖2】


abundance
0 1.0 2.0 3.0 4.0 5.0 6.0 7.0 8.0 9.0 10.0 11.0 12.0 13.0 14.0
12.0 11.0 10.0 9.0 8.0 7.0 6.0 5.0 4.0 3.0 2.0 1.0 0 -1.0 -2.0
7.55
0.64
2.00
2.37
X:百萬分率(Parts per Million):質子

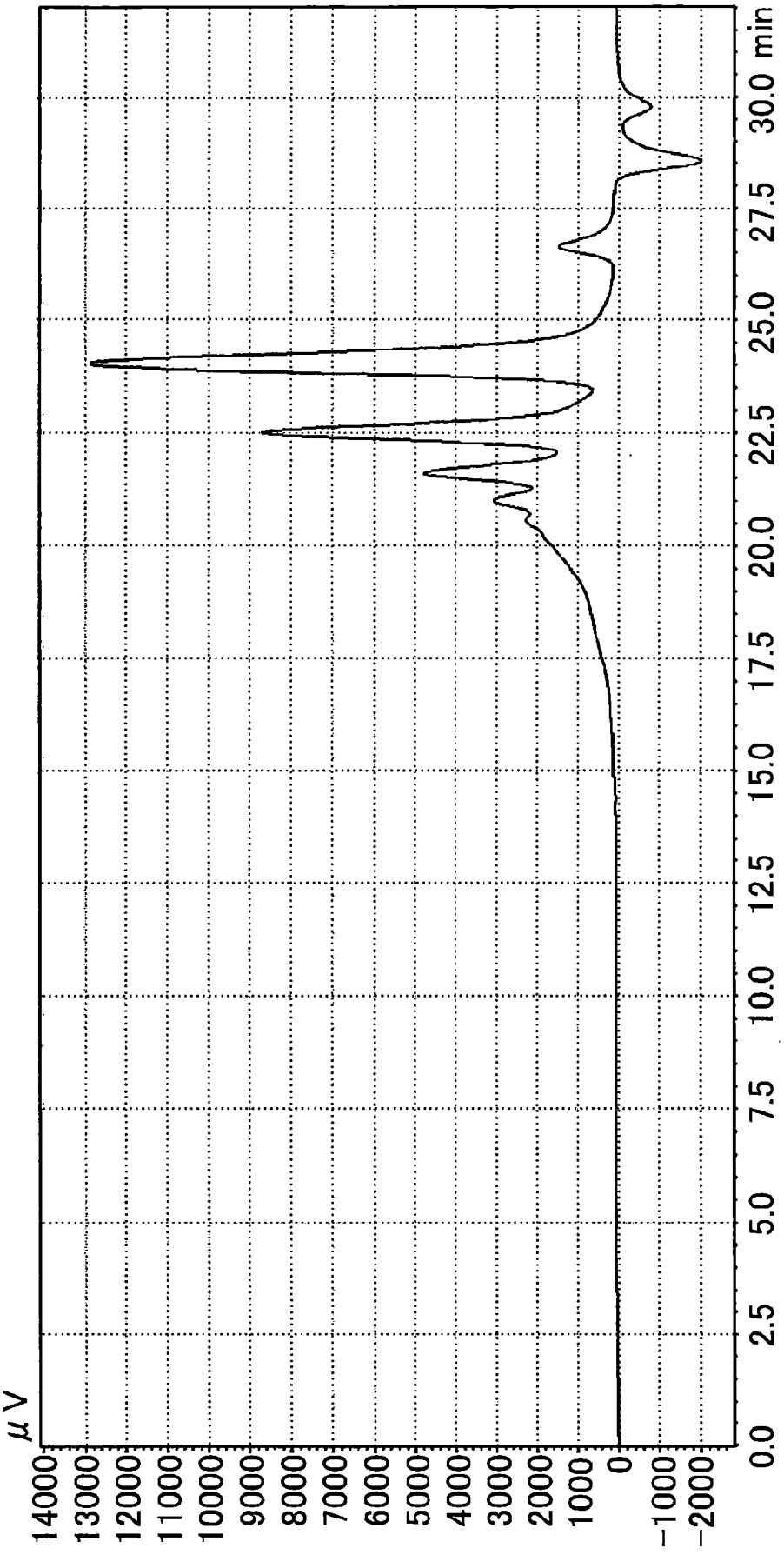
【圖3】


LC(254 nm)
TIC(ESI+)
TIC(ESI-)
滯留時間 (min)
響應
8.8
9.92
10.58
11.78
12.68
15.12
6.38
6.55
7.57
8.13
8.32
1260000
1050000
840000
630000
420000
210000
222660000
185550000
148440000
111330000
74220000
37110000
110760000
92300000
73840000
55380000
36920000
18460000

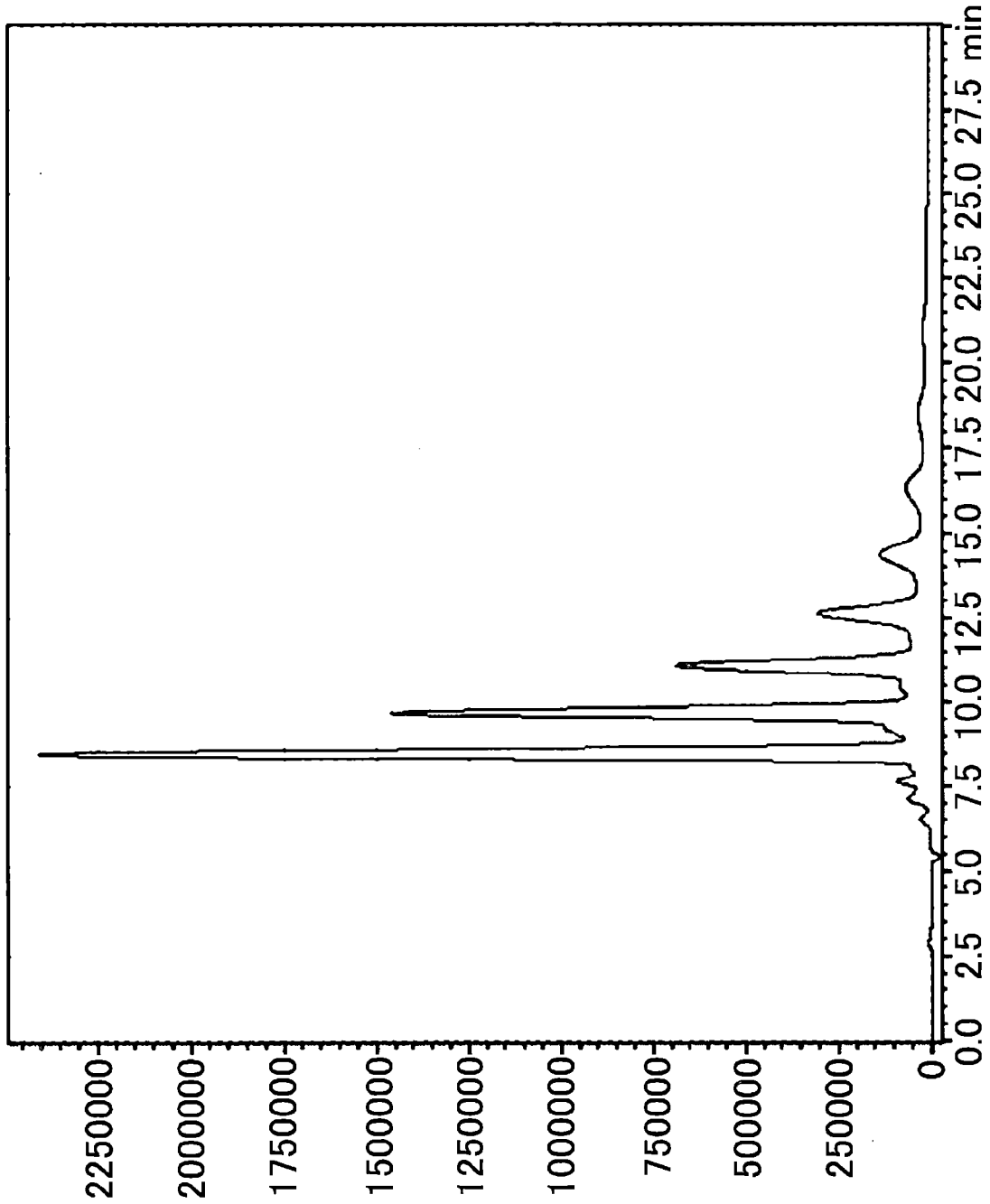
【圖4】


2300000
2200000
2100000
2000000
1900000
1800000
1700000
1600000
1500000
1400000
1300000
1200000
1100000
1000000
900000
800000
700000
600000
500000
400000
300000
200000
100000
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
min

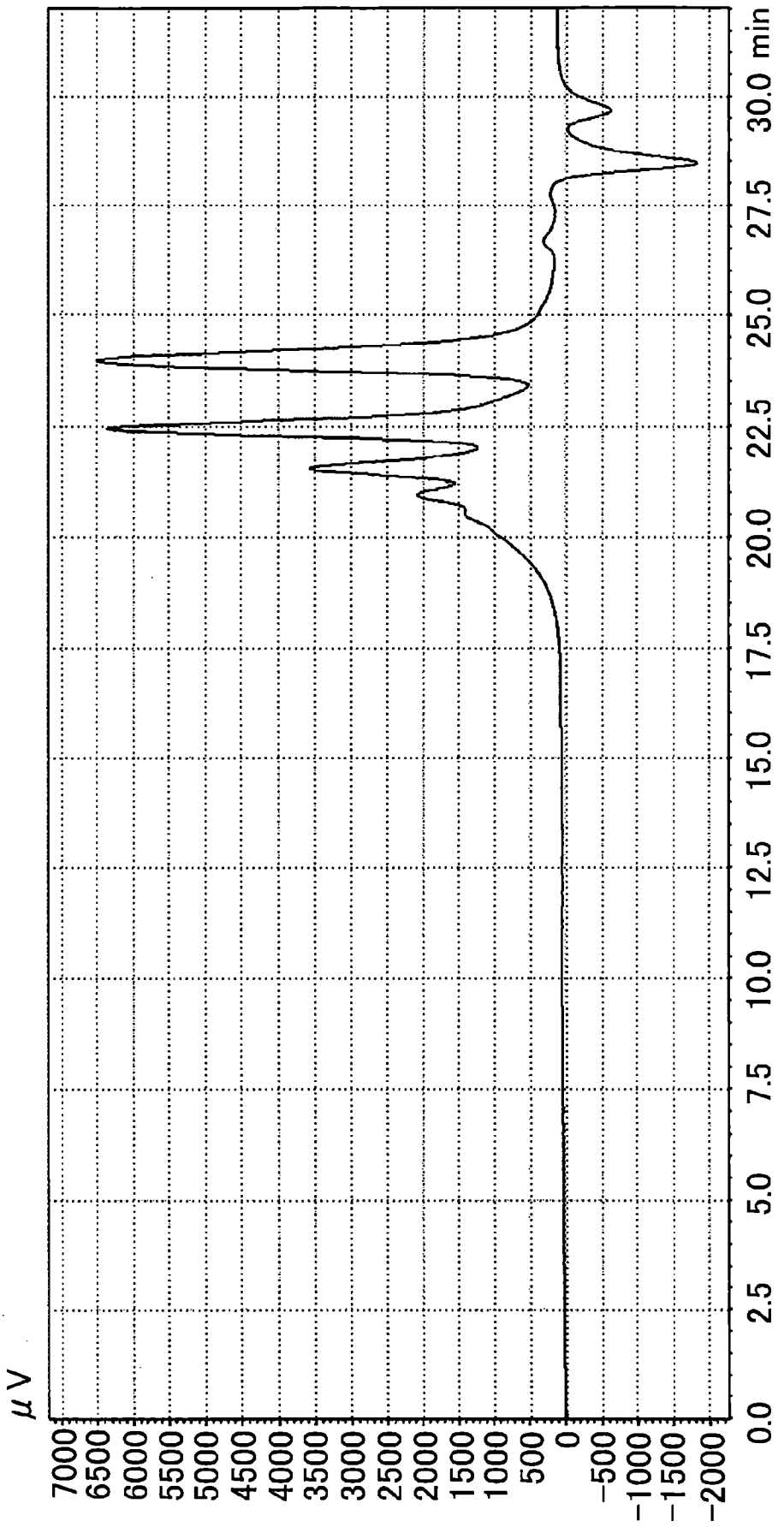
【圖5】


μV
14000
13000
12000
11000
10000
9000
8000
7000
6000
5000
4000
3000
2000
1000
0
−1000
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

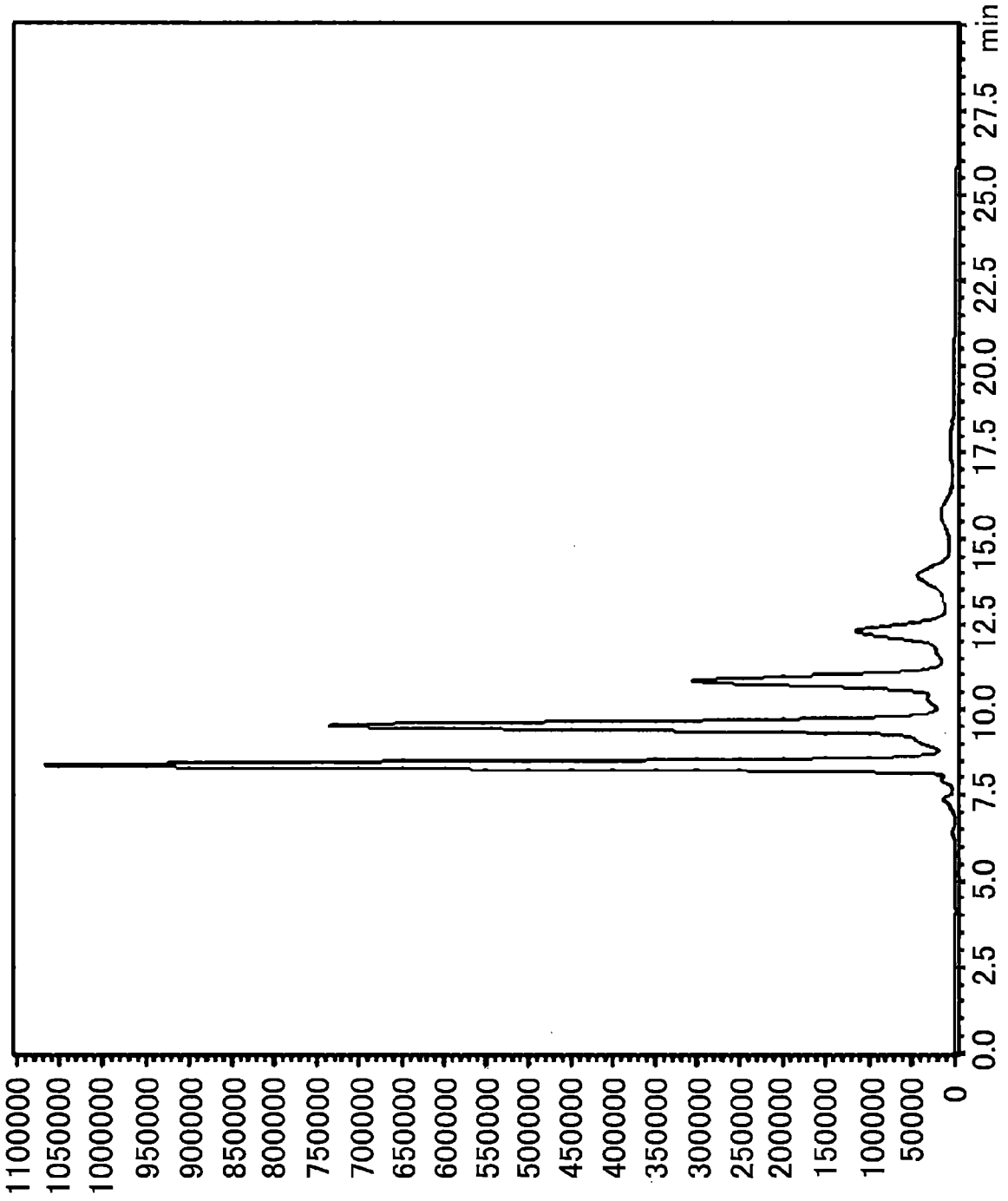
【圖6】


2250000
2000000
1750000
1500000
1250000
1000000
750000
500000
250000
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
min

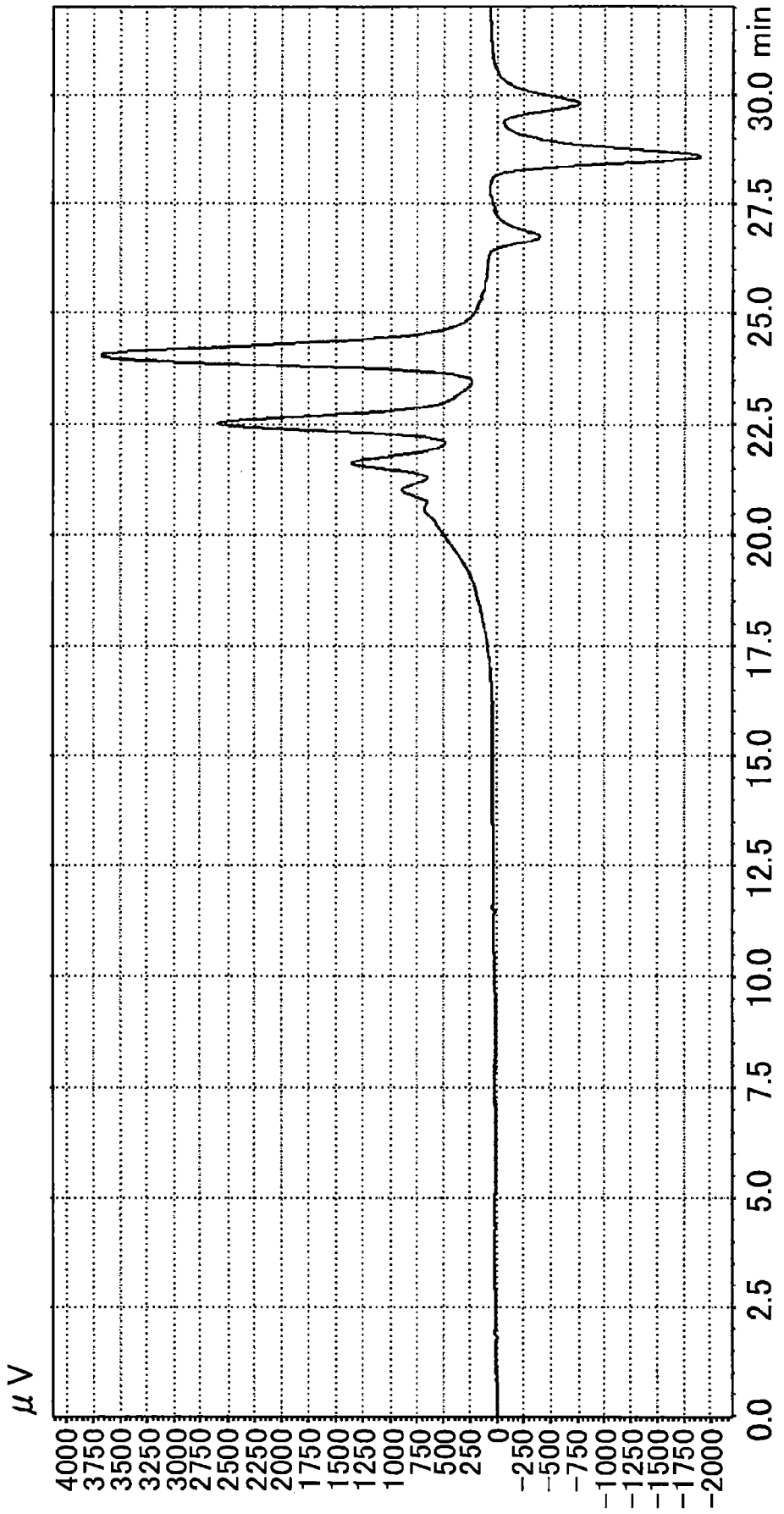
【圖7】


μV
7000
6500
6000
5500
5000
4500
4000
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
0
−500
−1000
−1500
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

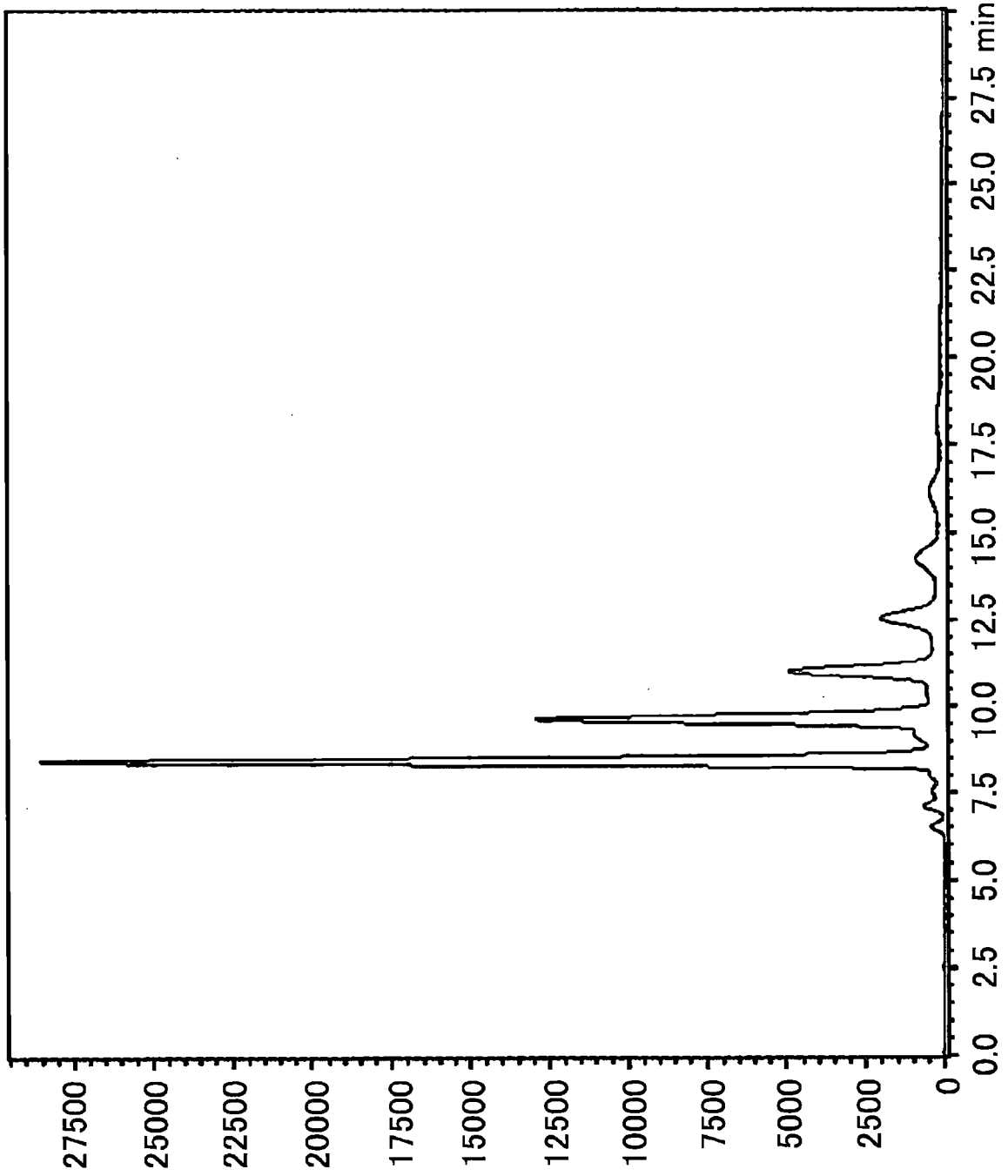
【圖8】


1100000
1050000
1000000
950000
900000
850000
800000
750000
700000
650000
600000
550000
500000
450000
400000
350000
300000
250000
200000
150000
100000
50000
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
min

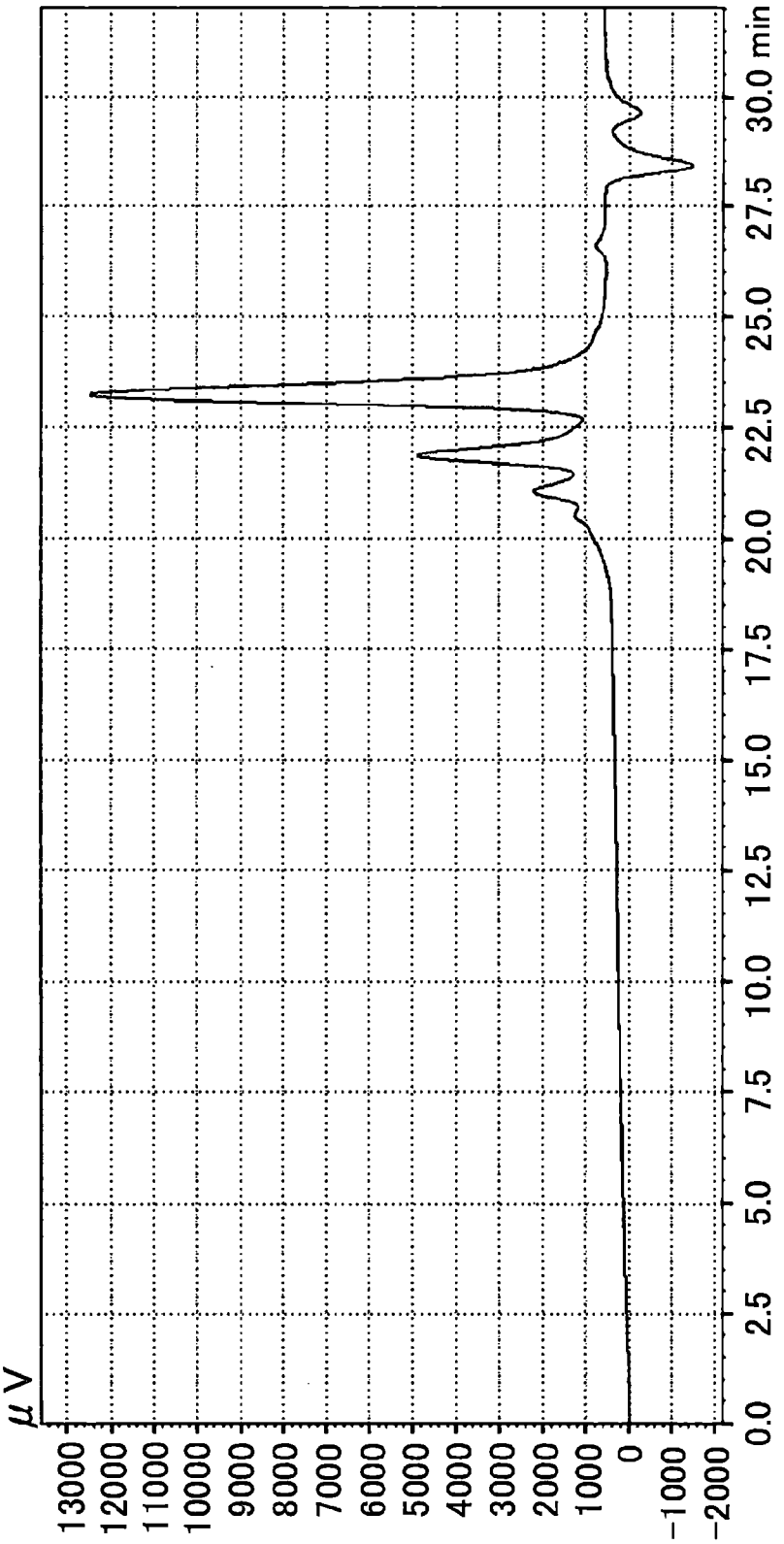
【圖9】


μV
4000
3750
3500
3250
3000
2750
2500
2250
2000
1750
1500
1250
1000
750
500
250
0
−250
−500
−750
−1000
−1250
−1500
−1750
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

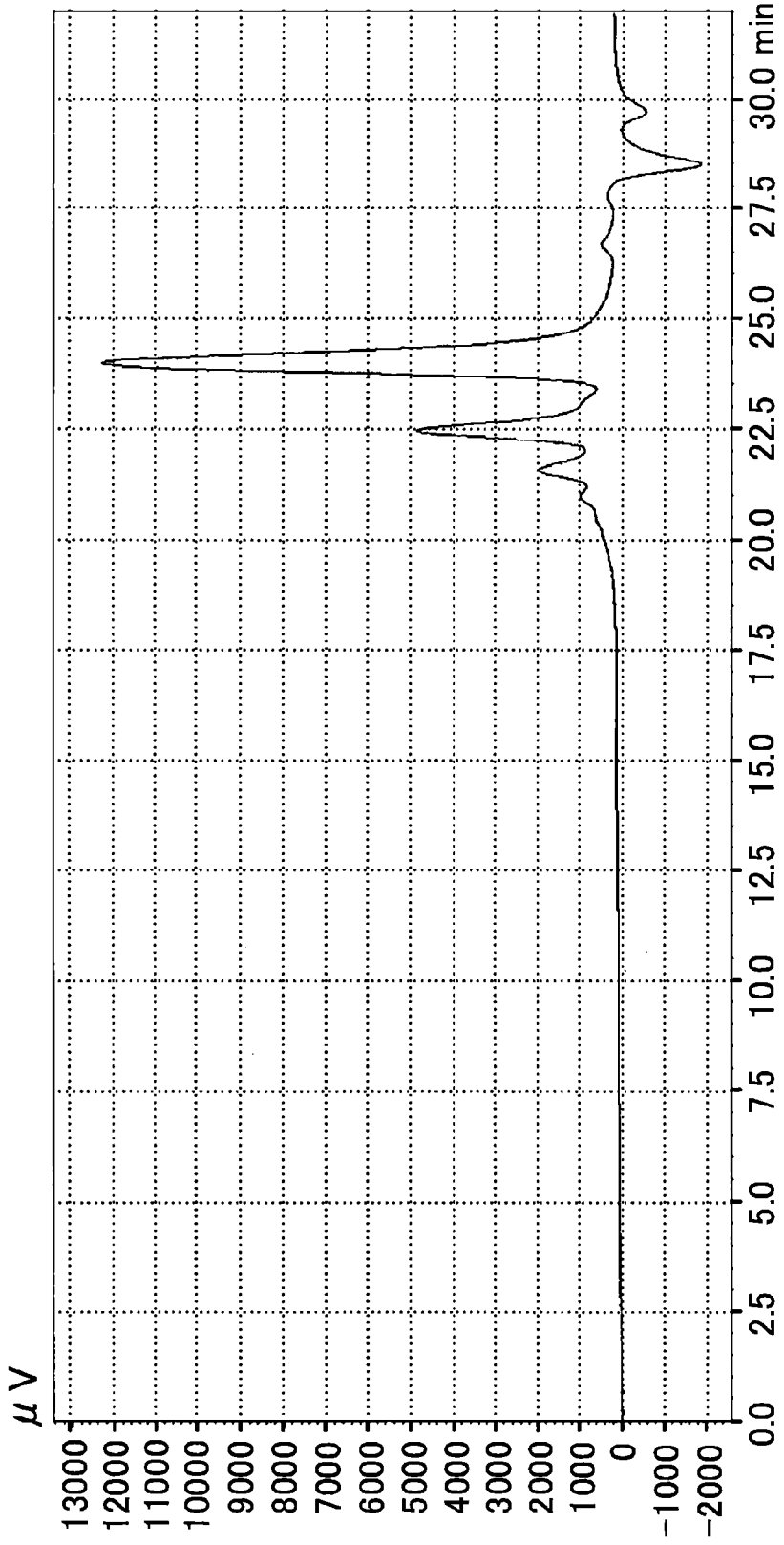
【圖10】


27500
25000
22500
20000
17500
15000
12500
10000
7500
5000
2500
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5 min

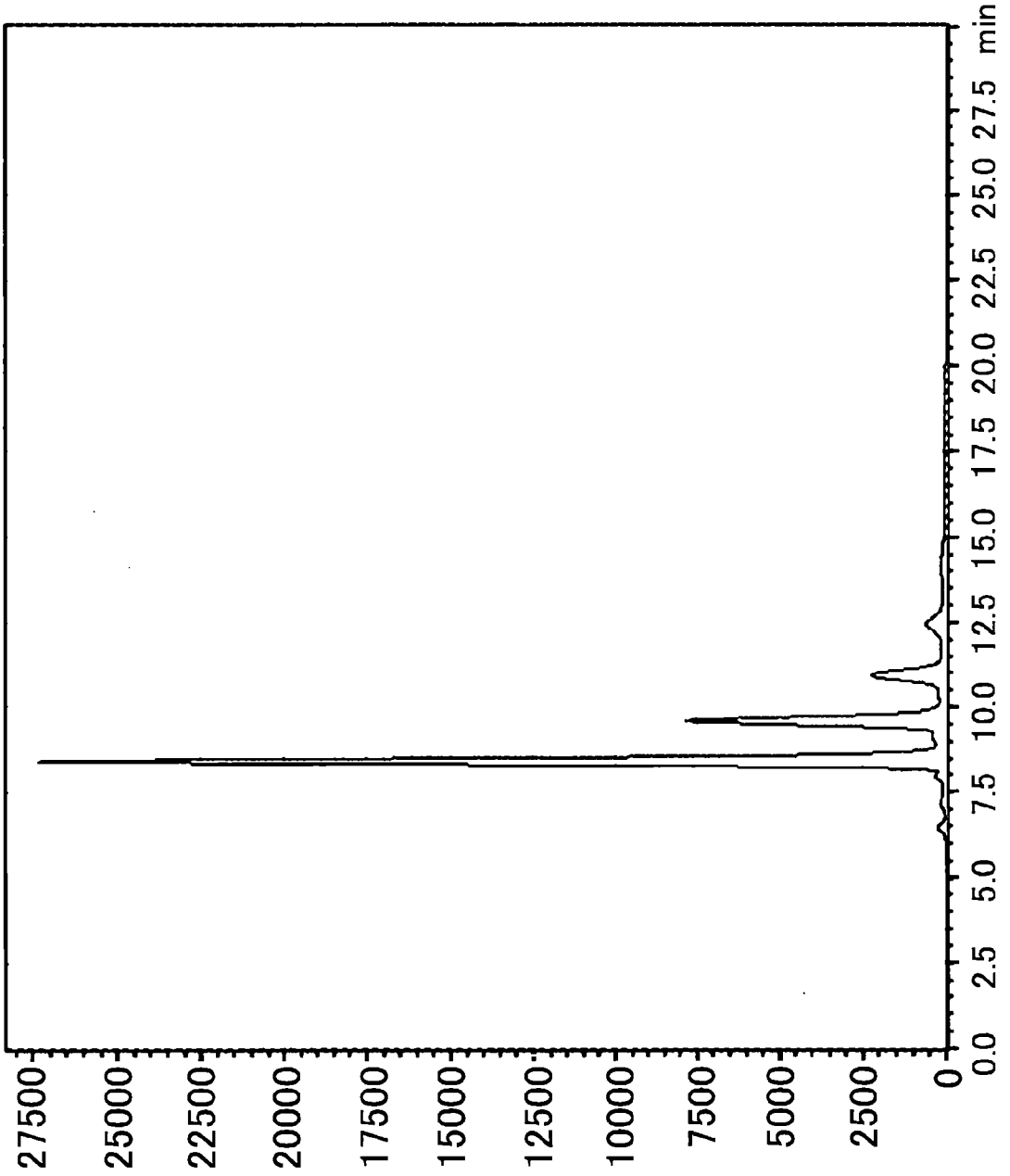
【圖11】


μV
13000
12000
11000
10000
9000
8000
7000
6000
5000
4000
3000
2000
1000
0
−1000
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

【圖12】


μV
13000
12000
11000
10000
9000
8000
7000
6000
5000
4000
3000
2000
1000
0
−1000
−2000
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
30.0 min

【圖13】


27500
25000
22500
20000
17500
15000
12500
10000
7500
5000
2500
0
0.0
2.5
5.0
7.5
10.0
12.5
15.0
17.5
20.0
22.5
25.0
27.5
min

【圖14】

第 112111555 號專利申請案
112 年 8 月 21 日修正替換頁

【發明說明書】

【中文發明名稱】 化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法

【英文發明名稱】 COMPOUND, CURABLE RESIN COMPOSITION, AND CURED PRODUCT THEREOF, AND METHOD FOR PRODUCING THE COMPOUND

【技術領域】

【0001】本發明係關於化合物、硬化性樹脂組成物及其硬化物和化合物的製造方法，係適於使用在半導體密封材、印刷配線基板、組裝(build-up)積層板等電氣與電子元件、碳纖維強化塑膠、玻璃纖維強化塑膠等輕量高強度材料、3D 列印用途。

【先前技術】

【0002】近年來，由於安裝電氣與電子元件之積層板其應用領域的擴大，要求的特性變得更加廣泛且高度化。以往的半導體晶片主要安裝在金屬製之引線框架，惟中央處理裝置(以下表示 CPU)等之高處理能力的半導體晶片越來越多地安裝在由高分子材料製成的積層板。

【0003】特別係使用於智慧型手機等的半導體封裝(以下簡稱 PKG)，為了滿足小型化、薄型化、高密度化的要求，而要求 PKG 基板的厚度變薄，然而 PKG 基板的愈薄則剛性愈低，因此在將 PKG 焊料安裝到母板(印刷電