



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I512008 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 12 月 11 日

(21)申請案號：100128117 (22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 08 月 05 日

(51)Int. Cl. : **C08G73/06 (2006.01)** **C08L79/04 (2006.01)**
 C08K9/06 (2006.01) **C08J5/24 (2006.01)**
 B32B5/28 (2006.01)

(30)優先權：2010/08/06 日本 2010-177380

(71)申請人：日立化成股份有限公司 (日本) HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD. (JP)
 日本

(72)發明人：土川信次 TSUCHIKAWA, SHINJI (JP)；泉寬之 IZUMI, HIROYUKI (JP)；石倉久
 美子 ISHIKURA, KUMIKO (JP)；村井曜 MURAI, HIKARI (JP)

(74)代理人：蔡坤財；李世章

(56)參考文獻：
 TW 200927868A JP 2002-309084A

審查人員：黃晟峰

申請專利範圍項數：5 項 圖式數：0 共 50 頁

(54)名稱

相容化樹脂之製造法、熱硬化性樹脂組成物、預浸體及層合板

(57)摘要

本發明為提供一種相容化樹脂之製造方法、熱硬化性樹脂組成物，及使用該熱硬化性樹脂組成物的預浸體、層合板及線路板。該相容化樹脂之製造方法是使氰酸酯化合物、於末端具有羥基之矽氧烷樹脂及環氧樹脂以特定反應率產生反應。該熱硬化性樹脂組成物是藉由含有下述成分而成：相容化樹脂(A1)，其是以上述相容化樹脂之製造方法來製造而成，或熱硬化性樹脂(A2)，其是使氰酸酯化合物與於末端具有羥基之矽氧烷樹脂以特定反應率產生反應而得到；與熔融矽石(B)，其是藉由三甲氧基矽烷化合物進行了表面處理。該熱硬化性樹脂組成物，在低熱膨脹性、銅箔接著性、耐熱性、難燃性、附銅耐熱性(T-300)、介電特性、鑽孔加工性之全數為優異，可達成今日線路板所要求的高密度化、高可靠性，可廣泛地使用於電子機器等之製造。

公告本

發明專利說明書

(本申請書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：100128117	C08G 73/06 (2006.01)
	C08L 79/04 (2006.01)
※申請日：100 年 08 月 05 日	※IPC 分類：C08K 9/06 (2006.01)
	C08J 5/24 (2006.01)
一、發明名稱：	B32B 5/28 (2006.01)

相容化樹脂之製造法、熱硬化性樹脂組成物、預浸體及層合板

二、中文發明摘要：

本發明為提供一種相容化樹脂之製造方法、熱硬化性樹脂組成物，及使用該熱硬化性樹脂組成物的預浸體、層合板及線路板。該相容化樹脂之製造方法是使氰酸酯化合物、於末端具有羥基之矽氧烷樹脂及環氧樹脂以特定反應率產生反應。該熱硬化性樹脂組成物是藉由含有下述成分而成：相容化樹脂（A1），其是以上述相容化樹脂之製造方法來製造而成，或熱硬化性樹脂（A2），其是使氰酸酯化合物與於末端具有羥基之矽氧烷樹脂以特定反應率產生反應而得到；與熔融矽石（B），其是藉由三甲氧基矽烷化合物進行了表面處理。該熱硬化性樹脂組成物，在低熱膨脹性、銅箔接著性、耐熱性、難燃性、附銅耐熱性（T-300）、介電特性、鑽孔加工性之全數為優異，可達成今日線路板所要求的高密度化、高可靠性，可廣泛地使用於電子機器等之製造。

三、英文發明摘要：

四、指定代表圖：

(一) 本案指定代表圖為：無

(二) 本代表圖之元件符號簡單說明：無

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明為關於一種相容化樹脂之製造法、熱硬化性樹脂組成物、預浸體及層合板，由該相容化樹脂可得到低熱膨脹性、銅箔接著性、耐熱性、難燃性、附銅耐熱性（T-300）、介電特性、鑽孔加工性優異之熱硬化性樹脂組成物。

【先前技術】

熱硬化性樹脂組成物，因為具有交聯構造，並展現出高耐熱性或尺寸安定性，在電子機器等領域被廣泛地使用。特別是作為印刷有線路或電路圖型之印刷線路板，或是構成多層化印刷線路板的銅箔層合板之預浸體或層間絕緣材料來使用。

近年，電子機器之小型化、輕量化、運作頻率之高速化更加進步，印刷線路及電路圖型正進行著高積體化。作為高積體化之方法，已提案有將形成於印刷線路板之印刷線路及電路圖型進行細微化、將已形成電路圖型之電路基板進行多層化、或此等之併用。

例如銅箔層合板，即使是印刷線路及電路圖型已被細微化之情形，亦要求構成印刷線路及電路圖型之導體層具有不會剝離般之剝離強度。

亦即，由於近年對於層合板材料之高密度化或高可靠性之要求，高銅箔接著性與耐熱性、良好的低熱膨脹性等

被視為必要，爲了形成細微線路，關於銅箔接著性，銅箔之剝離強度宜爲 1.0 kN/m 以上，更宜爲 1.2 kN/m 以上。又，爲了高密度化，使用增層 (Build up) 材料等更加高多層化亦爲必要，高回焊耐熱性爲必要，但成爲回焊耐熱性評價指標之附銅耐熱性 (T-300)，宜爲 30 分鐘以上不會生成膨脹等之情形。

進而，伴隨著層合板材料之高密度化，基材處於往更薄型化之方向，熱處理時的基材，其翹曲小變成必要。爲了達到低翹曲化，使基材之平面方向爲低熱膨脹性是有效的，該線膨脹係數宜爲 7ppm/°C 以下、更宜爲 5ppm/°C 以下。又，伴隨著高密度化，基材處於被要求往更具有可靠性之方向，鑽孔加工時鑽孔穴之內壁粗糙度小亦成爲必要。鑽孔穴之內壁粗糙度之評價，係藉由鍍敷銅之滲入性來評價，鍍敷滲入長度之最大值宜爲 20 μ m 以下、更宜爲 15 μ m 以下。進而，對高速反應性之要求亦逐漸增加，基材之比介電率以 4.7 以下，又，介電正切以 0.010 以下者爲宜。

因對於層合板材料有這樣高密度化或高可靠性之要求，作爲絕緣樹脂所使用的熱硬化性樹脂組成物被要求具有高度的特性，正朝向開發能滿足此等所有特性之樹脂組成物。

又，由於近年之環境問題，要求藉由無鉛焊料來進行電子零件之搭載或藉由無鹵素來達到難燃化，因此，相較於以往，更高耐熱性及難燃性爲必要的。進而，爲了製品之安全性或作業環境之提昇，期望僅以毒性低之成分構成

，且不會產生毒性氣體等之熱硬化性樹脂組成物。

熱硬化性樹脂之氰酸酯化合物，雖為介電特性、難燃性優異之樹脂，但若直接地使用於環氧硬化系熱硬化性樹脂時，耐熱性或強韌性會不足，又，在作為對應新世代之熱硬化性樹脂，期望具有進一步之低熱膨脹性。

因此，在專利文獻1、2及3中揭示一種由氰酸酯化合物與無機填充劑所成並展現出低熱膨脹性之樹脂組成物。但，此等為了展現出低熱膨脹性，無機填充劑之調合使用量為多，在作為銅箔層合板或層間絕緣材料使用時，鑽孔加工性或成形性會不足。

又，在專利文獻4及5中揭示一種熱硬化性樹脂，其為了展現出低熱膨脹性，而含有氰酸酯樹脂與芳烷基改質環氧樹脂作為必需成分。但，由於該必需成分之氰酸酯樹脂為韌性與硬化反應性差之樹脂，故在硬化反應性或強韌性之改良上仍然不足，即使是將此等作為銅箔層合板或層間絕緣材料使用時，耐熱性與可靠性、加工性等亦為不足。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻1]特開2003-268136號公報

[專利文獻2]特開2003-73543號公報

[專利文獻3]特開2002-285015號公報

[專利文獻4]特開2002-309085號公報

[專利文獻5]特開2002-348469號公報

【發明內容】**[發明所欲解決的課題]**

本發明之目的為有鑑於如此現狀，將使用熱硬化性樹脂之氰酸酯化合物時之上述問題點解決，並提供一種在低熱膨脹性、銅箔接著性、耐熱性、難燃性、附銅耐熱性（T-300）、介電特性、鑽孔加工性之全數為優異之熱硬化性樹脂組成物、及使用該熱硬化性樹脂組成物的預浸體、層合板及線路板。

[解決課題之手段]

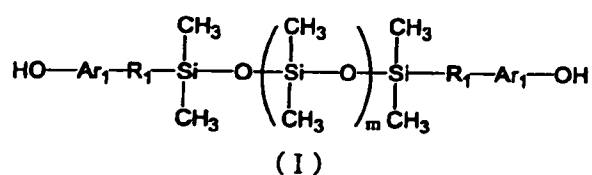
為了解決上述課題本發明人經深入研究的結果，發現藉由使用含有相容化樹脂（A1）或熱硬化性樹脂（A2）與藉由三甲氧基矽烷化合物進行了表面處理之熔融矽石（B）之樹脂組成物，可得到具有如上述般特性之優異熱硬化性樹脂組成物，遂而完成本發明，其中，上述相容化樹脂（A1）或熱硬化性樹脂（A2），係將氰酸酯化合物與於末端具有羥基之矽氧烷樹脂，或進而與環氧樹脂，以特定之反應率產生反應而得到。本發明係基於如此之見解而完成者。

即，本發明為提供以下之相容化樹脂之製造方法、熱硬化性樹脂組成物、預浸體、層合板及線路板。

1.一種具有亞胺基碳酸酯構造及三氮雜苯(triazine)構造之相容化樹脂之製造方法，其特徵係使下述一般式（I

所示於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)、1分子中具有至少2個氰酸酯基之化合物 (b) 及1分子中具有至少2個環氧基之化合物 (c) 進行反應，該反應的條件如下：相對於 (a) ~ (c) 成分之合計量100質量份，(a) 成分為10~50質量份、(b) 成分為40~80質量份、(c) 成分為10~50質量份，於有機金屬鹽 (d) 之存在下，在由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之溶媒中，以80°C~120°C進行反應，(b) 成分之反應率為30~70莫耳%。

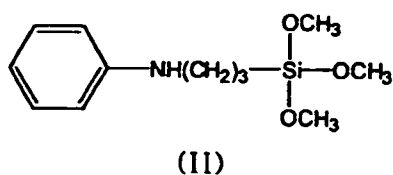
[化1]



(式中，R₁分別獨立為碳數1~5之伸烷基或伸烷氧基，Ar₁分別獨立為單鍵、伸芳基或碳數1~5之伸烷基，m為5~100之整數)。

2. 一種熱硬化性樹脂組成物，其特徵係含有相容化樹脂 (A1) 與熔融矽石 (B)，其中，該相容化樹脂 (A1) 是藉由上述1之方法所製造，該熔融矽石 (B) 藉由下述式 (II) 所示之三甲氧基矽烷化合物進行表面處理。

[化2]



3. 一種熱硬化性樹脂組成物，其係含有熱硬化性樹脂

(A2) 與藉由式 (II) 所示三甲氧基矽烷化合物進行表面處理之熔融矽石 (B)，其特徵為前述熱硬化性樹脂 (A2) 為將一般式 (I) 所示於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)，與 1 分子中具有至少 2 個以上之氰酸酯基之化合物 (b)，在有機溶媒中進行反應而得到，相對於該矽氧烷樹脂 (a) 與該化合物 (b) 之總和 100 質量份，該矽氧烷樹脂 (a) 的含量為 10~70 質量份及該化合物 (b) 的含量為 30~90 質量份，該化合物 (b) 之反應率為 40~70 莫耳 %。

4. 一種預浸體，係將如上述 2 或 3 之熱硬化性樹脂組成物含浸或塗佈於基材中後，進行 B 階段化而成。

5. 一種層合板，係使用如上述 4 之預浸體所形成。

[發明之效果]

將本發明之熱硬化性樹脂組成物含浸或塗佈於基材上而得到的預浸體、及藉由將該預浸體層合成形所製造的層合板，由於在低熱膨脹性、銅箔接著性、耐熱性、難燃性、附銅耐熱性 (T-300)、介電特性、鑽孔加工性之方面全數為優異，且不會造成環境問題，製品之安全性亦優異，故作為電子機器用印刷線路板為極有用的。

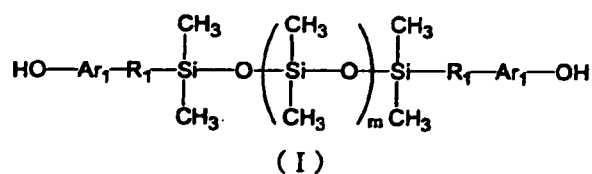
[實施發明的最佳型態]

以下，詳細地說明本發明。

首先，本發明之相容化樹脂 (A1) 之製造方法，其特徵係使下述一般式 (I) 所示於末端具有羥基之矽氧烷樹

脂 (a)、1 分子中具有至少 2 個氰酸酯基之化合物 (b) 及 1 分子中具有至少 2 個環氧基之化合物 (c) 進行反應，該反應的條件如下：相對於 (a) ~ (c) 成分之合計量 100 質量份，(a) 成分為 10 ~ 50 質量份、(b) 成分為 40 ~ 80 質量份、(c) 成分為 10 ~ 50 質量份，於有機金屬鹽 (d) 之存在下，在由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之溶媒中，以 80°C ~ 120°C 進行亞胺基碳酸酯化反應及三氮雜苯環形成反應，(b) 成分之反應率為 30 ~ 70 莫耳 % 之方法。

[化3]



(式中， R_1 分別獨立為碳數 1 ~ 5 之伸烷基或伸烷氧基， Ar_1 分別獨立為單鍵、伸芳基或碳數 1 ~ 5 之伸烷基， m 為 5 ~ 100 之整數)。

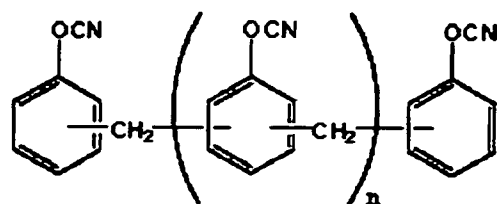
此外，亞胺基碳酸酯化反應，係藉由羥基與氰酸酯基之加成反應而生成亞胺基碳酸酯鍵 (-O-(C=NH)-O-) 之反應，三氮雜苯環化反應，係氰酸酯基形成三聚化三氮雜苯環之反應。又，藉由此氰酸酯基形成三聚化三氮雜苯環之反應，會進行立體網狀構造化，此時，使 1 分子中具有至少 2 個環氧基之化合物 (c) 均勻地分散於立體網狀構造中，藉此可製造使 (a) 成分、(b) 成分及 (c) 成分呈均勻分散之相容化樹脂。

本發明之相容化樹脂 (A1) 之製造時所使用的 (a) 成分之矽氧烷樹脂，只要是含有上述一般式 (I) 所示構

造之羥基之矽氧烷樹脂即可，無特別限定。可舉例，例如兩末端為酚性羥基之信越化學工業（股）製之商品名 X-22-1821（羥基價：35 KOHmg/g）、商品名 X-22-1822（羥基價：20 KOHmg/g）、Dow Corning Toray（股）製之商品名 BY16-752A（羥基價：30 KOHmg/g）、及兩末端為醇性羥基之信越化學工業（股）製之商品名 X-22-160AS（羥基價：112 KOHmg/g）、商品名 KF-6001（羥基價：62 KOHmg/g）、商品名 KF-6002（羥基價：35 KOHmg/g）、商品名 KF-6003（羥基價：20 KOHmg/g）、商品名 X-22-4015（羥基價：27 KOHmg/g）等。

作為製造相容化樹脂（A1）時所使用的（b）成分，亦即1分子中具有至少2個氰酸酯基之化合物，例如舉例如酚醛型氰酸酯樹脂、雙酚A型氰酸酯樹脂、雙酚E型氰酸酯樹脂、雙酚F型氰酸酯樹脂、四甲基雙酚F型氰酸酯樹脂等，可以1種或混合2種以上予以使用。此等之中，就介電特性、耐熱性、難燃性、低熱膨脹性、及廉價之點而言，以雙酚A型氰酸酯樹脂、下述一般式（III）所示酚醛型氰酸酯樹脂為特佳。

[化4]



(III)

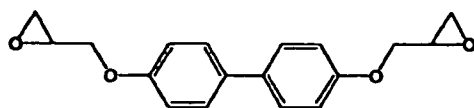
（n為0或1以上之整數）。

上述一般式 (III) 之 n 為酚醛型氰酸酯樹脂之平均重覆數，雖無特別限定，但平均值較佳為 $0.1 \sim 30$ 。只要 n 為 0.1 以上時，就不會有結晶化而使得操作變得困難之情形，又，只要為 30 以下時，硬化物不會有變脆之情形。

作為製造相容化樹脂 (A1) 時所使用的 (c) 成分，亦即 1 分子中具有至少 2 個環氧基之化合物，例如舉例如雙酚 A 系、雙酚 F 系、聯苯系、酚醛系、多官能酚系、萘系、脂環式系及醇系等之縮水甘油醚系、縮水甘油胺系以及縮水甘油酯系等，可以 1 種或混合 2 種以上予以使用。

此等之中，就高剛性、介電特性、耐熱性、難燃性、耐濕性及低熱膨脹性之點而言，較佳為萘型環氧樹脂、萘酚芳烷基型環氧樹脂、二羥基萘芳烷基型環氧樹脂、萘酚芳烷基·甲酚共聚合型環氧樹脂等含有萘環之環氧樹脂；聯苯型環氧樹脂、聯苯芳烷基型環氧樹脂等含有聯苯基之環氧樹脂，就對於芳香族系有機溶劑之溶解性之點而言，更佳為萘酚芳烷基型環氧樹脂、萘酚芳烷基·甲酚共聚合型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂，就廉價與環氧當量小、以少量之調合即可之方面而言，特佳為下述式 (IV) 所示聯苯型環氧樹脂。

[化5]



(IV)

在相容化樹脂 (A1) 之製造方法中，原料組成以相對於 (a) ~ (c) 成分之合計量 100 質量份，(a) 成分為 10

~ 50 質量份、(b) 成分為 40~80 質量份、(c) 成分為 10~50 質量份，於有機金屬鹽 (d) 之存在下，在由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之溶媒中，以 80°C~120°C 進行反應，使 (b) 成分之反應率為 30~70 莫耳%。

(d) 成分之有機金屬鹽係作為反應觸媒，例如舉例如環烷酸鋅、環烷酸鈷、辛酸錫、辛酸鈷等。胺系或咪唑系之含氮原子反應觸媒，因會使所得到的樹脂之硬化物變脆、耐熱性或接著性降低，故不宜。

即，本發明之相容化樹脂 (A1) 之製造方法，係事先將 (a)~(c) 成分均勻地溶解於由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之溶媒中，並以 80~120°C 之反應溫度使亞胺基碳酸酯化反應、及三氮雜苯環化反應進行，以使具有氰酸酯基之化合物 (b) 之反應率成為 30~70 莫耳% 般地進行預反應。

在此，反應溶媒為使用由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之芳香族系溶媒。視所需，亦可使用少量之其他溶劑，但其他溶劑會使所希望之反應無法進行、並造成耐熱性等降低。又，苯為強毒性，並且是分子量較均三甲苯為大之芳香族系溶媒，在預浸體之製造塗佈時因為容易成為殘留溶劑，故不宜。

製造相容化樹脂 (A1) 之原料組成，以相對於 (a)~(c) 成分之合計量 100 質量份，(a) 成分為 10~50 質量份、(b) 成分為 40~80 質量份、(c) 成分為 10~50 質量份，較佳是 (a) 成分為 10~30 質量份、(b) 成分為 50

~ 70 質量份、(c) 成分為 10~40 質量份。在此，(a) 成分若未滿 10 質量份時，所得到基材之平面方向之低熱膨脹性會有降低之情形，又，(a) 成分若超過 50 質量份時，耐熱性或耐藥品性會有降低之情形。(b) 成分若未滿 40 質量份時，所得到樹脂之相容性會有降低之情形，又，(b) 成分若超過 80 質量份時，所得到基材之平面方向之低熱膨脹性會有降低之情形。(c) 成分若未滿 10 質量份時，耐濕耐熱性會有降低之情形，又，(c) 成分若超過 50 質量份時，銅箔接著性或介電特性會有降低之情形。

有機金屬鹽 (d) 之使用量，相對於 (a)~(c) 成分之合計量 100 質量份，較佳為 0.0001~0.004 質量份。藉由設定為 0.0001 質量份以上，反應可在不需長時間下而達到所希望之反應率。又，藉由設定為 0.004 質量份以下，不會有反應速度過快而使得終點管理變得困難之情形。在此，具有氰酸酯基之化合物 (b) 之反應率，係藉由凝膠滲透層析儀 (GPC) 進行測定，是將反應開始時之 (b) 成分之具有氰酸酯基之化合物之峰面積，與指定時間反應後之峰面積做比較，由峰面積之消失率而求得。

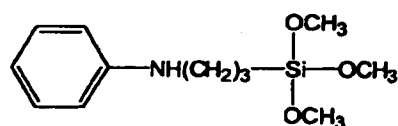
如此般之預反應之反應溫度為 80~120℃，較佳為 100~110℃。反應溫度若未滿 80℃ 時，製造時間 (反應時間) 有變得過長之情形，若超過 120℃ 時，因產生環氧樹脂之副反應，會有凝膠化之情形。

預反應之反應率，以使具有氰酸酯基之化合物 (b) 之反應率 (消失率) 成為 30~70 莫耳%，較佳為成為 40~

68莫耳%般地予以設定。反應率若未滿30莫耳%時，所得到樹脂無法相容化，樹脂會分離並白濁，無法製造出B階段之塗佈織物。又，反應率若超過70莫耳%時，所得到熱硬化性樹脂不會溶於溶劑，會有變得無法製造A階段之清漆（熱硬化性樹脂組成物），或是有預浸體之凝膠時間變得過短，在沖壓之際成形性降低之情形。

本發明之熱硬化性樹脂組成物（I），其特徵係含有藉由以上之方法所製造的相容化樹脂（A1）及、藉由下述式（II）所示之三甲氧基矽烷化合物進行表面處理之熔融矽石（B）。

[化6]



(II)

（B）成分之已表面處理之熔融矽石，係藉由使用上述式（II）所示三甲氧基矽烷化合物，將熔融矽石進行表面處理而得到。（B）成分，是藉由將熔融矽石添加、混合於例如甲基乙基酮、甲基異丁基酮、環己酮等之酮系有機溶劑或乙二醇單甲基醚、丙二醇單甲基醚等之醇系有機溶劑中後，添加上述式（II）所示三甲氧基矽烷化合物，以60~120℃一邊攪拌0.5~5小時左右，一邊使表面處理（濕式處理）進行而得到（B）成分。該熔融矽石亦可由Admatechs公司等以商業方式取得，例如有Admatechs公司製之商品名SC-2050KNK或SC-2050HMK等。

（B）成分之熔融矽石之使用量，相對於以換算之相

容化樹脂 (A1) 100質量份，較佳是設定為10~300質量份、更佳為100~250質量份、特佳為150~250質量份。藉由設定為10質量份以上，基材之剛性或耐濕耐熱性、難燃性不會有不足之情形，又，藉由設定為300質量份以下，成形性或耐鍍敷液性等之耐藥品性不會有降低之情形。

本發明之熱硬化性樹脂組成物 (II)，係含有熱硬化性樹脂 (A2) 以及藉由式 (II) 所示之三甲氧基矽烷化合物進行表面處理之熔融矽石 (B) 之熱硬化性樹脂組成物，該熱硬化性樹脂組成物的特徵如下所述：前述熱硬化性樹脂 (A2) 為將一般式 (I) 所示於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)，與1分子中具有至少2個以上之氰酸酯基之化合物 (b)，在有機溶媒中進行反應而得，相對於該矽氧烷樹脂 (a) 與該化合物 (b) 之總和100質量份，該矽氧烷樹脂 (a) 的含量為10~70質量份且該化合物 (b) 的含量為30~90質量份，而該化合物 (b) 之反應率為40~70莫耳%之熱硬化性樹脂組成物。

熱硬化性樹脂 (A2) 中所使用的於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)、1分子中具有至少2個以上之氰酸酯基之化合物 (b)、以及有機溶媒，係使用與前述相容化樹脂 (A1) 之製造時所使用者為相同。

又，熱硬化性樹脂組成物 (II) 中所使用的熔融矽石 (B)，係使用與熱硬化性樹脂組成物 (I) 中所使用者為相同。

熱硬化性樹脂 (A2) 中所使用的矽氧烷樹脂 (a) 與

化合物 (b) 之調合量，以設定如以下者為較佳。

即，相對於矽氧烷樹脂 (a) 與化合物 (b) 之總和 100 質量份，將矽氧烷樹脂 (a) 之調合量設定為 10~70 質量份之範圍。又，將化合物 (b) 之調合量設定為 30~90 質量份之範圍。

只要矽氧烷樹脂 (a) 之調合量為 10~70 質量份之範圍時，熱硬化性樹脂 (A) 所塗佈之基材之平面方向可得到足夠的低熱膨脹性。又，只要矽氧烷樹脂 (a) 之調合量為 10~70 質量份之範圍時，可得到足夠的耐熱性及耐藥品性。又，只要化合物 (b) 之調合量為 30~90 質量份之範圍時，使用熱硬化性樹脂 (A) 所得到的基材，其平面方向可得到足夠的低熱膨脹性。又，可得到足夠的耐熱性。

又，熱硬化性樹脂 (A2)，較佳為使矽氧烷樹脂 (a) 與化合物 (b)，以化合物 (b) 之反應率 (消失率) 成為 40~70 莫耳 % 般地，事先在有機溶媒中進行預反應。預反應方面，舉例如前述的亞胺基碳酸酯化反應以及三氮雜苯環化反應。

化合物 (b) 之反應率若為 40~70 莫耳 % 時，矽氧烷樹脂 (a) 與化合物 (b) 反應所得到的熱硬化性樹脂 (A2) 與泛用的有機溶媒之相溶性良好，因而得到足夠的硬化性，可提高所得到的熱硬化性樹脂 (A2) 之耐熱性。又，若是上述範圍，則銅箔接著性良好。又，只要是上述範圍時，熱硬化性樹脂 (A) 不易結晶化，容易製作清漆，成形

性良好。又，使熱硬化性樹脂（A）之溶液含浸於玻璃纖維等，可降低於半硬化狀態（所謂的B階段狀態）下之沾黏（tack）產生。

此外，化合物（b）之反應率，是由GPC測定之測定結果所求得。具體為，使用調合有矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）之反應前溶液、及使此溶液產生反應後之溶液，來比較在指定保持時間附近所出現的氰酸酯樹脂之峰面積。相對於反應前溶液之峰面積，反應後溶液之峰面積之消失率則相當於反應率。

熱硬化性樹脂組成物（II）之熔融矽石（B）之調含量，以固體成分換算，相對於熱硬化性樹脂（A）100質量份，較佳是設定為10~300質量份、更佳為100~250質量份、特佳為150~250質量份。熔融矽石（B）之調含量只要是10~300質量份時，可得到足夠的基材之剛性、耐濕耐熱性、難燃性、對於因鍍敷溶液之浸蝕之耐性等。

對於熱硬化性樹脂組成物（I）及熱硬化性樹脂組成物（II）（以下亦總稱為本發明之熱硬化性樹脂組成物），亦可使用（B）成分以外之無機填充劑（C）。作為無機填充劑（C），例如舉例如破碎矽石、雲母、滑石、玻璃短纖維或微粉末及中空玻璃、碳酸鈣、石英粉末、金屬水合物等。此等之中，就低熱膨脹性或高彈性、耐熱性、難燃性之點而言，較佳為氫氧化鋁、氫氧化鎂等之金屬水合物。進而，在金屬水合物之中，就兼具高耐熱性與難燃性之點而言，更佳的是熱分解溫度為300℃以上之金屬水合

物，例如將水鋁礦型氫氧化鋁（ AlOOH ）、或水礬土型氫氧化鋁（ $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）藉由熱處理將其熱分解溫度調整成 300°C 以上之化合物、氫氧化鎂等，特別是以廉價，且具有 350°C 以上之特別高的熱分解溫度與高耐藥品性之水鋁礦型氫氧化鋁（ AlOOH ）為特佳。

熱硬化性樹脂組成物（I）之無機填充劑（C）之使用量，相對於以固體成分換算之相容化樹脂（A1）100質量份，較佳是設定為0~200質量份、更佳為10~150質量份、特佳為50~150質量份。若為10質量份以上時，不會有難燃性不足之情形，若為200質量份以下時，耐鍍敷液性等之耐藥品性與成形性不會有降低之情形。

熱硬化性樹脂組成物（II）之無機填充劑（C）之使用量，以固體成分換算，相對於熱硬化性樹脂（A2）100質量份，較佳是設定為10~200質量份、更佳為10~150質量份、特佳為50~150質量份。無機填充劑（C）只要是10~200質量份之範圍時，可得到足夠的難燃性、對於鍍敷溶液造成之浸蝕之耐性、成形性。

本發明之熱硬化性樹脂組成物中，為了提昇耐熱性或難燃性、銅箔接著性等，宜使用硬化促進劑，作為硬化促進劑之例，舉例如環烷酸鋅、環烷酸鈷、辛酸錫、辛酸鈷等之有機金屬鹽、咪唑類及其衍生物、三級胺類及四級銨鹽等。藉由使用硬化促進劑，耐熱性或難燃性、銅箔接著性等不會有不足之情形。

本發明之熱硬化性樹脂組成物中，可任意併用（B）

、(C)成分以外之無機難燃助劑(D)。但，含有溴或氯之含鹵素系難燃劑或熱分解溫度為未滿300℃之金屬氫氧化物等，並不符本發明之目的。

作為無機難燃助劑(D)之例，舉例如三苯基磷酸酯、三甲苯基磷酸酯、參二氯丙基磷酸酯、磷酸酯系化合物、磷腈(phosphazene)、赤磷等之磷系難燃劑、三氧化銻、鉬酸鋅等之無機難燃助劑等。特別是，將鉬酸鋅附著乘載於滑石等無機填充劑之無機難燃助劑，因為不僅僅是難燃性，亦可使鑽孔加工性顯著地提昇化，故為特佳之無機難燃助劑。鉬酸鋅之使用量，相對於相容化樹脂(A1)或熱硬化性樹脂(A2)100質量份，較佳是設定為5~20質量份。藉由設定為5質量份以上，難燃性或鑽孔加工性會提昇，又，藉由設定為20質量份以下，不會有因為清漆之凝膠時間變得過短，而在藉由沖壓成形層合板之際使得成形性降低之情形。

本發明之熱硬化性樹脂組成物中，可任意地含有習知的熱可塑性樹脂、彈性物、難燃劑、有機填充劑。

作為熱可塑性樹脂之例，舉例如聚四氟乙烯、聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、聚苯醚樹脂、苯氧基樹脂、聚碳酸酯樹脂、聚酯樹脂、聚醯胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、二甲苯樹脂、石油樹脂及聚矽氧樹脂等。

作為彈性物之例，舉例如聚丁二烯、ABS樹脂、環氧改質聚丁二烯、順丁烯二酸酐改質聚丁二烯、酚改質聚丁二烯及羧改質丙烯腈等。

作為難燃劑之例，舉例如前述無機填充劑（C）。

作為有機填充劑之例，舉例如聚矽氧粉末、聚四氟乙烯、聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、以及聚苯醚等之有機物粉末等。

在本發明中，對於本發明之熱硬化性樹脂組成物，可任意地添加紫外線吸收劑、抗氧化劑、光聚合起始劑、螢光增白劑及密著性提昇劑等，無特別限定。作為此等之例，舉例如苯并三唑系等之紫外線吸收劑、受阻酚系或苯乙烯化酚等之抗氧化劑、二苯基酮類、苄基縮酮類、噻吨酮(thioxanthone)系等之光聚合起始劑、芪衍生物等之螢光增白劑、尿素矽烷等之尿素化合物或矽烷偶合劑等密著性提昇劑等。

本發明之預浸體，係將前述本發明之熱硬化性樹脂組成物含浸或塗佈於基材中後，進行B階段化者。以下，對於本發明之預浸體進行詳述。

即，本發明之預浸體為將本發明之熱硬化性樹脂組成物含浸或塗佈於基材中，藉由加熱等進行半硬化（B階段化），而可製造本發明之預浸體。

預浸體所使用的基材，可使用各種使用於電絕緣材料用層合板之周知者。作為該材質之例，舉例如E玻璃、D玻璃、S玻璃及Q玻璃等無機物纖維、聚醯亞胺、聚酯及四氟乙烯等有機纖維、以及此等之混合物等。此等基材，具有例如織布、不織布、粗紗、切股氈(chopped strand mat)及表面氈(surfacing mat)等形狀，但其材質及形狀是

依作為目的之成形物之用途或性能來加以選擇，視所需，可單獨或組合2種以上之材質及形狀來使用。

基材之厚度無特別限制，可使用例如約0.03~0.5mm者，就耐熱性或耐濕性、加工性之方面而言，已使用矽烷偶合劑等進行表面處理者或已施予機械性開纖處理者是合適的。

本發明之預浸體，是將熱硬化性樹脂組成物相對於該基材之附著量，以乾燥後預浸體之樹脂含有率成為20~90質量%般的方式，含浸或塗佈於基材後，通常，以100~200℃之溫度加熱乾燥1~30分鐘，進行半硬化（B階段化）來獲得。

本發明之層合板，係使用本發明之預浸體所形成者，可使用前述預浸體來進行層合成形而形成。

即，本發明之層合板，例如可重疊1~20片的前述預浸體，於該預浸體的單面或雙面配置銅及鋁等金屬箔，並以上述之構成，藉由進行層合成形而製造。金屬箔，只要是在電絕緣材料用途所使用者即可，無特別限制。

又，成形條件，例如可使用電絕緣材料用層合板及多層板之手法，例如可使用多段沖壓、多段真空沖壓、連續成形、高壓釜成形機等，以溫度100~250℃、壓力2~100kg/cm²（0.2~10MPa）、加熱時間0.1~5小時之範圍，來進行成形。又，亦可組合本發明之預浸體與內層用線路板，並進行層合成形，來製造多層板。

【實施方式】

[實施例]

以下，藉由下述實施例將本發明更詳細地予以說明，惟，不論何等意義本發明並不僅限制於此等實施例。

此外，將以下之實施例及比較例中所得到的銅箔層合板使用以下之方法進行測定，並進行評價。

(1) 銅箔接著性 (銅箔剝離強度)

藉由將銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，以形成1cm寬之銅箔來製作評價基板，使用拉伸試驗機進行銅箔之接著性 (剝離強度) 測定。

(2) 玻璃轉移溫度 (T_g)

藉由將銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，製作已將銅箔除去之5mm見方之評價基板，使用TMA試驗裝置 (DuPont公司製、TMA2940)，藉由觀察評價基板平面方向之熱膨脹特性來進行評價。

(3) 焊料耐熱性

藉由將銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，製作已將銅箔除去之5cm見方之評價基板，使用平山製作所 (股) 製的加壓蒸煮器試驗裝置，以121℃、2atm之條件，進行4小時之加壓蒸煮器處理後，將評價基板浸漬於溫度288℃之焊料槽20秒鐘後，藉由進行外觀觀察來評價焊料耐熱性。

(4) 線熱膨脹係數

藉由將銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，製作已將銅箔除去之5mm見方之評價基板，使用TMA試驗裝置（DuPont公司製、TMA2940），測定評價基板平面方向之30℃～100℃之線熱膨脹率。

(5) 難燃性

藉由將銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，由已除去銅箔的評價基板，製作出裁切成長度127mm、寬度12.7mm的試片，依據UL94之試驗法（V法）進行評價。

(6) 附銅耐熱性（T-300）

由銅箔層合板製作5mm見方之評價基板，使用TMA試驗裝置（DuPont公司製、TMA2940），藉由測定於300℃下評價基板產生膨脹為止所花費之時間來進行評價。

(7) 介電特性（比介電率及介電正切）

藉由將所得到的銅箔層合板浸漬於銅蝕刻液中，以製作已將銅箔除去的評價基板，使用Hewlett·Packerd公司製的比介電率測定裝置（製品名：HP4291B），測定頻率1GHz下的比介電率及介電正切。

(8) 鑽孔加工性

鑽孔為使用直徑0.105mm (Union tool公司 MV J676) , 以回轉數 : 160,000 rpm、進刀速度 : 0.8m/分鐘、重疊張數 : 1張 , 來進行鑽孔加工 , 進行6000擊 (hit) 來製作評價基板 , 評價鑽孔穴之內壁粗糙度。內壁粗糙度之評價 , 係藉由進行無電解銅鍍敷 (鍍敷厚 : 15 μ m) , 並測定於穴壁之鍍敷滲入長度之最大值來予以評價。

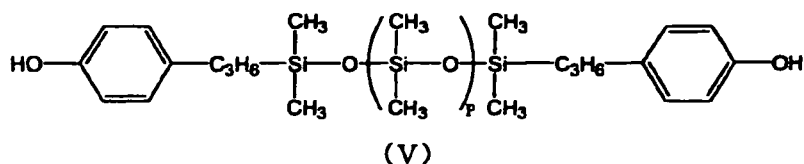
製造例1 : 相容化樹脂 (A1-1) 之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中 , 投入雙酚A型氰酸酯樹脂 (LONZA Japan公司製 ; 商品名 Primaset BADCy) : 600.0g、下述式 (V) 所示的矽氧烷樹脂 (信越化學公司製 ; 商品名 X-22-1821、羥基當量 : 1,600) : 200.0g、聯苯型環氧樹脂 (Japan Epoxy Resin公司製 ; 商品名 YX-4000、環氧當量 : 186) : 200.0g及甲苯 : 1000.0g。接著 , 一邊攪拌 , 一邊昇溫至120 $^{\circ}$ C , 於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後 , 添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.01g , 以約110 $^{\circ}$ C進行4小時反應。之後 , 冷卻至室溫後得到相容化樹脂 (A1-1) 之溶液。

將此反應溶液取出少量 , 進行GPC測定 (聚苯乙烯換算、溶離液 : 四氫呋喃) 之結果 , 在溶出時間為約12.4分鐘附近所出現合成原料之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積 , 相較於反應開始時之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積 , 峰面積之消失率 [(b) 成分之反應率] 為68%。又 , 確認到在

約 10.9 分鐘附近，及 8.0 ~ 10.0 分鐘附近出現的熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比 1 : 1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行 FT-IR 測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了相容化樹脂（A1-1）之製造。

[化7]



（式中之 p ，平均值為 35 ~ 40 之數）。

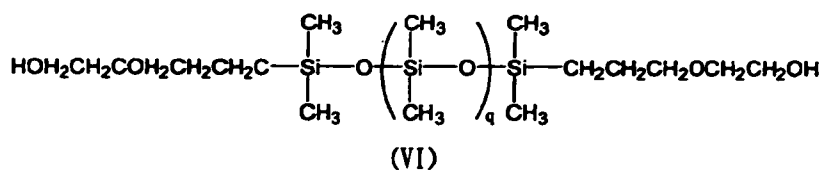
製造例 2：相容化樹脂（A1-2）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 3 公升之反應容器中，投入酚醛型氰酸酯樹脂（LONZA Japan 公司製；商品名 Primaset PT-15，質量平均分子量 500 ~ 1,000）：800.0g、下述式（VI）所示的矽氧烷樹脂（信越化學公司製；商品名 KF-6003、羥基當量：2800）：100.0g、萘酚芳烷基·甲酚共聚合型環氧樹脂（日本化藥公司製；商品名 NC-7000L、環氧當量：230）：100.0g 及 甲苯：1000.0g。接著，一邊攪拌，一邊昇溫至 120°C ，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之 8 質量 % 礦油精溶液 0.01g，以約 110°C 進行 4 小時反應。之後，冷卻至室溫後得到相容化樹脂（A-2）之

溶液。

將此反應溶液取出少量，進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）之結果，在溶出時間為約12.1分鐘附近所出現合成原料之酚醛型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之酚醛型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔（b）成分之反應率〕為43%。又，確認到在約10.9分鐘附近，及8.0~10.0分鐘附近，有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行FT-IR測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了相容化樹脂（A1-2）之製造。

[化8]



（式中之 q ，平均值為70~75之數）。

製造例3：相容化樹脂（A1-3）之製造

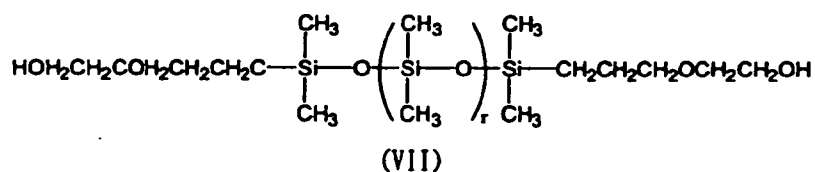
在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中，投入二環戊二烯型氰酸酯樹脂（LONZA Japan公司製；商品名Primaset DT-4000，質量平均分子量500~1,000）：400.0g、下述式（VII）所示的矽氧烷樹脂（信越化學公司製；商品名X-22-160AS

、羥基當量：500）：100.0g、聯苯芳烷基型環氧樹脂（日本化藥公司製；商品名NC-3000H、環氧當量：280）：500.0g及均三甲苯：1000.0g。

接著，一邊攪拌，一邊昇溫至120℃，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.30g，以約110℃進行4小時反應。之後，冷卻至室溫後得到相容化樹脂（A1-3）之溶液。

將此反應溶液取出少量，進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）之結果，在溶出時間為約12.0分鐘附近所出現合成原料之酚醛型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之酚醛型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔（b）成分之反應率〕為43%。又，確認到在約10.9分鐘附近，及8.0~10.0分鐘附近，有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行FT-IR測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了相容化樹脂（A1-3）之製造。

[化9]



（式中之r，平均值為10~15之數）。

製造例 4：相容化樹脂（A1-4）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中，投入雙酚A型氰酸酯樹脂（LONZA Japan公司製；商品名Primaset BADCy）：400.0g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學公司製；商品名X-22-1821、羥基當量：1,600）：500.0g、萘型環氧樹脂（大日本油墨化學公司製；商品名Epiclon HP-4032、環氧當量：150）：100.0g、甲苯：1000.0g。接著，一邊攪拌，一邊昇溫至120℃，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.01g，以約110℃進行4小時反應。之後，冷卻至室溫後得到相容化樹脂（A1-4）之溶液。

將此反應溶液取出少量，進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）之結果，在溶出時間為約12.4分鐘附近所出現合成原料之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔（b）成分之反應率〕為55%。又，確認到在約10.9分鐘附近，及8.0~10.0分鐘附近，有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行FT-IR測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了相容化樹脂（A1-4）之製造。

製造例 5：藉由三甲氧基矽烷化合物進行表面處理之熔融矽石（B-1）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中調合熔融矽石（Admatechs公司製；商品名SO-25R）：700.0g與丙二醇單甲基醚：1000.0g，一邊攪拌一邊添加N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（信越化學公司製；商品名KBM-573）：7.0g。接著，昇溫至80℃，以80℃進行1小時反應，在進行熔融矽石之表面處理（濕式處理）後，冷卻至室溫，並得到藉由N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷進行了表面處理（濕式處理）之熔融矽石（B-1）之溶液。

比較製造例 1：（樹脂（A1-5）：（b）成分之反應率18%）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中，投入雙酚A型氰酸酯樹脂（LONZA Japan公司製；商品名Primaset BADCy）：600.0g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學公司製；商品名X-22-1821、羥基當量：1,600）：200.0g、聯苯型環氧樹脂（Japan Epoxy Resin公司製；商品名YX-4000、環氧當量：186）：200.0g、甲苯：1000.0g。接著，一邊攪拌，一邊昇溫至120℃，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液

0.01g，以約110℃進行1小時反應。之後，冷卻至室溫後得到樹脂（A1-5）之溶液。

將此反應溶液取出少量，進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）之結果，在溶出時間為約12.4分鐘附近所出現合成原料之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之雙酚A型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔（b）成分之反應率〕為18%。又，此溶液於隔天因結晶化而產生沈澱物。

比較製造例2：（樹脂（A1-6）：（b）成分之反應率76%）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中，投入雙酚A型氰酸酯樹脂（LONZA Japan公司製；商品名Primaset BADCy）：600.0g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學公司製；商品名X-22-1821、羥基當量：1,600）：200.0g、聯苯型環氧樹脂（Japan Epoxy Resin公司製；商品名YX-4000、環氧當量：186）：200.0g及甲苯：1000.0g。接著，一邊攪拌，一邊昇溫至120℃，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.01g，以約120℃進行6小時反應。之後，冷卻至室溫後得到樹脂（A1-6）之溶液。

將此反應溶液取出少量，進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）之結果，在溶出時間為約12.4分

鐘附近所出現合成原料之雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔(b) 成分之反應率〕為 76%。

比較製造例 3：(樹脂 (A1-7)：(b) 成分之反應率 53%、(c) 成分無) 之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 2 公升之反應容器中，投入雙酚 A 型氰酸酯樹脂 (LONZA Japan 公司製；商品名 Primaset BADCy)：600.0g、前述式 (V) 所示的矽氧烷樹脂 (信越化學公司製；商品名 X-22-1821、羥基當量：1,600)：200.0g、甲苯：800.0g。接著，一邊攪拌，一邊昇溫至 120℃，於確認樹脂固體成分已溶解成均勻溶液後，添加環烷酸鋅之 8 質量% 礦油精溶液 0.01g，以約 110℃ 進行 4 小時反應。之後，冷卻至室溫後得到樹脂 (A1-7) 之溶液。

將此反應溶液取出少量，進行 GPC 測定 (聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃) 之結果，在溶出時間為約 12.4 分鐘附近所出現合成原料之雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰面積，相較於反應開始時之雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰面積，峰面積之消失率〔(b) 成分之反應率〕為 53%。

製造例 6：熱硬化性樹脂 (A2-1) 之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 3 公升之反應容器中調合作為矽氧烷樹脂 (a)

之前述式 (V) 所示的矽氧烷樹脂 (信越化學工業股份有限公司製 ; 商品名 X-22-1821 、 羥基當量 : 1,600g/eq.) : 500g 、 甲苯 : 1000g 、 作為化合物 (b) 之雙酚 A 型氰酸酯樹脂 (LONZA Japan 股份有限公司製 ; 商品名 Arocy B-10) : 500g , 一邊攪拌一邊昇溫 , 到達 120℃ 後 , 添加環烷酸鋅之 8 質量 % 礦油精溶液 0.01g , 以約 115 ~ 125℃ 進行 4 小時迴流反應後 , 冷卻至室溫 (25℃) , 得到熱硬化性樹脂 (A2-1) 之溶液。

將矽氧烷樹脂 (a) 與化合物 (b) 為已調合之反應前溶液 , 與反應後溶液分別取出少量 , 將其分別進行 GPC 測定 (聚苯乙烯換算、溶離液 : 四氫呋喃) 。使用反應前溶液與反應後溶液 , 來比較在保持時間約為 12.4 分鐘附近所出現的雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰之面積 , 算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果 , 反應後溶液之峰面積消失率為 65% 。因此 , 熱硬化性樹脂 (A-1) 中化合物 (b) 之反應率為 65 莫耳 % 。又 , 確認到在約 10.9 分鐘附近以及 8.0 ~ 10.0 分鐘附近有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而 , 藉由將少量取出的反應溶液 , 滴入甲醇與苯之混合溶媒 (混合重量比 1 : 1) 中使再沈澱進行 , 將已純化之固體成分取出 , 進行 FT-IR 測定之結果 , 確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰 , 又 , 確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰 , 而確認了熱硬化樹脂 (A2-1) 之製造。

製造例 7：熱硬化性樹脂（A2-2）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中，調合作為化合物（b）之酚醛型氰酸酯樹脂（LONZA Japan股份有限公司製；商品名 PRIMASET PT-30，重量平均分子量 500～1,000）：800g、作為矽氧烷樹脂（a）之前述式（VI）所示的矽氧烷樹脂（信越化學工業股份有限公司製；商品名 KF-6003、羥基當量：2800g/eq.）：200g及甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達120℃後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.01g，以約115～125℃進行4小時迴流反應後，冷卻至室溫（25℃），得到熱硬化性樹脂（A2-2）之溶液。

將矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為12.1分鐘附近所出現的雙酚A型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為43%。因此，熱硬化性樹脂（A2-2）中化合物（b）之反應率為43莫耳%。又，確認到在約10.9分鐘附近以及8.0～10.0分鐘附近有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行FT-IR測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認

到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了相容化樹脂 (A2-2) 之製造。

製造例 8：熱硬化性樹脂 (A2-3) 之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 3 公升之反應容器中，調合作為化合物 (b) 之酚醛型氰酸酯樹脂 (LONZA Japan 股份有限公司製；商品名 PRIMASET PT-60，重量平均分子量 2,000 ~ 3,000)：300g、作為矽氧烷樹脂 (a) 之前述式 (VII) 所示的矽氧烷樹脂 (信越化學工業股份有限公司製；商品名 X-22-160AS、羥基當量：500g/eq.)：700g 及均三甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達 120°C 後，添加環烷酸鋅之 8 質量% 礦油精溶液 0.30g，以約 $115 \sim 125^{\circ}\text{C}$ 進行 4 小時迴流反應後，冷卻至室溫 (25°C)，得到熱硬化性樹脂 (A2-3) 之溶液。

將矽氧烷樹脂 (a) 與化合物 (b) 為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行 GPC 測定 (聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃)。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為 12.1 分鐘附近所出現的雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為 43%。因此，熱硬化性樹脂 (A2-3) 中化合物 (b) 之反應率為 43 莫耳%。又，確認到在約 10.9 分鐘附近以及 $8.0 \sim 10.0$ 分鐘附近有出現熱硬化性樹

脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行FT-IR測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰，而確認了熱硬化樹脂（A2-3）之製造。

比較製造例4：熱硬化性樹脂（A2-4）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中調合雙酚A型氰酸酯樹脂（LONZA Japan股份有限公司製；商品名Arocy B-10）：500g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學工業股份有限公司製；商品名X-22-1821、羥基當量：1,600g/eq.）：500g及甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達 120°C 後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.01g，以約 100°C 進行2小時迴流反應後，冷卻至室溫（ 25°C ），得到熱硬化性樹脂（A2-4）之溶液。

熱硬化性樹脂（A2-4）之溶液因結晶化而產生沈澱物。

將矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為12.4分鐘附近所出現的雙酚A型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的

峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為35%。因此，熱硬化性樹脂（A2-4）中化合物（b）之反應率為35莫耳%。

比較製造例5：熱硬化性樹脂（A2-5）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為3公升之反應容器中調合雙酚A型氰酸酯樹脂（LONZA Japan股份有限公司製；商品名Arocy B-10）：500g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學工業股份有限公司製；商品名X-22-1821、羥基當量；1,600g/eq.）：500g及甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達120℃後，添加環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液0.05g，以約120℃進行8小時迴流反應後，冷卻至室溫（25℃），得到熱硬化性樹脂（A2-5）之溶液。

熱硬化性樹脂（A2-5）之溶液因不溶成分而產生混濁。

將矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行GPC測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為12.4分鐘附近所出現的雙酚A型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為79%。因此，熱硬化性樹脂（A2-5）中化合物（b）之反應率為79mol%。

比較製造例 6：熱硬化性樹脂（A2-6）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 3 公升之反應容器中調合雙酚 A 型氰酸酯樹脂（LONZA Japan 股份有限公司製；商品名 Arocy B-10）：200g、前述式（V）所示的矽氧烷樹脂（信越化學工業股份有限公司製；商品名 X-22-1821、羥基當量：1,600g/eq.）：800g 及甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達 120℃ 後，添加環烷酸鋅之 8 質量 % 礦油精溶液 0.05g，以約 120℃ 進行 8 小時迴流反應後，冷卻至室溫（25℃），得到熱硬化性樹脂（A2-6）之溶液。

將矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行 GPC 測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為 12.4 分鐘附近所出現的雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為 65%。因此，熱硬化性樹脂（A2-6）中化合物（b）之反應率為 65 莫耳 %。

又，確認到在約 10.9 分鐘附近以及 8.0 ~ 10.0 分鐘附近有出現熱硬化性樹脂生成物之峰。進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比 1 : 1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行 FT-IR 測定之結果，確認到 1700cm^{-1} 附近起因為亞胺基碳酸酯

基之峰，又，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰。

比較製造例 7：熱硬化性樹脂（A2-7）之製造

在附有溫度計、攪拌裝置、迴流冷卻管之可加熱及冷卻之容積為 3 公升之反應容器中調合雙酚 A 型氰酸酯樹脂（LONZA Japan 股份有限公司製；商品名 Arocy B-10）：1000g、甲苯：1000g，一邊攪拌一邊昇溫，到達 120°C 後，添加環烷酸鋅之 8 質量% 礦油精溶液 0.01g，以約 120°C 進行 4 小時迴流反應後，冷卻至室溫（ 25°C ），得到熱硬化性樹脂（A2-7）之溶液。

將矽氧烷樹脂（a）與化合物（b）為已調合之反應前溶液，與反應後溶液各取出少量，將其分別進行 GPC 測定（聚苯乙烯換算、溶離液：四氫呋喃）。使用反應前溶液與反應後溶液，來比較在保持時間約為 12.4 分鐘附近所出現的雙酚 A 型氰酸酯樹脂之峰之面積，算出反應後溶液的峰面積相對於反應前溶液的峰面積之消失率。該結果，反應後溶液之峰面積消失率為 45%。因此，熱硬化性樹脂（A2-7）中化合物（b）之反應率為 45 莫耳%。

進而，藉由將少量取出的反應溶液，滴入甲醇與苯之混合溶媒（混合重量比 1：1）中使再沈澱進行，將已純化之固體成分取出，進行 FT-IR 測定之結果，確認到 1560cm^{-1} 附近及 1380cm^{-1} 附近起因為三氮雜苯環之強峰。

實施例 1~10、比較例 1~9

將 (A) 成分、(B) 成分，又，視所需的 (C) 成分、(D) 成分及硬化促進劑，使用甲基乙基酮作為稀釋溶劑，以第 1 表及第 2 表所示調合比例 (質量份) 進行混合，得到樹脂含量為 60 質量%之均勻清漆。其中，作為 (A) 成分為使用藉由製造例 1~4 所得到的相容化樹脂、以比較製造例 1~3 所得到的樹脂、或以製造例 6~8 及比較製造例 4~7 所得到的熱硬化性樹脂；(B) 成分為使用製造例 5，或是以商業方式取得。

接著，將所得到的清漆含浸塗佈於厚度 0.2mm 之 S 玻璃布上，以 160℃ 加熱乾燥 10 分鐘，得到樹脂含有量是 55 質量%之預浸體。

重疊此預浸體 4 片，將 18 μ m 之電解銅箔配置於該預浸體的上下面，以壓力 25kg/cm² (2.45MPa)、溫度 185℃ 的條件進行 90 分鐘沖壓，得到銅箔層合板。

使用這樣的方式所得到的銅箔層合板，對於銅箔接著性 (銅箔剝離強度)、玻璃轉移溫度、焊料耐熱性、線膨脹係數、難燃性、附銅耐熱性 (T-300)、比介電率 (1GHz)、介電正切 (1GHz) 及鑽孔加工性，以前述之方法進行測定、評價。評價結果如第 1 表~第 4 表所示。

第 1 表

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6
熱硬化性樹脂組成物(質量份)						
(A) 相容化樹脂 ((b)成分反應率)						
A1-1(68%)	100				100	100
A1-2(43%)		100				
A1-3(43%)			100			
A1-4(55%)				100		
(B) 熔融矽石						
B-1(製造例 5)	150					
B-2(SC-2050KNK)		100		170		
B-3(SC-2050HMK)			200		100	100
(C) 無機填充劑						
AlOOH					50	50
(D)無機難燃助劑						
KG-1100						10
硬化促進劑	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	
層合板之性能						
(1) 銅箔剝離強度(kN/m)	1.5	1.6	1.6	1.6	1.5	1.5
(2) 玻璃轉移溫度(°C)	282	265	253	308	281	282
(3) 焊料耐熱性	良好	良好	良好	良好	良好	良好
(4) 線膨脹係數(ppm/°C)	3.3	4.0	3.1	2.8	3.3	3.3
(5) 難燃性	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0
(6) 附銅耐熱性(T-300:分鐘)	>60	>60	>60	>60	>60	>60
(7) 介電特性						
比介電率(-)	4.7	4.6	4.5	4.5	4.7	4.7
介電正切(-)	0.008	0.009	0.010	0.010	0.008	0.008
(8) 鑽孔加工性(μm) (鍍敷滲入長度)	14	15	13	12	14	3

第 2 表

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5
熱硬化性樹脂組成物(質量份)					
(A) 相容化樹脂 ((b)成分反應率)					
A1-5(18%)	100			100	100
A1-6(76%)		100			
A1-7(53%)			80		
環氧樹脂(YX-4000)			20		
(B) 熔融矽石					
B-1(製造例 5)	150	150	150		
B-4(SO-25R)				150	
B-5(SC-1030-MJA)					150
硬化促進劑	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
層合板之性能					
(1) 銅箔剝離強度(kN/m)	—	—	—	0.1	0.1
(2) 玻璃轉移溫度(°C)	—	—	—	130	133
(3) 焊料耐熱性	—	—	—	膨脹	膨脹
(4) 線膨脹係數(ppm/°C)	—	—	—	14.1	16.1
(5) 難燃性	—	—	—	燃燒	燃燒
(6) 附銅耐熱性(T-300:分鐘)	—	—	—	昇溫時 膨脹	昇溫時 膨脹
(7) 介電特性	—	—	—		
比介電率(—)	—	—	—	5.1	5.0
介電正切(—)	—	—	—	0.017	0.019
(8) 鑽孔加工性(μm) (鍍敷滲入長度)	—	—	—	33	34

第 3 表

	實施例 7	實施例 8	實施例 9	實施例 10
熱硬化性樹脂組成物(質量份)				
(A) 相容化樹脂 ((b)成分反應率)				
A2-1(65%)	100			100
A2-2(43%)		100		
A2-3(43%)			100	
(B) 熔融矽石				
B-1(製造例 5)	150			
B-2(SC-2050KNK)		100		
B-3(SC-2050HMK)			200	100
(C) 無機填充劑				
AlOOH				50
硬化促進劑	0.01	0.01	0.01	0.01
層合板之性能				
(1) 銅箔剝離強度(kN/m)	1.5	1.6	1.6	1.6
(2) 玻璃轉移溫度(°C)	282	265	255	300
(3) 焊料耐熱性	良好	良好	良好	良好
(4) 線膨脹係數(ppm/°C)	3.3	4.0	3.1	2.8
(5) 難燃性	V-0	V-0	V-0	V-0
(6) 附銅耐熱性(T-300:分鐘)	>60	>60	>60	>60
(7) 介電特性				
比介電率(-)	4.7	4.6	4.5	4.5
介電正切(-)	0.008	0.009	0.010	0.010
(8) 鑽孔加工性(μ m) (鍍敷滲入長度)	14	15	13	12

第 4 表

	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9
熱硬化性樹脂組成物(質量份)				
(A) 相容化樹脂 ((b)成分反應率)				
A2-4(35%)	100			
A2-5(79%)		100		
A2-6(65%)			100	
A2-7(45%)				100
(B) 熔融矽石				
B-4(SO-25R)			100	
硬化促進劑	0.01	0.01	0.01	0.01
層合板之性能				
(1) 銅箔剝離強度(kN/m)	—	—	0.7	0.45
(2) 玻璃轉移溫度(°C)	—	—	130	120
(3) 焊料耐熱性	—	—	膨脹	膨脹
(4) 線膨脹係數(ppm/°C)	—	—	14.1	16.5
(5) 難燃性	—	—	燃燒	V-1
(6) 附銅耐熱性(T-300:分鐘)	—	—	昇溫時膨脹	昇溫時膨脹
(7) 介電特性	—	—		
比介電率(-)	—	—	5.1	5.1
介電正切(-)	—	—	0.017	0.023
(8) 鑽孔加工性(μm) (鍍敷滲入長度)	—	—	33	24

在第 1 表 ~ 第 4 表中，以商業方式取得的 (B) 成分、任意使用的 (C) 成分、(D) 成分、硬化促進劑、在比較例所使用的環氧樹脂及熔融矽石，如同以下所述。

(B) 成分

熔融矽石 (B-2)：對熔融矽石藉由 1.0 質量 % 的 N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷進行表面處理之熔融矽石 (

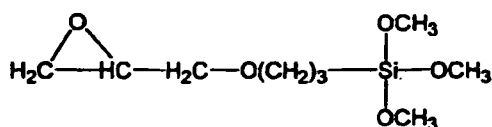
Admatechs公司製；商品名SC-2050KNK，稀釋溶劑：甲基異丁基酮）

熔融矽石（B-3）：對熔融矽石藉由1.0質量%的N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷進行表面處理之熔融矽石（Admatechs公司製；商品名SC-2050HMK，稀釋溶劑：環己酮）

熔融矽石（B-4）：熔融矽石（Admatechs公司製；商品名SO-25R）

熔融矽石（B-5）：對熔融矽石藉由1.0質量%的下述式（VIII）所示 γ -環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷進行表面處理之熔融矽石（Admatechs公司製；商品名SC1030-MJA、稀釋溶劑：甲基乙基酮）

[化10]



(VIII)

（C）無機填充劑（AlOOH）：水鋁礦型氫氧化鋁（河合石灰公司製；商品名BMT-3L、熱分解溫度：400℃）

（D）無機難燃助劑（KG-1100）：將鉬酸鋅附著乘載於滑石之無機難燃助劑（Sherwin-Williams公司製；商品名Kemgard 1100）

硬化促進劑：環烷酸鋅之8質量%礦油精溶液

在比較例3所使用的環氧樹脂（YX-4000）：聯苯型環氧樹脂（Japan Epoxy Resin公司製；商品名YX-4000、環

氧當量：186)

在第2表中的比較例1~3係因下述之理由而無法進行層合板性能之評價。

比較例1：熱硬化性樹脂析出，無法製造清漆。

比較例2：成形性不良，無法製作層合板。

比較例3：樹脂分離，無法製作預浸體及層合板。

又，在第4表中的比較例6~7，因為熱硬化性樹脂(A)析出而無法製造清漆，故無法對熱硬化性樹脂組成物進行評價。

由第1表明確可知，本發明之實施例1~6，在銅箔剝離強度、玻璃轉移溫度(T_g)、焊料耐熱性、低熱膨脹性、難燃性、附銅耐熱性(T-300)、低介電特性、低介電正切性、鑽孔加工性之全數為優異，滿足在先前技術所述的基準值。

另一方面，由第2表明確可知，比較例1~5，並無法滿足銅箔剝離強度、玻璃轉移溫度(T_g)、焊料耐熱性、低熱膨脹性、難燃性、附銅耐熱性(T-300)、低介電特性、低介電正切性、鑽孔加工性之全數，不論任一特性皆為差。

又，由第3表及第4表明確可知，本發明之實施例7~10，在銅箔剝離強度、玻璃轉移溫度(T_g)、焊料耐熱性、低熱膨脹性、難燃性、附銅耐熱性(T-300)、低介電特性、低介電正切性、鑽孔加工性之全數為優異，滿足前述之基準值。比較例8~9，在銅箔剝離強度、玻璃轉移溫

度 (Tg) 、 焊料耐熱性、低熱膨脹性、難燃性、附銅耐熱性 (T-300) 、 低介電特性、低介電正切性、鑽孔加工性之全數，皆低於基準值。

[產業利用性]

本發明之熱硬化性樹脂組成物，藉由上述實施例時，不僅僅是焊料耐熱性或難燃性優異，亦可在如先前技術所述之銅箔接著性（銅箔剝離強度）、附銅耐熱性（T-300）、鑽孔加工性、比介電率、介電正切之全數特性上，達到近年所要求的高密度化或高可靠性之等級。

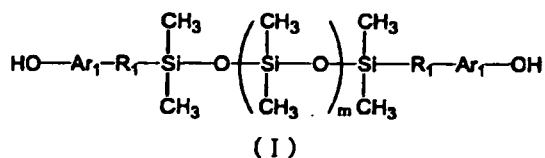
因而，藉由使用本發明之熱硬化性樹脂組成物，可達成現今所要求的線路板之高密度化與高可靠性，可將本發明之熱硬化性樹脂組成物廣泛地使用於電子機器等之製造。

七、申請專利範圍：

1. 一種具有亞胺基碳酸酯構造及三氮雜苯構造之相容化樹脂之製造方法，其特徵係

使下述一般式 (I) 所示於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)、1 分子中具有至少 2 個氰酸酯基之化合物 (b) 及 1 分子中具有至少 2 個環氧基之化合物 (c) 進行反應，該反應的條件如下：相對於 (a) ~ (c) 成分之合計量 100 質量份，(a) 成分為 10 ~ 50 質量份、(b) 成分為 40 ~ 80 質量份、(c) 成分為 10 ~ 50 質量份，於有機金屬鹽 (d) 之存在下，在由甲苯、二甲苯及均三甲苯所選出之溶媒中，以 80℃ ~ 120℃ 進行反應，且 (b) 成分之反應率為 30 ~ 70 莫耳%，

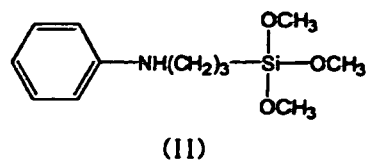
[化1]



(式中，R₁ 分別獨立為碳數 1 ~ 5 之伸烷基或伸烷氧基，Ar₁ 分別獨立為單鍵、伸芳基或碳數 1 ~ 5 之伸烷基，m 為 5 ~ 100 之整數)。

2. 一種熱硬化性樹脂組成物，其特徵係含有相容化樹脂 (A1) 與熔融矽石 (B)，其中，該相容化樹脂 (A1) 是藉由如申請專利範圍第 1 項之方法所製造，該熔融矽石 (B) 是藉由下述式 (II) 所示之三甲氧基矽烷化合物進行表面處理，

[化2]



3. 一種熱硬化性樹脂組成物，其係含有熱硬化性樹脂 (A2) 及、藉由式 (II) 所示之三甲氧基矽烷化合物進行表面處理之熔融矽石 (B)，其中

前述熱硬化性樹脂 (A2) 為將一般式 (I) 所示於末端具有羥基之矽氧烷樹脂 (a)，與 1 分子中具有至少 2 個以上之氰酸酯基之化合物 (b)，在有機溶媒中進行反應而得，

相對於該矽氧烷樹脂 (a) 與該化合物 (b) 之總和 100 質量份，該矽氧烷樹脂 (a) 的含量為 10~70 質量份且該化合物 (b) 的含量為 30~90 質量份，

該化合物 (b) 之反應率為 40~70 莫耳%。

4. 一種預浸體，係將如申請專利範圍第 2 項或第 3 項之熱硬化性樹脂組成物含浸或塗佈於基材中後，進行 B 階段化而成。

5. 一種層合板，係使用如申請專利範圍第 4 項之預浸體所形成。