

申請日期	85 年 6 月 25	<div style="border: 1px solid black; padding: 5px; display: inline-block;"> 發 售 本 </div>
案 號	85107640	
類 別	08G 59/18, CoSL 6/00, CoSK 9/16, CoSK 1/03	

A4
C4

436496

88年9月2日 修正 補充

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 名稱	中 文	印刷電路板用之預浸物以及由彼製成之印刷電路板用之積層板
	英 文	Prepreg for printed wiring boards and laminates for printed wiring boards produced therefrom
二、發明 人	姓 名	(1) 高野希 (2) 佐瀨茂雄 (3) 福田富男
	國 籍	(1) 日本 (2) 日本 (3) 日本
	住、居所	(1) 日本國茨城縣結城市結城九二一番地一〇號 (2) 日本國茨城縣下館市飯島五七九番地一〇〇號 (3) 日本國茨城縣下館市樋口一三八八番地
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 日立化成工業股份有限公司 日立化成工業株式会社
	國 籍	(1) 日本
	住、居所 (事務所)	(1) 日本國東京都新宿區西新宿二丁目一番一號
	代 表 人 姓 名	(1) 丹野毅

裝 訂 線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

436496

申請日期	85 年 6 月 25 日
案 號	85107640
類 別	

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

發 新 型

一、發明 名稱	中 文	
	英 文	
二、發明 人	姓 名	(4) 荒田道俊
	國 籍	(4) 日本
	住、居所	(4) 日本國茨城縣下館市大字女方二四〇番地 紫 水寮
三、申請人	姓 名 (名稱)	
	國 籍	
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	

裝

訂

線

436496

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利, 申請日期: 案號: 有 無主張優先權

日本	1995 年 6 月 27 日	7-160674	<input checked="" type="checkbox"/> 無主張優先權
日本	1995 年 10 月 3 日	7-255871	<input checked="" type="checkbox"/> 無主張優先權
日本	1995 年 10 月 3 日	7-255872	<input checked="" type="checkbox"/> 無主張優先權
日本	1995 年 10 月 3 日	7-255873	<input checked="" type="checkbox"/> 無主張優先權

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

有關微生物已寄存於: 寄存日期: 寄存號碼:

裝
訂
線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（1）

技術領域

本發明有關預浸物和樹脂之製造，其適於製造包括多層印刷電路板之印刷電路板。本發明亦有關適於製造印刷電路板之樹脂組成物。本發明另外有關印刷電路板之積層板，其可使用預浸物或樹脂清漆製造。

背景技藝

隨著電子儀器體積縮小和功能改善，藉由製造更薄和更多層之積層板，以及減少通孔之直徑和孔距使印刷電路板積層板安置密度增加。因此，積層板對耐熱性，鑽孔加工性和絕緣特性之需求變得更嚴格。

層積板係以平行機器將層置之預浸物加熱和加壓製得，該預浸物係以樹脂清漆浸漬基質原料，其單側或雙側置有金屬箔製成。多層印刷電路板係在內部印刷電路板雙側層置預浸物，然後在層置之預浸物上放置金屬箔，在平行熱機器之間以熱和壓力將該層置組合黏合製成，其中該內部印刷電路板係以雙側鍍金屬積層板進行電路製圖製成。

為改善其耐熱性和絕緣特性，已廣泛嚐試積層板中熟化樹脂之特性改良，例如，增加樹脂之 T_g （玻璃化溫度）。然而，此種樹脂特性之改良已變得無法滿足所需之特性。

與樹脂特性改善同時並進的是增加基質材料／樹脂界面之持久性探查。界面控制是一種非常重要的技術，因為界面黏合程度直接影響積層板之耐熱和耐溼性，鑽孔加工

裝

訂

線

五、發明說明(2)

性，絕緣特性和抗離子移動性。

其它方法係添加無機填料。無機填料不足充作摻和劑，亦可用於改善形穩性和耐溼耐熱性。已對使用可提供優良特性（諸如高介電常數，充分幅射和高強度）之特殊填料進行探查。然而，混於樹脂清漆之填料沈澱緩慢，且必須於浸漬時攪拌再次分散該填料。沈澱至相當程度時，填料沈澱且黏合在容器底部，變得難以單獨藉由攪拌分散之。製造預浸物時，填料亦會沈澱於清漆所在之裝置，例如清漆槽和浸漬槽，而且逐漸黏附於輥等。其使預浸物外觀嚴重變質。積層板中，分散不均勻的填料會使基質材料和樹脂之間以及填料和樹脂之間的界面黏合，因此使鑽孔加工性和絕緣特性惡化。

改善基質材料／樹脂界面黏合性之一般方法係以表面處理劑（諸如偶合劑）預處理基質材料（諸如玻璃紡織品）。以樹脂清漆浸漬該經處理之基質材料，然後乾燥之使該樹脂半熟化製成預浸物。在乾燥步驟中，基質表面上之表面處理劑與樹脂進行某種程度反應，於隨後製造積層板或多層印刷電路板之加熱步驟再進行之，增加介於基質材料與該樹脂之黏著性。一種再增加黏著性之已知方法係改善表面處理劑對樹脂之反應性，其係藉由改變慣用表面處理劑（諸如矽烷偶合劑）上有機官能機之數目和種類而得（日本專利申請案未試驗公告63-230729號和日本專利申請案試驗公告62-40368號）。然而，改良對樹脂之反應性只能形成一種堅硬的薄層，其無法降低

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明(3)

介面之殘留應力，而且無法明顯地改善黏合性。

爲使降低界面應力殘留之改良生效，已提出表面處理劑與長鏈聚矽氧烷一同使用以降低此種應力（日本專利申請案未試驗公告3-62845和3-287869號）。然而，因爲表面處理劑與長鏈聚矽氧烷於一般條件下之反應性極差，該長鏈聚矽氧烷無烷氧基與基質材料反應，且該長鏈聚矽氧烷上之疏水基（諸如甲基）會使得以長鏈聚矽氧烷浸漬基質材料受到干擾，因此該方法無法有效增進界面黏合性。

亦已嚐試使用經表面處理劑（諸如偶合劑）處理之填料改善填料之分散性。然而，市售經表面處理之填料昂貴，而且其種類太少，難以爲不同每種樹脂摻和物選擇適當填料。爲達到使功能進一步改善之目的，現在將數量更多之填料摻入樹脂。填料數量增加造成更嚴重之上述沈澱及黏附於輥上作用，其於分散性和搖變性上需要進一步改善。使用偶合劑之慣用處理方式無法滿足此種需求。

此外，填料通常以浸於表面處理劑稀釋溶液或噴以此種溶液處理之，隨後加熱乾燥。該乾燥步驟引發二種問題，換言之，填料表面經低聚偶合劑物理性吸收層之生成以及填料之內聚性，其中填料與樹脂清漆摻和時必須磨碎。此種磨碎作用使得填料表面處理劑層不均勻。物理性吸收層和不均勻表面處理劑層降低積層板之界面黏著性。

日本專利申請案未試驗公告61-272243號亦提出於製備時直接將偶合劑加入樹脂清漆。由市售偶合劑

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明(4)

形成之層亦太硬太薄，無法改善介於基質材料／樹脂之界面黏著性。另一方面，因為含樹脂之樹脂清漆黏度高，所以多少避免黏料之內聚作用。由填料／樹脂界面黏合劑之觀點來看，該偶合劑無法選擇性且均勻地排列在填料表面，而且無法充分黏合該填料和樹脂。

圖 1 表示一張顯示基質材料或以慣用矽烷偶合劑處理之填料的理想表面狀態示意圖。化學性吸收矽氧烷鏈 2 (經由與基質材料或填料化學鍵合吸收之矽氧烷鏈) 於基質材料或無機填料 1 之表面形成特定厚度之層，並改善對樹脂層 4 之黏著性。該化學性吸收矽氧烷鏈 2 層於其上產生物理性吸收矽氧烷鏈 (與基質材料或填料無化學鍵之矽氧烷鏈)。然而，通常由圖 2 所示之狀態辨認之，該狀態係由基質材料或填料之工業表面處理造成，進行時間極短。亦即，即使該化學性吸收矽氧烷鏈 2 無法均勻覆蓋基質材料或填料 1 之表面，仍有許多物理性吸收矽氧烷鏈 3，其可輕易避免進入樹脂層 4。此種有缺點之化學性吸收層無法完全發揮其鍵結功能。該物理吸收層可能因接近界面之熟化樹脂之不均勻或變弱之故而降低其黏著性。

日本專利申請案未試驗公告 1-204953 號提出以一種直鏈聚矽氧烷處理無機填料以解決此種問題，該直鏈聚矽氧烷具有與無機填料反應之三烷氧基和與樹脂反應之有機官能基。如圖 3 所示，化學性吸收直鏈長聚矽氧烷鏈 6 因疏水基 (諸如甲基) 之故有落在填料表面之傾向，而且難以穿透進入樹脂層 4。此種長鏈在各個分子上有多

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（5）

處與無機填料表面鍵合，而形成一種堅硬層。即使矽氧烷鏈穿透至樹脂內，其仍由樹脂包圍，無法使相對鏈長度之界面應力下降。此外，物理性吸收長聚矽氧烷鏈易於形成大型環鏈5，其會使經熟化樹脂之特性惡化。

發明揭示

本發明目的係藉提出改善基質材料或無機填料與樹脂之界面黏著性之方法製造鑽孔加工性和絕緣特性優良之積層板和多層印刷電路板，以解決先前技藝之前述問題。該發明者發現，可藉由使用一種具有與結構性存在或藉溼氣吸附在基質材料和填料表面之羥基反應的官能基之矽氧烷低聚物，或使用製造含有以此種矽氧烷低聚物處理之樹脂清漆之新穎方法解決上述問題，因而完成本發明。

換言之，本發明提出一種製造印刷電路板用之預浸物之方法，其包括以一種具有至少一個與羥基反應之官能端基之矽氧烷低聚物處理一種基質材料，經以樹脂清漆浸漬該經處理材料，然後乾燥該經浸漬之基質材料。

本發明亦提出一種印刷電路板用之層積板（下文稱為「層積板（a）」），其係由二或多層預浸物黏合製成，以上述方法，將金屬箔置於該層積預浸物至少一側，加熱和加壓方法製得。

本發明另外提出一種印刷電路板用之樹脂清漆製法，其包括於一種含有溶解於溶劑中之矽氧烷低聚物之處理液體中處理一種無機填料，且將樹脂材料與該含有經處理無

裝

訂

線

五、發明說明(6)

機填料之處理液體混合，其中該矽氧烷低聚物含有至少一種由三官能基矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中 R 係一種有機基，而且該矽氧烷低聚物中之有機基 R 彼此相同或不同，其聚合度為 2 至 70，而且具有至少一個與羥基反應之官能端基。

本發明亦提出一種印刷電路板用之積層板（下文稱為「層積板 (b)」），其係將一種基質材料以上述方法製造之樹脂清漆浸漬，乾燥經浸漬之基質材料以形成預浸物，並將至少二層預浸物與置於該層置預浸物至少一側之金屬箔加熱加壓黏合製成。

本發明另外提出一種印刷電路板用之樹脂組成物（下文稱為「印刷電路板用樹脂組成物 (A)」或「樹脂組成物 (A)」），其包括一種樹脂材料和一種矽氧烷低聚物，其含有至少一種由三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中每個 R 係一個有機基，且矽氧烷低聚物中有機基 R 彼此相同或不同，聚合度為 2 至 70，且具有至少一個與羥基反應之官能端基。

本發明亦提出一種印刷電路板用之積層板（下文稱為「層積板 (C)」），其係以樹脂組成物 (A) 浸漬基質材料，將經浸漬之基質材料乾燥形成預浸物，將至少二層預浸物和置於層積之預浸物至少一側之金屬箔加熱加壓黏合製成。

五、發明說明（7）

本發明另外提出一種印刷電路板用之樹脂組成物（下文稱爲“印刷電路板用之樹脂組成物（B）”或“樹脂組成物（B）”）其包括一種樹脂材料和一種以矽氧烷低聚物處理之無機填料，其含有至少一種由三官能矽氧烷單位（ $\text{R Si O}_{3/2}$ ）和四官能矽氧烷單位（ $\text{Si O}_{4/2}$ ）選出之矽氧烷單位，其中每個R係一個有機基，且矽氧烷低聚物中有機基R彼此相同或不同，聚合度爲2至70，且具有至少一個與羥基反應之官能端基。

本發明亦提出一種印刷電路板用之積層板（下文稱爲“積層板（d）”），其係以樹脂組成物（A）浸漬基質材料，將經浸漬之基質材料乾燥形成預浸物，將至少二層預浸物和置於層積之預浸物至少一側之金屬箔加熱加壓黏合製成。

附圖簡述

圖1至4係舉例樹脂和基質材料或以表面處理劑處理之無機填料之界面狀態示意圖。

進行本發明之最佳方式

印刷電路板用之預浸物製法

本發明印刷電路板用之預浸物製法中，首先以具有至少一個與羥基反應端基之矽氧烷低聚物處理基質材料。

本發明使用之基質材料係通常用於製造鍍金屬積層板或多層印刷電路板者，且爲一般纖維基質材料，包括紡織

裝

訂

線

五、發明說明（8）

織品和不織織品。纖維基質材料之非限制實例為無機纖維，諸如玻璃纖維，鋁纖維，石棉纖維，硼絲，矽鋁玻璃纖維，矽玻璃纖維，泰瑞龍（tyranno）纖維，碳化矽纖維，氮化矽纖維，氧化鋯纖維和碳纖維，有機纖維，諸如艾瑞邁（aramide）纖維，聚醚酮醚纖維，聚醚亞胺纖維，聚醚亞砒纖維和纖維素纖維，以及其混合纖維，特佳之實例係玻璃纖維之紡織織品。

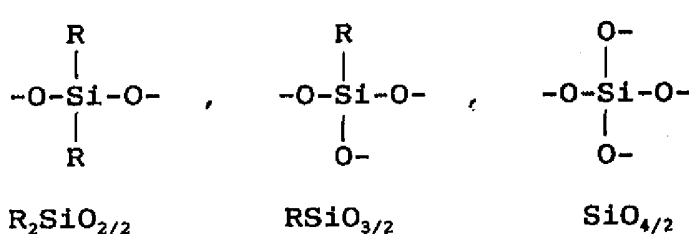
欲以矽氧烷低聚物處理之基質材料表面狀態不受限制，而且可能已經以慣用表面處理劑諸如矽烷偶合劑處理。通常使用未經其它慣用表面處理劑處理，而且其表面具有與矽氧烷低聚物反應之羥基之基質材料較佳。

本發明中使用之矽氧烷低聚物只要具有至少一個與基質材料之羥基反應之端基，其分子量和結構不受限。該與基質材料表面上羥基反應之官端基之較佳實例係一或二個碳原子之烷氧基或矽氧烷基。

較佳之矽氧烷低聚物含有至少一種由二官能矽氧烷單位（ $R_2SiO_{2/2}$ ），其中R係一個有機基，例如，一或二個碳原子之烷基，換言之，甲基或乙基，6至12個碳原子之芳基，諸如苯基和乙烯基，且矽氧烷低聚物中R基彼此相同或不同），三官能矽氧烷單位（ $RSiO_{3/2}$ ）和四官能矽氧烷單位（ $SiO_{4/2}$ ）組成之集合中選出之矽氧烷單位，聚合度為2至70（以GPC重量平均分子量測得之轉化）。聚合度高於70之矽氧烷低聚物可能導致不均勻處理而降低耐熱性。

五、發明說明(9)

該二官能，三官能和四官能矽氧烷單位分別以 $R_2SiO_{2/2}$ ， $RSiO_{3/2}$ 和 $SiO_{4/2}$ 表示，其具有下列結構：



本發明使用之較佳矽氧烷低聚物係三向交聯低聚物，其包括至少一種由二官能矽氧烷單位，三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位選出之矽氧烷單位，且含有至少一種由三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位選出之矽氧烷單位。即，較佳之矽氧烷低聚物僅包括三官能矽氧烷單位或僅有四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和三官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位，三官能矽氧烷單位或四官能矽氧烷單位。此外，四官能矽氧烷單位最如佔總矽氧烷單位 15 莫耳% 或更高，20 至 60 莫耳% 更佳。欲以高度三向交聯層覆基質材料表面，使用含有三官能矽氧烷單位和 / 或最好四官能矽氧烷單位，且聚合度為 6 至 70，10 至 50 更佳之矽氧烷低聚物較佳。此種矽氧烷低聚物係例如，將一或多種相對於所需矽氧烷單位之氯矽氧烷或烷氧基矽氧烷於存在水和酸觸媒下縮聚合成。該縮聚作用進行到形成之矽氧烷低聚物於表面處理前不膠凝之程度，其係藉由變化或控制反應

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(10)

溫度，反應時間，低聚物成份和觸媒種類和數量進行。適用之觸媒係，例如，醋酸，氫氯酸，順式丁烯二酸和磷酸。

雖然處理基質材料之方法，包括含有矽氧烷低聚物處理液體之成份和處理條件不受限制，但是基質材料上矽氧烷低聚物之黏合數量最好為0.01至5重量%，

0.05至2.0重量%較佳。本文中，表面處理劑之黏合性表示表面處理劑黏附於基質材料或無機填料上佔該基質材料或無機填料之重量百分比。黏合數量少於0.01重量%無法有效改善界面黏著性，而黏著數量大於5重量%則會使耐熱性惡化。

處理基質材料用之處理液體除了矽氧烷低聚物外，可能含有溶劑和添加劑，包括偶合劑，諸如矽烷偶合劑和鈦酸酯偶合劑。可使用之矽烷偶合劑實例包括環氧矽烷偶合劑，諸如 γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷，氨基矽烷偶合劑，諸如氫氯化N- β -(N-乙炔苯基氨基乙基)- γ -氨基丙基-三甲氧基矽烷，陽離子矽烷偶合劑，乙炔基矽烷偶合劑，丙炔基矽烷偶合劑，巰基矽烷偶合劑，及其混合物。該鈦酸酯偶合劑實係鈦酸異丙基三(焦磷酸二辛基酯)。這些偶合劑之黏合數量無特殊限制。使該矽烷偶合劑或鈦酸酯偶合劑之基質材料表面處理亦可於使用矽氧烷低聚物處理之前或之後進行。此種實例中，偶合劑之黏著數量最好佔5重量%或更少，0.01至5重量%更佳。為使這些組份安定，處理液體可含有酸，諸如醋

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(11)

酸，磷酸，順式丁烯二酸，氫氯酸和硫酸。該酸之數量無特殊限制，通常將處理液體調至 pH 3 至 6。

雖然該處理基質材料之方法，包括含有矽氧烷低聚物之處理液體組份和處理條件不受特殊限制，但是必須將基質材料浸於含有溶解於溶劑中矽氧烷低聚物之處理液體中，隨後於 50 至 200 °C，80 至 150 °C 較佳，乾燥 5 至 60 分鐘，以 10 至 30 分鐘較佳。

如果使用溶劑，該溶劑量無特殊限制，但是該固體（諸如矽氧烷低聚物）濃度必須為 0.01 至 50 重量%，0.05 至 10 重量% 較佳。該溶劑無特殊限制，較佳實例包括水，醇類，諸如甲醇和乙醇，酮類，諸如甲基乙基甲酮和甲基異丁基甲酮。

然後以樹脂清漆浸漬以矽氧烷處理之基質材料並乾燥之，製成預浸物。

該樹脂清漆通常含有樹脂或樹脂及其熟化劑為必要組份。根據需求，該樹脂清漆可另外含有，例如溶劑，促進樹脂與熟化劑反應之熟化促進劑和無機填料。

本發明中用於製造預浸物之樹脂無特殊限制，部分實例包括環氧樹脂，聚亞胺樹脂，三嗪樹脂，酚樹脂，三聚氰胺樹脂及其改良樹脂。這些樹脂重量平均分子量為 200 至 100,000 較佳，200 至 10,000 更佳。該環氧樹脂之環氧當量為 100 至 5,000，150 至 600 更佳。這些樹脂可單獨使用或作為二或多種之混合物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（12）

使用環氧樹脂充作樹脂時該熟化劑可由不同已知者選出，例如，二氰胍，二氨二苯基甲烷，二氨二苯基亞砷，酞酸酐，苯均四酸酐和多官能酚，諸如酚酚醛清漆和甲酚酚醛清漆為適用者。該熟化促進劑無特殊限制，且為例如咪唑化合物，有機磷化合物，叔胺和四分之一鉍鹽，其可單獨或由二或多種混合使用。

該熟化劑和熟化促進劑數量視樹脂和熟化劑之種類和組和等而定。熟化劑數量通常為每100重量份數之樹脂中有0.1至200重量份數，3.0至100重量份數較佳，而熟化促進劑之數量通常為每100重量份數之樹脂佔0.01至10.0重量%，0.1至5.0重量%較佳。

該溶劑不受限制，部分實例包括醇類，諸如甲醇和乙醇，醚類，諸如仲乙基乙二醇—甲基醚，酮類，諸如丙酮，甲基乙基甲酮和甲基異丁基甲酮，胺類，諸如N，N—二甲基甲醯胺，芳族烴，諸如甲苯和二甲苯，酯類，諸如醋酸乙酯和腈類。其可單獨使用或充作二或多種之溶劑混合物。

該無機填料無特殊限制，部分實例包括碳酸鈣，氧化鋁，氧化鈦，雲母，碳酸鋁，氫氧化鋁，矽酸鎂，矽酸鋁，黏土，諸如煨燒黏土，滑石，矽石，短玻璃纖維和不同鬚狀物，諸如硼酸鋁鬚狀物和碳化矽鬚狀物。其可單獨或以二或多種混合物使用之。無機填料之數量無特殊限制，每100重量份數樹脂需要1.0至500重量份數，以

五、發明說明（13）

10至100重量份數較佳。該無機填料之形狀和顆粒大小無特殊限制，該顆粒大小必須為0.01至50 μm ，以0.1至15.0 μm 較佳。

以浸漬，塗覆，噴霧等方式以上述組份摻和之樹脂清漆浸漬表面處理之基質材料，然後乾燥之製成印刷電路板用之預浸物。雖然乾燥溫度和時間視樹脂清漆組份而定，其乾燥步驟通常於80至200 $^{\circ}\text{C}$ ，最好是100至180 $^{\circ}\text{C}$ 下進行3至30分鐘，以5至15分鐘較佳，該溫度不低於溶劑可蒸發之溫度（若存在溶劑的話）。

依據本發明，預浸物係使用基質材料製得，該基質材料先以具有至少一個與存在基質表面上經基反應之官能端基之矽氧烷低聚物處理之。使用該預浸物製造積層板和多層印刷電路板時，當慣用之偶合劑（包括矽烷偶合劑）形成一堅硬薄層時，該矽氧烷低聚物墊於基質材料和熟化樹脂之間。如此，該矽氧烷低聚物層緩和了基質材料和熟化樹脂中間之歪扭，使樹脂發揮其良好黏著特性。

印刷電路板用之積層板（a）

本發明之積層板（a）適於製造印刷電路板，其係將二或多層上述方法製得之預浸物以及金屬箔置於該層積預浸物至少一側加熱加壓黏合製成。

以單邊置放金屬箔加熱加壓層積之預浸物可製成一種單側鍍金屬之積層板。雙側置放金屬箔加熱加壓層積之預浸物可製成一種雙側鍍金屬之積層板。該金屬箔可由慣用

五、發明說明(14)

於製造非積層之印刷電路板者選出，通常銅箔較佳。通常，黏合作用係以 150 至 200 °C 溫度下加熱，以 1 至 10 MPa 加壓進行較適當。

圖 4 係列舉積層板中基質材料 1 和樹脂層 4 之界面狀態示意圖，其中該積層板係使用本發明方法製得之預浸物製造，特別是使用含有三官能矽氧烷單位和 / 或四官能矽氧烷單位三向交聯之矽氧烷低聚物製成之預浸物。該三向交聯矽氧烷低聚物 8 係均勻地化學性吸收於基質材料 1 表面。以完全塗覆基質材料表面，並墊於基質材料表面和樹脂界面上之歪扭部分，使樹脂發揮良好黏附功能。

印刷電路板用之樹脂清漆製法

依據本發明印刷電路板用之樹脂清漆製法，無機填料於一種處理液體中表面處理之後，該處理液體包括一種含有至少一種由三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中每個 R 係一個有機基，且矽氧烷低聚物中有機基 R 彼此相同或不同，聚合度為 2 至 70，且具有至少一個與羥基反應之官能端基。樹脂材料直接混入含有經處理無機填料之處理液體。

通常，本方法使用之矽氧烷低聚物係三向交聯矽氧烷低聚物。例如，較佳之矽氧烷低聚物包括僅三官能矽氧烷單位或僅有四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和三官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單

裝

訂

線

五、發明說明(15)

位，或三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位，三官能矽氧烷單位或四官能矽氧烷單位。此外，四官能矽氧烷單位最如佔總矽氧烷單位15莫耳%或更高，20至60莫耳%更佳。欲以高度三向交聯層塗覆基質材料表面，使用含有三官能矽氧烷單位和/或四官能矽氧烷單位較佳，且聚合度為6至70，10至50更佳之矽氧烷低聚物較佳。

本發明方法中，慣用偶合劑亦可充作表面處理劑與矽氧烷低聚物同時使用。此種偶合劑係例如，矽烷偶合劑和鈦酸酯偶合劑。可使用之矽烷偶合劑實例包括環氧矽烷偶合劑，諸如 γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷，氨基矽烷偶合劑，諸如氫氯化N- β -(N-乙炔苯苄基氨基乙基)- γ -氨基丙基-三甲氧基矽烷，陽離子矽烷偶合劑，乙炔基矽烷偶合劑，丙炔基矽烷偶合劑，巰基矽烷偶合劑，及其混合物。該鈦酸酯偶合劑實係鈦酸異丙基三(焦磷酸二辛基酯)。其可單獨使用或以所需比例將二或多種組合使用。

若此種偶合劑與矽氧烷低聚物同時使用，偶合劑：矽氧烷低聚物重量比率無特殊限制，且為使其充分發揮個別特性，其必須為0.001：1至1：0.001，0.001：1至1：1較佳。

上述直接混合方法亦可發揮某種程度改善僅以慣用偶合劑處理之無機填料之分散性效果。

用於製備處理液體之溶劑並無特殊限制，部分實例包

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(16)

括醇類，諸如甲醇和乙醇，醚類，諸如仲乙基乙二醇—甲基醚，酮類，諸如丙酮，甲基乙基甲酮和甲基異丁基甲酮，胺類，諸如N，N—二甲基甲醯胺，芳族烴，諸如甲苯和二甲苯，酯類，諸如醋酸乙酯和腈類及水，其可單獨使用或以二或多種溶劑混合物使用。處理液體中固體濃度並無特殊限制，且視使用之表面處理劑和所需之無機填料黏合量而定。通常適當之固體濃度係0.1至50重量%，以0.1至20重量%較佳。若該固體濃度低於0.1重量%，表面處理僅發揮少許之可辨認效果，若固體濃度大於50重量%則會導致耐熱性等之惡化。

本發明之無機填料不受限制，無限制及較佳實例如上文所示。

本發明方法之特色係無機填料以處理液體處理後，不進行乾燥，直接將樹脂材料加入處理液體製造一種樹脂清漆。表面處理之溫度和時間不受限制，可視使用之無機填料和表面處理劑而定。其通常適於於室溫至80℃溫度下進行該處理30分鐘或更多，以30至120分鐘較佳。

本發明使用之樹脂材料無特殊限制，且通常使用包含上述樹脂或該樹脂及熟化劑之樹脂材料。該樹脂可個別使用或以二或多種混合物使用之，並視情況需要，亦可加入熟化促進劑。將包括這些組份之樹脂材料直接混合且溶解於含有經處理無機填料之處理液體中。

該熟化促進劑可由已知者選出，較佳實例如上述。樹脂清漆中樹脂，無機填料，熟化劑和熟化促進劑比率亦如

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（17）

上述。

將樹脂材料混入處理液體內製造樹脂清漆時，可另外添加溶劑控制不揮發固體濃度。該溶劑不受限制，某些實例為丙酮，甲基乙基甲酮，甲苯，二甲苯，甲基異丁基甲酮，醋酸乙酯，伸乙基乙二醇—甲基醚，N，N—二甲基甲醯胺，甲醇和乙醇，其可個別或以二或多種混合物使用之。額外溶劑之數量無特殊限制，但是使不揮發固體濃度為20—90重量%較佳，50至80重量%更佳。

依本發明方法，該樹脂清漆係將樹脂材料直接混入無機材料經處理之處理液體中並保持原狀，不分離也不乾燥製得，該無機填料不會黏聚，但在樹脂清漆中分散不勻勻，因此無機填料表面上之表面處理劑層須保持均勻。經表面處理填料與樹脂之互混性亦得到改善，因此使其參和數量增加。此外，該方法因低聚作用慣用偶合劑反而影響界面黏合性之故，無物理性吸收層形成，且亦無不均勻表面處理層。另外，因無機填料沈澱於清漆槽等，或黏於輥上之情況已有效避免，故形成成具有良好外觀之預浸物。用於製造積層板時，以本方法製造之清漆樹脂改善積層板之界面黏合性，製得鑽孔加工性和絕緣特性（包括抗離子移動性）良好之積層板。使用該樹脂清漆製造之積層板上無機填料／樹脂界面亦如圖4所示之相同狀態。

印刷電路板用之積層板（b）

本發明層積板（b）適於製造印刷電路板，且係以上

五、發明說明 (18)

述方法製得之印刷電路板用之樹脂清漆浸漬基質材料，並乾燥該浸漬基質材料，並將多層預浸物和置於該預浸物至少一側之金屬箔加熱加壓製成。

以樹脂清漆浸漬該基質材料之方法並無特殊限制，且例如浸漬，塗覆或噴霧係適用者。該基質材料可以非積層作用，且由製造鍍金屬積層板或多層印刷電路板常用者選出，適用實例如上述。玻璃纖維之紡織或不織織品係較佳者。

然後將以樹脂清漆浸漬之基質材料，例如乾燥爐中，以 80 至 200 °C，100 至 180 °C 較佳乾燥 3 至 30 分鐘，5 至 15 分鐘較佳，形成預浸物。

將多片形成之預浸物層置，並將金屬箔置於該層置預浸物之單側或雙側，加熱加壓黏合之，製造本發明單側或雙側鍍金屬積層板 (b)。黏合步驟通常在 150 至 200 °C，1 至 10 MPa 下進行 30 至 150 分鐘。

印刷電路板用之樹脂組成物 (A)

本發明之樹脂組成物 (A) 適於製造印刷電路板，且包括一種樹脂材料和一種矽氧烷低聚物，其含有至少一種由三官能矽氧烷單位 ($R Si O_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($Si O_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中每個 R 係一個有機基，且矽氧烷低聚物中有機基 R 彼此相同或不同，聚合度為 2 至 70，且具有至少一個與羥基反應之官能端基。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(19)

本發明使用之樹脂材料通常包括樹脂或樹脂及其熟化劑。該熟化劑無特殊限制，且通常使用上述樹脂，並通常使用上述熟化劑。視情況需要亦可加入熟化促進劑。該熟化促進劑實例如上述。該熟化劑和熟化促進劑用量視，例如，樹脂之組合而定。所需之摻和比率如上述。

通常，本發明樹脂組成物(A)中使用之矽氧烷低聚物係三向交聯矽氧烷低聚物。

例如，較佳之矽氧烷低聚物包括僅有三官能矽氧烷單位或僅有四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和三官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位，三官能矽氧烷單位或四官能矽氧烷單位。此外，四官能矽氧烷單位最如佔總矽氧烷單位15莫耳%或更高，20至60莫耳%更佳。欲以高度三向交聯層覆基質材料表面，使用含有三官能矽氧烷單位和/或最好四官能矽氧烷單位，且聚合度為6至70，10至50更佳之矽氧烷低聚物較佳。聚合度高於70之矽氧烷低聚物會在基質材料表面形成不均勻層。

矽氧烷低聚物之用量無特殊限制，但是每100重量份數樹脂有0.1至50重量份數較佳，0.1至20重量份數更佳。若該矽氧烷低聚物數量低於0.1重量份數，其界面黏合性之改善不足，若其大於50重量份數，則會發生耐熱性下降。

除矽氧烷低聚物外亦可摻入添加劑，諸如不同偶合劑

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（20）

。適用之偶合劑係，例如上述之矽烷偶合劑和鈦酸酯偶合劑，若存在任何偶合劑，此種偶合劑數量無特殊限制，通常每100重量份數之樹脂佔0.01至50重量份數，0.001至20重量份數更佳。

本發明之樹脂組成物（A）可另外含有無機填料。該無機填料無特殊限制，且實例如上所述。該無機填料數量無特殊限制，且較佳數量如上述。

本發明樹脂組成物（A）可以多種型態使用之，充作塗覆或浸漬基質材料之樹脂清漆時，可溶於溶劑中充作稀釋溶液使用之。該溶劑不受限制，某些實例為丙酮，甲基乙基甲酮，甲苯，二甲苯，甲基異丁基甲酮，醋酸乙酯，伸乙基乙二醇—甲基醚，N，N—二甲基甲醯胺，甲醇和乙醇，其可個別或以二或多種混合物使用之。該溶劑之數量無特殊限制，但是使不揮發固體濃度為20—90重量%較佳，50至80重量%更佳。

印刷電路板用之積層板（c）

本發明積層板（c）適於製造印刷電路板，且係以樹脂組成物浸漬基質材料，並乾燥該基質材料形成預浸物，將該預浸物多層層置，並在層置預浸物至少一側放置金屬箔加熱加壓黏合製成。

以樹脂組成物（A）浸漬基質材料之方法無特殊限制。例如，依需要添加溶劑和其它添加劑製造樹脂組成物，且該樹脂清漆係以浸，塗覆或噴霧之方法浸漬該基質材料

裝

訂

線

五、發明說明（21）

。該基質材料可以非積層作用，且由製造鍍金屬積層板或多層印刷電路板常用者選出，適用實例如上述。玻璃纖維之紡織或不紡織品係較佳者。

然後將以樹脂清漆浸漬之基質材料，例如乾燥爐中，以80至200℃（若使用溶劑，則以不低於溶劑揮發之溫度進行），100至180℃較佳乾燥3至30分鐘，5至15分鐘較佳，形成預浸物。

將多片形成之預浸物層置，並將金屬箔置於該層置預浸物之單側或雙側，加熱加壓黏合之，製造本發明單側或雙側鍍金屬積層板（c）。黏合步驟通常在150至200℃，1至10MPa下進行30至150分鐘。

本發明之樹脂組成物（A）含有具有與基質材料和無機填料表面經基反應之官能端基之三向交聯矽氧烷低聚物。因此，基質材料／樹脂界面和無機填料／樹脂界面形成之表面處理劑層不會像慣用矽烷偶合劑等形成之層薄且硬，而是一種交聯矽氧烷低聚物墊層，其緩和界面產生之扭曲並使樹脂充分發揮其優良黏合功能。因此，使用本發明樹脂組成物（A）製造之積層板和多層印刷電路板鑽孔加工性和絕緣特性良好。

使用樹脂組成物（A）製造之積層板其基質材料／樹脂界面和無機填料／樹脂界面狀態亦與圖4所示者相同。

印刷電路板用之樹脂組成物（B）

本發明樹脂組成物（B）適於製造印刷電路板，且其

裝

訂

線

五、發明說明（22）

含有樹脂材料和無機填料為必要組份，其特色係該無機填料係以矽氧烷低聚物處理之無機填料，該矽氧烷低聚物含有至少一種由三官能矽氧烷單位（ $\text{R Si O}_{3/2}$ ）和四官能矽氧烷單位（ $\text{Si O}_{4/2}$ ）選出之矽氧烷單位，其中每個 R 係一個有機基，且矽氧烷低聚物中有機基 R 彼此相同或不同，聚合度為 2 至 70，且具有至少一個與羥基反應之官能端基。

通常，上述矽氧烷低聚物係三向交聯矽氧烷低聚物。例如，較佳之矽氧烷低聚物包括僅有三官能矽氧烷單位或僅有四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和三官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或三官能矽氧烷單位和四官能矽氧烷單位，或二官能矽氧烷單位，三官能矽氧烷單位或四官能矽氧烷單位。此外，四官能矽氧烷單位最如佔總矽氧烷單位 15 莫耳% 或更高，20 至 60 莫耳% 更佳。欲以高度三向交聯層覆基質材料表面，使用含有三官能矽氧烷單位和 / 或最好四官能矽氧烷單位，且聚合度為 6 至 70，10 至 50 更佳之矽氧烷低聚物較佳。若矽氧烷低聚物聚合度高於 70 可能會於無機填料表面形成不均勻層。

本發明之無機填料無特殊限制，且較佳實例如上述。該無機填料可單獨或以所需比例將二或多種混合使用。

以矽氧烷低聚物處理該無機填料之方法無特殊限制，適用之方法係乾式方法，其係將矽氧烷低聚物直接加入無機填料中，以及溼式方法，其係使用矽氧烷低聚物之稀釋

五、發明說明（23）

溶液。矽氧烷對無機填料之黏合量無特殊限制，適當之黏合量通常佔無機填料重量之 0.01 至 5 重量%，0.01 至 2.00 重量% 較佳。若其小於 0.01 重量%，改善界面黏合劑之效果不足，若其大於 5 重量%，會發生耐熱性下降。

亦可使用添加劑（包括多種偶合劑）與該矽氧烷低聚物一起進行表面處理。適用之偶合劑係上述之矽烷偶合劑和鈦酸酯偶合劑。該添加劑可個別使用或以所需比率將二或多種組合使用。若存在任何偶合劑，其數量最好是偶合劑：矽氧烷低聚物之重量比例為 0.001：1 至 1：0.001，以 0.001：1 至 1：1 較佳。

假如該表面處理係以溼式方法使用稀釋溶劑進行，適用之溶劑係，例如醇類，諸如甲醇和乙醇，醚類，諸如仲乙基乙二醇—甲基醚，酮類，諸如丙酮，甲基乙基甲酮和甲基異丁基甲酮，胺類，諸如 N，N—二甲基甲鹽胺，芳族烴，諸如甲苯和二甲苯，酯類，諸如醋酸乙酯和腈類和水。若有任何溶劑，其數量無特殊限制，且使不揮發固體（包括矽氧烷低聚物）濃度為 0.01 至 50 重量%，0.05 至 10 重量% 較佳。依需要利用乾式或溼式方法將矽氧烷低聚物和偶合劑黏附於無機填料表面之後，通常以 50 至 200℃，80 至 150℃ 較佳加熱乾燥 5 至 60 分鐘，10 至 30 分鐘較佳。

本發明可使用之樹脂材料無特殊限制，且通常使用如上述樹脂，且依需要使用添加劑，諸如熟化劑和熟化促進

五、發明說明(24)

劑。

適用之熟化劑和熟化促進劑同上述，且可個別或以二或多種混合物使用之。該熟化劑和熟化促進劑之數量，例如視樹脂和這些添加劑之組合而定。較佳量如上述。

本發明樹脂組成物(B)中，經處理無機填料對樹脂材料之比例通常是，樹脂材料中每100重量份數樹脂加入1.0至500重量份數之經處理無機填料，以10至100重量份數較佳。

本發明之組成物(B)可以不同形式使用之，充作塗覆或浸漬基質材料之樹脂清漆時，可以溶解於溶劑中之稀釋溶液使用之。

該溶劑不受限制，部分實例包括醇類，諸如甲醇和乙醇，醚類，諸如仲乙基乙二醇一甲基醚，酮類，諸如丙酮，甲基乙基甲酮和甲基異丁基甲酮，胺類，諸如N，N-二甲基甲醯胺，芳族烴，諸如甲苯和二甲苯，酯類，諸如醋酸乙酯和腈類。其可單獨或以二或多種混合物使用之。該溶劑數量無特殊限制，最好使不揮發固體濃度為20至90重量%，50至80重量%更佳。

印刷電路板用之積層板(d)

本發明積層板(d)適於製造印刷電路板，其係以樹脂組成物浸漬基質材料，並將浸漬之基質材料乾燥形成預浸物，多層預浸物層置，於層置預浸物至少一側放置金屬箔，加熱加壓黏合製成。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(25)

以樹脂組成物(B)浸漬基質材料之方法無特殊限制。例如，依需要添加溶劑和其它添加劑製造樹脂組成物，且該樹脂清漆係以浸，塗覆或噴霧之方法浸漬該基質材料。該基質材料可以非積層作用，且由製造鍍金屬積層板或多層印刷電路板常用者選出，適用實例如上述。玻璃纖維之紡織或不紡織品係較佳者。

然後將以樹脂清漆浸漬之基質材料，例如乾燥爐中，以80至200℃(若使用溶劑，則以不低於溶劑揮發之溫度進行)，100至180℃較佳乾燥3至30分鐘，5至15分鐘較佳，形成預浸物。

將多片形成之預浸物層置，並將金屬箔置於該層置預浸物之單側或雙側，加熱加壓黏合之，製造本發明積層板(d)。金屬箔置於單側時製得單側鍍金屬積層板，金屬箔置於雙側時，製得雙側鍍金屬之積層板。黏合步驟通常在150至200℃，1至10MPa下30至150分鐘。

本發明之樹脂組成物(B)含有具有與基質材料和無機填料表面羥基反應之官能端基之三向交聯矽氧烷低聚物。因此，基質材料/樹脂界面和無機填料/樹脂界面形成之表面處理劑層不會像慣用矽烷偶合劑等形成之層薄且硬，而是一種交聯矽氧烷低聚物墊層，其緩和界面產生之扭曲並使樹脂充分發揮其優良黏合功能。因此，使用本發明樹脂組成物(A)製造之積層板和多層印刷電路板鑽孔加工性和絕緣特性良好。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(26)

使用樹脂組成物(B)製成之積層板之無機填料/樹脂界面亦與圖4所示狀態相同。

下文,本發明將參照實施例詳細說明之,但其並不限制本發明之範疇。

(I) 印刷電路板用之預浸物和使用該預浸物製成積層板之製法實施例及其對照實例

實施例 I - 1

於一個具有攪拌裝置,冷凝器和溫度計之燒瓶中導入40 g 溶解於93 g 甲醇之四甲氧基矽烷溶液,且於0.47 g 醋酸和18.9 g 蒸餾水加入之後,該混合物於50°C攪拌8小時,合成一種聚合度20(以GPC由重量平均分子量測得之轉換,亦適用於下文)矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。該矽氧烷低聚物與羥基反應之官能端基為甲氧基和/或矽氧烷基。

於該矽氧烷低聚物中加入甲醇製備一種固體含量為1重量%之處理液體。

實施例 I - 2

使用與實施例 I - 1 相同之反應器,將0.53 g 醋酸和15.8 g 蒸餾水加入溶於93 g 甲醇中之40 g 三甲氧甲基矽烷溶液,然後該混合物於50°C攪拌8小時,合成為聚合度為15矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和/或矽氧烷基。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（27）

甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為1重量%之處理液體。

實施例 I - 3

使用同實施例 I - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 14.0 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 34 g 二甲氧基二甲基矽烷和 25 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 28 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為1重量%之處理液體。

實施例 I - 4

使用同實施例 I - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 17.8 g 蒸餾水加入溶於 105 g 甲醇中之 20 g 二甲氧基二甲基矽烷和 25 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 30 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為1重量%之處理液體。

實施例 I - 5

裝

訂

線

五、發明說明(28)

使用同實施例 I - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 18.3 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 20 g 三甲氧基甲基矽烷和 22 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 25 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量爲 1 重量 % 之處理液體。

實施例 I - 6

使用同實施例 I - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 16.5 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 10 g 二甲氧基二甲基矽烷 10 g 三甲氧基甲基矽烷和 20 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 23 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量爲 1 重量 % 之處理液體。

實施例 I - 7

於實施例 I - 4 製得之矽氧烷低聚物溶液中加入 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷 (商品名: A - 187, 由 Nippon Unicar Co., Ltd. 所製) 充作矽烷偶合劑。以及甲醇，製備一種固體含量爲 1 重量 % 之處理液體 (矽氧

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(29)

烷低聚物：A - 187 = 1 : 0.5 重量比率)。

實施例 I - 8

於實施例 I - 4 製得之矽氧烷低聚物溶液中加入氫氯化 N - β - (N - 乙烯基苄基氨基乙基) - γ - 氨基丙基三甲氧矽烷(商品名：SZ - 6032，由 Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製)充作矽烷偶合劑。以及甲醇，製備一種固體含量為 1 重量% 之處理液體(矽氧烷低聚物：SZ 6032 = 1 : 0.5 重量比率)。

將 0.2 mm 厚以 400 °C 加熱 24 小時脫脂之玻璃織品浸於實施例 I - 1 至 8 製得之每種處理液體中，然後以 120 °C 加熱乾燥 30 分鐘，製成一種表面塗覆有矽氧烷低聚物或矽氧烷低聚物 / 偶合劑混合物之玻璃織品。矽氧烷於該經處理玻璃織品上之黏著量為 0.08 至 0.11 重量%。

實施例 I - 9

將實施例 I - 4 處理液體處理過之玻璃織品(矽氧烷黏合量：0.08 重量%)再浸於含 0.5 重量% γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基甲矽烷(商品名：A - 187，由 Nippon Unicar Co., Ltd. 所製)充作矽烷偶合劑，以及 0.5 重量% 之醋酸溶液中，於 120 °C 乾燥 30 分鐘，製得表面以矽氧烷低聚物 and 一種矽烷偶合劑處理之玻璃織品。該矽烷偶合劑之黏著量為 0.05 重量%。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(30)

實施例 I - 1 0

將實施例 I - 4 處理液體處理過之玻璃織品(矽氧烷黏含量: 0.08 重量%)再浸於含 0.5 重量% 氫氯化 N - β - (N - 乙烯基苄基氨基乙基) - γ - 氨基甲氧基矽烷(商品名: SZ - 6032, 由 Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製)充作矽烷偶合劑, 以及 0.5 重量% 之醋酸溶液中, 於 120°C 乾燥 30 分鐘, 製得表面以矽氧烷低聚物和一種矽烷偶合劑處理之玻璃織品。該矽烷偶合劑之黏著量為 0.04 重量%。

實施例 I - 1 1

將 0.2 mm 厚於 400°C 加熱 24 小時脫脂之玻璃織品浸於同實施例 I - 9 使用之水溶液, 且其含有 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧矽烷(商品名: A - 187, Nippon Unicar Co., Ltd. 所製)充作矽烷偶合劑, 然後以 120°C 加熱 30 分鐘乾燥之, 製成一種表面經偶合劑塗覆, 黏著量為 0.1 重量% 之玻璃織品。然後將該表面處理之玻璃織品浸於實施例 I - 4 所製之處理液體中, 以 120°C 加熱 30 分鐘乾燥之, 製成表面另外以矽氧烷低聚物塗覆之玻璃織品。該矽氧烷低聚物黏著量為 0.04 重量%。

實施例 I - 1 2

將 0.2 mm 厚於 400°C 加熱 24 小時脫脂之玻璃織

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(31)

品浸於同實施例 I - 10 使用之水溶液，且其含有氫氯化 N - β - (N - 乙烯基苄基氨基乙基) - γ - 氨基丙基三甲氧基矽烷(商品名：SZ - 6032, Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製)充作矽烷偶合劑，然後以 120 °C 加熱 30 分鐘乾燥之，製成一種表面經偶合劑塗覆，黏著量為 0.1 重量%之玻璃織品。然後將該表面處理之玻璃織品浸於實施例 I - 4 所製之處理液體中，以 120 °C 加熱 30 分鐘乾燥之，製成表面另外以矽氧烷低聚物塗覆之玻璃織品。該矽氧烷低聚物黏著量為 0.03 重量%。

對照實例 I - 1

使用 0.2 mm 厚， γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷(商品名：A - 187, Nippon Unicar Co., Ltd. 所製)黏合量為 0.1 重量%，與實施例 I - 11 使用者相同之玻璃織品充作玻璃織品基質材料。

對照實例 I - 2

使用 0.2 mm 厚，氫氯化 N - β - (N - 乙烯基苄基氨基乙基) - γ - 氨基丙基三甲氧基矽烷(商品名：SZ - 6032, 由 Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製)黏合量為 0.1 重量%，與實施例 I - 12 使用者相同之玻璃織品充作玻璃織品基質材料。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（32）

對照實例 I - 3

製備一種含 1.0 重量% 之環氧改良矽氧烷油（商品名：KF101，由 Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. 製造）之甲醇溶液充作處理液體替代矽氧烷低聚物處理液體。將 0.2 mm 厚於 400 °C 加熱 24 小時脫脂之玻璃織品浸於該處理液體中，然後再以 120 °C 加熱 30 分鐘，製成表面塗覆有該矽氧烷油之玻璃織品。該矽氧油黏著量為 0.12 重量%。

以下列環氧樹脂樹脂清漆浸漬實施例 I - 1 至 I - 2 和對照實例 I - 1 至 I - 3 製得之玻璃織品，然後於 140 °C 加熱 5 至 10 分鐘乾燥之，製成樹脂固體含量為 41 重量% 之預浸物。將四片每種預浸物層置，以 35 μm 厚之銅箔置於每一側，於 170 °C，90 分鐘及 4.0 MPa 加壓條件下進行黏合作用，製成雙側鍍金屬之積層板。

溴酸化雙酚 A 環氧樹脂（環氧樹脂當量：530）：

100 重量份數，二氰胍：4 重量份數

2-乙基-4-甲基咪唑：0.5 重量份數

這些化合物溶解於甲基乙基甲酮 / 伸乙基乙二醇 - 甲基醚（1 / 1 重量比率）溶劑混合物中，製備一種不揮發固體含量為 70 重量% 之樹脂清漆，其係充作上述環氧樹脂清漆。

製得之雙側鍍銅積層板進行鑽孔加工性，吸水性，耐焊熱性和絕緣特性試驗。結果示於表 I - 1。

五、發明說明 (33)

表 I-1 積層板特性

實施例編號	鑽孔加工性 (裂化%)	吸水性 (wt%)	耐焊熱性	抗絕緣性	
				(Ω)	
				正常狀態	5-h r PCT之後
I-1	20	0.72	OK	6.1×10^{15}	6.7×10^{13}
I-2	25	0.70	OK	6.4×10^{15}	6.9×10^{13}
I-3	27	0.70	OK	7.3×10^{15}	7.2×10^{13}
I-4	23	0.68	OK	7.0×10^{15}	6.9×10^{13}
I-5	22	0.71	OK	6.2×10^{15}	7.0×10^{13}
I-6	19	0.69	OK	6.9×10^{15}	7.3×10^{13}
I-7	28	0.61	OK	7.1×10^{15}	7.1×10^{13}
I-8	26	0.62	OK	7.2×10^{15}	7.2×10^{13}
I-9	22	0.65	OK	7.5×10^{15}	7.4×10^{13}
I-10	21	0.66	OK	8.0×10^{15}	7.5×10^{13}
I-11	30	0.70	OK	6.8×10^{15}	7.0×10^{13}
I-12	29	0.72	OK	7.0×10^{15}	7.1×10^{13}
對照實例編號					
I-1	48	0.69	OK	7.6×10^{15}	8.5×10^{12}
I-2	45	0.71	OK	8.1×10^{15}	1.5×10^{13}
I-3	63	1.05	NG	5.5×10^{14}	5.5×10^{11}

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄

五、發明說明 (34)

每一種試驗進行如下。除了耐離子移動性試驗外，使用銅箔完全蝕刻之試樣。

鑽孔加工性：使用 $\phi 0.4$ mm 之鑽子以 8000 r p m 和 3200 mm / 分之進料率製成通孔後，藉由基質材料 / 樹脂界面剝離現象進行孔壁之裂化試驗。孔壁之裂化實驗係將每個鑽孔試樣於紅色裂化液體中煮沸 1 小時，以顯微鏡觀察該壁表面，並測量該孔壁（平均值 20 個孔）吸入區域之百分比。單位：%

吸水性：其係由正常狀態和 2 小時壓力鍋試驗（121 °C，2 a t m）後重量差異計算出。單位：重量%

耐焊熱性：於 2 小時壓力鍋試驗（121 °C，2 a t m）後，將每個試樣浸於 260 °C 金屬熔化槽中 20 秒，肉眼觀察其表面。表中，“OK”表示無小疹或起泡。

抗絕緣性：於正常狀態和 5 小時壓力鍋試驗（121 °C，2 a t m）之後，對每一種試樣施加 500 V 電壓 1 分鐘，然後測得其抗絕緣性。單位： Ω

如實施例 I - 1 和對照實例 I - 2 進行抗離子移動試驗。

抗離子移動性：使用 $\phi 0.4$ mm 之鑽子製成 300 個通孔，其全部排成六條件，每條線包括 50 個孔（孔間距：1.0 mm）其以孔距 0.7 mm 空間之列排列。以慣用非電鍍和電鍍法對通孔鍍上 35 μ m 厚之鍍銅。然後該積層板以光電石印術接線，如此每條線上 50 個通孔係以直徑

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明（35）

0.6 mm 且連接線 0.1 mm 寬之區間連接曲柄形式連接。該纏繞之線互相連接，並使用一組連接線充作陰極而另一組充作陽極，於 85 °C / 85 % RH 施加 100 V。

對照實例 I - 2 中，大約 1200 小時後，因 CAF（導電陰極絲）之持續斷裂發生，而實施例 I - 1 中，甚至 1500 小時後，該抗絕緣性為 $10^{10} \Omega$ 。

結果顯示，實施例 I - 1 至 12 製得之鍍銅積層板具有充分耐焊接熱性，難以因鑽孔而裂化，因吸水性而喪失其抗絕緣性，而且具有經改良之抗離子移動性。

以本發明方法製造之印刷電路板預浸物可藉使用該預浸物而改良鑽孔加工性和絕緣特性，其包括抗離子移動性，且不會使慢用積層板特性惡化。

（II）印刷電路板用之樹脂清漆及使用樹脂清漆製造之積層板製法實例，參考實例和對照實例

參考實例 II - 1

於一個具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之玻璃燒瓶中加入充作矽烷偶合劑之 γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷（商品名：A-187，Nippon Unicar Co., Ltd. 所製）和甲基乙基甲酮以製造固體含量為 10 重量%之處理液體。將佔樹脂固體 50 重量%數量之煨燒黏土（平均顆粒大小：1.2 μ m）加入處理液體中，然後於室溫攪拌該混合物 1 小時，製成一種含有表面經處理無機填料之處理液體。

五、發明說明(36)

參考實例 II - 2

於一個具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之玻璃燒瓶中加入充作矽烷偶合劑之氫氯化 N - β - (N - 乙烯基苄基氨基乙基) - γ - 氨基丙基三甲氧基矽烷(商品名：SZ - 6032, Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製)和甲基乙基甲酮以製造固體含量為 10 重量%之處理液體。將佔樹脂固體 50 重量%數量之煅燒黏土(平均顆粒大小：1.2 μ m)加入處理液體中，然後於室溫攪拌該混合物 1 小時，製成一種含有表面經處理無機填料之處理液體。

參考實例 II - 3

於一個具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之玻璃燒瓶中加入充作矽烷偶合劑之鈦酸異丙基三(二辛基丙基焦磷酸酯)(商品名：KR46B, Ajinomoto Co., Ltd. 所製)和甲基乙基甲酮以製造固體含量為 10 重量%之處理液體。將佔樹脂固體 50 重量%數量之煅燒黏土(平均顆粒大小：1.2 μ m)加入處理液體中，然後於室溫攪拌該混合物 1 小時，製成一種含有表面經處理無機填料之處理液體。

實施例 II - 1

於具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之玻璃燒瓶中加入

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

泉

五、發明說明（37）

40 g 溶解於 93 g 甲醇之四甲氧基矽烷溶液，且於 0.47 g 醋酸和 18.9 g 蒸餾水加入之後，該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成一種聚合度 20（以 GPC 由重量平均分子量測得之轉換，亦適用於下文）矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。該矽氧烷低聚物與羥基反應之官能端基為甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量 % 之煅燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

實施例 II - 2

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.53 g 醋酸和 15.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 三甲氧基甲基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 15 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量 % 之煅燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

五、發明說明 (38)

實施例 II - 3

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 1.4 g 蒸餾水加入溶於 9.8 g 甲醇中之 3.4 g 二甲氧基二甲基矽烷和 8 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 2.8 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量 % 之煨燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

實施例 II - 4

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 17.8 g 蒸餾水加入溶於 10.5 g 甲醇中之 2.0 g 二甲氧基二甲基矽烷和 2.5 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 3.0 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量 % 之煨燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明（39）

液體。

實施例 II - 5

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 18.3 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 20 g 三甲氧基甲基矽烷和 22 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 25 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量 % 之煨燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

實施例 II - 6

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 16.5 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 10 g 二甲氧基二甲基矽烷，10 g 三甲氧基甲基矽烷和 20 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 23 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量 % 之處理液體。將數量佔該樹脂固

裝

訂

錄

五、發明說明(40)

體50重量%之煨燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物1小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

實施例 II - 7

使用同實施例 II - 1 之反應器，將 0.34 g 醋酸和 13.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 三甲氧基甲基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 19 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲基乙基甲酮加入製成之矽氧烷低聚物溶液，製成一種固體含量 10 重量%之處理液體。將數量佔該樹脂固體 50 重量%之煨燒黏土加入處理液體中，於室溫下攪拌該混合物 1 小時，製成含有經表面處理之無機填料之處理液體。

參考實例 II - 4

重覆參考實例 II - 1 程序，但是使用滑石（平均顆粒大小：12 μm ）充作無機填料，製成含有經表面處理無機填料之處理液體。

參考實例 II - 5

重覆參考實例 II - 1 程序，但是使用矽石（平均顆粒大小：1.0 μm ）充作無機填料，製成含有表面經處理

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

象

五、發明說明 (41)

無機填料之處理液體。

實施例 II - 8

於實施例 II - 1 中製得之矽氧烷低聚物溶液中加入充作矽烷偶合劑之 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷 (商品名 : A - 1 8 7 , Nippon Unicar Co., Ltd. 所製) 和甲基乙基甲酮以製造固體含量為 1 0 重量 % 之處理液體 (矽氧烷低聚物 : A - 1 8 7 = 1 : 1 重量比率) 。將佔樹脂固體 5 0 重量 % 數量之煨燒黏土 (平均顆粒大小 : 1 . 2 μ m) 加入處理液體中 , 然後於室溫攪拌該混合物 1 小時 , 製成一種含有表面經處理無機填料之處理液體。

實施例 II - 9

於實施例 II - 1 中製得之矽氧烷低聚物溶液中加入充作鈦酸酯偶合劑之鈦酸異丙基三 (二辛基丙基焦磷酸酯) (商品名 : K R 4 6 B) 和甲基乙基甲酮以製造固體含量為 1 0 重量 % 之處理液體 (矽氧烷低聚物 : K R 4 6 B = 1 : 1 重量比率) 。將佔樹脂固體 5 0 重量 % 數量之煨燒黏土加入處理液體中 , 然後於室溫攪拌該混合物 1 小時 , 製成一種含有表面經處理無機填料之處理液體。

實施例 II - 1 和 9 和參考實例 II - 1 至 5 製得且含有表面處理無機填料之處理液體加熱至 5 0 $^{\circ}$ C , 於其中加入下列樹脂材料和一種甲基乙基甲酮 / 伸乙基乙二醇 - 甲基醚 (1 : 1 重量比率) 溶劑混合物 , 製成固體含量佔 7 0

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (42)

重量 % 之樹脂清漆。

溴酸化雙酚 A 環氧樹脂 (環氧當量 : 530) : 100 重量份數

二氰胍 : 4 重量份數

2 - 乙基 - 4 - 甲基咪唑 : 0 . 5 重量份數

對照實例 II - 1

將表面未經處理之煨燒黏土混入甲基乙基甲酮 / 伸乙基乙二醇 - 甲基醚 (重量比率 1 : 1) 溶劑混合物中，含量為 50 重量 %，然後於其中加入上述樹脂組成物，製成一種固體含量佔 70 重量 % 之樹脂清漆。

對照實例 II - 2

於 100 重量份數對照實例 II - 1 中製成之樹脂清漆中加入 2 重量份數之 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷充作矽烷偶合劑。

對照實例 II - 3

以參考實例 II - 1 相同方法製造樹脂清漆，但是以環氧改良矽氧烷油 (商品名 : KF101, Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. 所製) 之煨燒黏土替代該矽烷偶合劑。

對照實例 II - 4

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (43)

將參考實例 II - 1 中使用之矽烷偶合劑，即 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷，溶解於甲醇中製成一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體，表面未經處理之煨燒黏土浸於其中 1 小時並攪拌之，然後於 120 °C 乾燥 1 小時。使用同對照實例 II - 1 中製得之樹脂清漆，但是不使用經處理之煨燒黏土。

以實施例 II - 1 至 9，參考實例 II - 1 至 5 和對照實例 II - 1 至 4 製得之每種樹脂清漆浸漬 0.2 mm 厚之玻璃織品，製得浸漬玻璃織品，然後於 140 °C 加熱 5 至 10 分鐘乾燥之，製成樹脂固體含量為 41 重量 % 之預浸物。將四片每種預浸物層置，以 35 μ m 厚之銅箔置於每一側，於 170 °C，90 分鐘及 4.0 MPa 加壓條件下進行黏合作用，製成雙側鍍金屬之積層板。

對製得之雙側鍍積層板進行鑽孔加工性，吸水性，焊接耐熱性和抗離子移動性試驗。結果示於表 II - 1 和 II - 2。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (44)

表 II-1

	參考實例			實施例					
	II-1	II-2	II-3	II-1	II-2	II-3	II-4	II-5	II-6
塗覆品質	NG	NG	NG	良好	良好	良好	良好	良好	良好
預浸物外觀	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
鑽孔加工性 (裂化%)	24	22	25	18	22	21	17	18	16
吸水性 (wt%)	0.71	0.70	0.75	0.74	0.71	0.70	0.73	0.73	0.71
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	>500	>500	>500	>500	>500	>500

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (45)

表 II-2

	實施例		參考實例			實施例		對照實例	
	II-7	II-4	II-5	II-8	II-9	II-1	II-2	II-3	II-4
塗覆品質	良好	良好	良好	良好	良好	NG	NG	NG	NG
預浸物外觀	良好	良好	良好	良好	良好	NG	NG	NG	NG
鑽孔加工性 (裂化%)	19	23	24	23	23	38	37	40	36
吸水性 (wt%)	0.70	0.74	0.73	0.69	0.68	0.88	0.88	0.95	0.80
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	>500	>500	288	288	216	360

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (46)

每種試驗進行如下。塗覆品質和預浸物外觀係先以肉眼觀察。不會造成無機填料黏附於輥上之塗覆品質評為「良好」，造成或多或少此種黏附者評為「NG」。至於預浸物外觀，具有與不含無機填料預浸物相同均勻表面者評為「良好」，其它評為「NG」。

除抗離子移動試驗之外，使用之試樣銅箔完全蝕刻。

鑽孔加工性：使用 $\phi 0.4 \text{ mm}$ 之鑽子以 8000 r p m 和 3200 mm / 分之進料率製成通孔後，藉由基質材料 / 樹脂界面剝離現象進行孔壁之裂化試驗。孔壁之裂化實驗係將每個鑽孔試樣於紅色裂化液體中煮沸 1 小時，以顯微鏡觀察該壁表面，並測量該孔壁（平均值 20 個孔）吸入區域之百分比。單位：%

吸水性：其係由正常狀態和 2 小時壓力鍋試驗（121°C，2 a t m）後重量差異計算出。單位：重量%

耐焊熱性：於 2 小時壓力鍋試驗（121°C，2 a t m）後，將每個試樣浸於 260°C 金屬熔化槽中 20 秒，肉眼觀察其表面。表中，「OK」表示無小疹或起泡。

抗離子移動性：同上述方法，測量於 85°C / 85% R H 下施加 100 V 導成連續破裂所需時間。該連續破裂亦可確認係藉由通孔間之 C A F（導電陰極絲）造成。

結果顯示，實施例 II - 1 至 9 和參照實例 II - 1 至 5 之預浸物具有良好外觀，使用這些預浸物製成之積層板具有充分焊接耐熱性，吸收少量水，難以藉由穿孔裂化，且

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明 (47)

抗離子移動性改善。特別是實施例 II - 1 至 9 製造之預浸物不會造成無機填料黏附輥上，塗覆品質得到特殊改善。

使用本發明方法製造之樹脂清漆製成之預浸物外觀優良，且可藉由使用該預浸物製成積層板改善鑽孔加工性和絕緣特性，其包括抗離子移動性，其不會使慣用預浸物之特性惡化。

(III) 印刷電路板用之樹脂組成物 (A) 和使用樹脂組成物 (A) 製造積層板之實施例及對照實例

實施例 III - 1

於一個具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之燒瓶中導入 40 g 溶解於 93 g 甲醇之四甲氧基矽烷溶液，且於 0.47 g 醋酸和 18.9 g 蒸餾水加入之後，該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成一種聚合度 20 (以 GPC 由重量平均分子量測得之轉換，亦適用於下文) 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。該矽氧烷低聚物與羥基反應之官能端基為甲氧基和 / 或矽氧烷基。

實施例 III - 2

使用與實施例 III - 1 相同之反應器，將 0.53 g 醋酸和 15.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 三甲氧甲基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 15 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄

五、發明說明 (48)

實施例 III - 3

使用同實施例 III - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 14.0 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 34 g 二甲氧基二甲基矽烷和 8 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 28 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

實施例 III - 4

使用同實施例 III - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 17.8 g 蒸餾水加入溶於 105 g 甲醇中之 20 g 二甲氧基二甲基矽烷和 25 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 30 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

實施例 III - 5

使用同實施例 III - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 18.3 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 20 g 三甲氧基甲基矽烷和 22 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 25 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (49)

實施例 III - 6

使用同實施例 III - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 16.5 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 10 g 二甲氧基二甲基矽烷 10 g 三甲氧基甲基矽烷和 20 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 23 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

實施例 III - 7

使用同實施例 III - 1 之反應器，將 0.34 g 醋酸和 13.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 四乙氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成爲聚合度爲 19 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

使用實施例 III - 1 至 7 合成之矽氧烷低聚物製備含有下列組份之環氧樹脂清漆。

溴酸化雙酚 A 環氧樹脂 (環氧當量 : 530) : 100 重量份數

二氰胍 : 4 重量份數

矽氧烷低聚物 : 2 重量份數

2 - 乙基 - 4 - 甲基咪唑 : 0.5 重量份數

將這些化合物溶解於甲基乙基甲酮 / 伸乙基乙二醇 - 甲基醚 (1 : 1 重量比率) 之溶劑混合物中，製得不揮發

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (50)

固體含量為 70 重量%之樹脂清漆。

實施例 III - 8

以同於上述比率之組份製造一種樹脂清漆，但是將實施例 III - 1 之矽氧烷低聚物數量改成 1 重量份數，且以 1 重量份數之 γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷（商品名：A-187，Nippon Unicar Co., Ltd. 所製）充作矽烷偶合劑，將其加入製成不揮發固體含量為 70 重量%之樹脂清漆。

實施例 III - 9

以同於上述比率之組份製造一種樹脂清漆，但是將實施例 III - 1 之矽氧烷低聚物數量改成 1 重量份數，且以 1 重量份數之氫氯化 N- β -(N-乙烯基苄基氨基乙基)- γ -氨基丙基三甲氧矽烷（商品名：SZ-6032，Toray·Dow Corning·Silicone Co., Ltd. 所製）充作矽烷偶合劑，將其加入製成不揮發固體含量為 70 重量%之樹脂清漆。

實施例 III - 10

於實施例 III - 1 中含有 2 重量份數矽氧烷低聚物之樹脂清漆中加入每 100 重量份數環氧樹脂有 50 重量份數煨燒黏土（平均顆粒大小：1.2 μ m）充作無機填料，製成不揮發成份佔 70 重量%之樹脂清漆。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

錄

五、發明說明 (51)

對照實例 III - 1

以同實施例 III - 1 至 7 之方法製造樹脂清漆，但是不添加矽氧烷低聚物。

對照實例 III - 2

以同實施例 III - 1 至 7 方法製造樹脂清漆，但是使用 2 重量份數 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧矽烷替代矽氧烷低聚物。

對照實例 III - 3

以同實施例 III - 1 至 7 方法製造樹脂清漆，但是使用 2 重量份數之環氧改良矽氧烷油（商品名：KF101，由 Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. 所製）替代該矽氧烷低聚物。

對照實例 III - 4

以同實施例 III - 9 方法製造樹脂清漆，但是不使用矽氧烷低聚物。

對照實例 III - 5

以每 100 重量份數環氧樹脂有 50 重量份數之煅燒黏土加入對照實例 III - 2 樹脂清漆中充作無機填料，製造一種不揮發固體含量為 70 重量%之樹脂清漆。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明 (52)

以實施例 III - 1 至 10，對照實例 III - 1 至 5 製得之每種樹脂清漆浸漬 0.2 mm 厚之玻璃織品，製得浸漬玻璃織品，然後於 140 °C 加熱 5 至 10 分鐘乾燥之，製成樹脂固體含量為 41 重量%之預浸物。將四片每種預浸物層置，以 35 μ m 厚之銅箔置於每一側，於 170 °C，90 分鐘及 4.0 MPa 加壓條件下進行黏合作用，製成雙側鍍金屬之積層板。

對製得之雙側鍍積層板進行鑽孔加工性，吸水性，焊接耐熱性和抗離子移動性試驗。結果示於表 III - 1 和 III - 2。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (53)

表 III-1

	實施例						
	III-1	III-2	III-3	III-4	III-5	III-6	III-7
二甲氧基二甲基矽烷 (g)	-	-	34	20	-	10	-
三甲氧基甲基矽烷 (g)	-	40	-	-	20	10	-
四甲氧基矽烷 (g)	40	-	8	25	22	20	-
四乙氧基矽烷 (g)	-	-	-	-	-	-	40
甲醇 (g)	93	93	98	105	98	93	93
醋酸 (g)	0.47	0.53	0.60	0.60	0.52	0.52	0.34
蒸餾水 (g)	18.9	15.8	14.0	17.8	18.3	16.5	13.8
合成條件	50°C, 8小時						
矽氧烷重複單位	20	15	28	30	25	23	19
環氧樹脂 (wt 份數)	100	100	100	100	100	100	100
矽氧烷低聚物 (wt 份數)	2	2	2	2	2	2	2
A-187 (wt 份數)	-	-	-	-	-	-	-
SZ-6032 (wt 份數)	-	-	-	-	-	-	-
環氧改良矽氧烷油 (wt 份數)	-	-	-	-	-	-	-
煅燒黏土 (wt 份數)	-	-	-	-	-	-	-
鑽孔加工性 (裂化%)	22	26	25	21	22	20	23
吸水性 (wt%)	0.71	0.68	0.67	0.70	0.71	0.68	0.73
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	>500	>500	>500	>500

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (54)

表 III-2

	實施例			對照實例				
	III-8	III-9	III-10	III-1	III-2	III-3	III-4	III-5
環氧樹脂 (w t 份數)	100	100	100	100	100	100	100	100
矽氧烷低聚物 (實施例 III-1) (w t 份數)	1	1	2	-	-	-	-	-
A-187 (w t 份數)	1	-	-	-	2	-	-	2
SZ-6032 (w t 份數)	-	1	-	-	-	-	1	-
環氧改良矽氧烷油 (w t 份數)	-	-	-	-	-	2	-	-
煨燒黏土 (w t 份數)	-	-	50	-	-	-	-	50
鑽孔加工性 (裂化%)	28	25	19	43	41	48	38	37
吸水性 (w t %)	0.63	0.62	0.75	0.70	0.69	0.75	1.05	0.88
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	360	336	315	192	288

A-187: γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷SZ-6032: 氫氧化 N- β -(N-乙基基基氨基乙基)- γ -
氨基丙基三甲氧基矽烷

KF101: 環氧改良矽氧烷油

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (55)

該試驗以同於實施例 II - 1 至 9，參考實例 II - 1 和 5 和對照實例 II - 1 至 4 方法進行。除了抗離子移動性試驗外，使用之其它試樣銅箔完全蝕刻。

結果顯示，實施例 III - 1 至 10 之預浸物具有良好外觀，使用這些預浸物製成之積層板具有充分焊接耐熱性，吸收少量水，難以藉由穿孔裂化，且抗離子移動性改善。

使用本發明方法製造之樹脂組成物 (A) 製成之積層板鑽孔加工性和絕緣特性，其包括抗離子移動性得到改善，其不會使慣用預浸物之特性惡化。

(IV) 印刷電路板用之樹脂組成物 (B) 及使用該樹脂組成物置成積層板之實施例和對照實例

實施例 IV - 1

於一具有攪拌裝置，冷凝器和溫度計之玻璃燒瓶中導入 40 g 溶解於 93 g 甲醇之四甲氧基矽烷溶液，且於 0.47 g 醋酸和 18.9 g 蒸餾水加入之後，該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成一種聚合度 20 (以 GPC 由重量平均分子量測得之轉換，亦適用於下文) 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。該矽氧烷低聚物與羥基反應之官能端基為甲氧基和 / 或矽氧烷基。

於該矽氧烷低聚物中加入甲醇製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 2

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄

五、發明說明（56）

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.53 g 醋酸和 15.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 三甲氧基甲基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 15 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 3

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 14.0 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 34 g 二甲氧基二甲基矽烷和 8 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 28 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 4

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.60 g 醋酸和 17.8 g 蒸餾水加入溶於 105 g 甲醇中之 20 g 二甲氧基二甲基矽烷和 25 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 30 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基

五、發明說明 (57)

和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 5

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 18.3 g 蒸餾水加入溶於 98 g 甲醇中之 20 g 三甲氧基甲基矽烷和 22 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 2.5 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 6

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.52 g 醋酸和 16.5 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 10 g 二甲氧基二甲基矽烷 10 g 三甲氧基甲基矽烷和 20 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 2.3 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (58)

實施例 IV - 7

使用同實施例 IV - 1 之反應器，將 0.34 g 醋酸和 13.8 g 蒸餾水加入溶於 93 g 甲醇中之 40 g 四甲氧基矽烷溶液，然後該混合物於 50 °C 攪拌 8 小時，合成為聚合度為 19 矽氧烷單位之矽氧烷低聚物。矽氧烷與羥基反應之官能端基係甲氧基和 / 或矽氧烷基。

將甲醇加入矽氧烷低聚物中，製備一種固體含量為 1 重量 % 之處理液體。

實施例 IV - 8

於實施例 IV - 1 中製得之矽氧烷低聚物溶液中加入充作矽烷偶合劑之 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷 (商品名: A - 187, Nippon Unicar Co., Ltd. 所製) 甲醇以製造固體含量為 10 重量 % 之處理液體 (矽氧烷低聚物: A - 187 = 1 : 1 重量比率)。

實施例 IV - 9

將實施例 IV - 1 中製得之矽氧烷低聚物溶液中加入充作矽烷偶合劑之氫氯化 N - β - (N - 乙炔基苄基氨基乙基) - γ - (氨基丙基三甲氧基矽烷 (商品名 SZ - 6032, 由 Toray · Dow Corning · Silicone Co., Ltd. 所製) 和甲醇，製造固體含量為 1 重量 % 之處理液體 (矽氧烷低聚物: SZ - 6032 = 1 : 1 重量比率)。

將充作無機填料之煨燒黏土 (平均顆粒大小: 1.2

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (59)

μm) 以實施例 IV - 1 至 9 所製之每種處理液體浸漬 1 小時並攪拌，於 $120^{\circ}C$ 加熱 1 小時乾燥之，製成以矽氧烷低聚物處理之無機填料。該矽氧烷低聚物之黏著量為 0.08 至 0.11 重量%。

實施例 IV - 10

以同實施例 IV - 1 方法以矽氧烷低聚物處理無機填料，但是使用滑石（平均顆粒大小： $12 \mu m$ ）充作該無機填料。矽氧烷低聚物之黏著量為 0.10 重量%。

實施例 IV - 11

以同實施例 IV - 1 方法以矽氧烷低聚物處理無機填料，但是使用矽石（平均顆粒大小： $1.0 \mu m$ ）充作該無機填料。矽氧烷低聚物之黏著量為 0.09 重量%。

實施例 IV - 12

將煨燒黏土直接加入實施例 IV - 1 製得之矽氧烷低聚物溶液中，且不以甲醇再稀釋（矽氧烷低聚物：煨燒黏土 = 1.0 : 100 重量比率），且充分攪拌該混合物，然後於 $120^{\circ}C$ 乾燥 1 小時，製得以矽氧烷低聚物處理之無機填料。該矽氧烷低聚物之黏著量為 0.05 重量%。

將實施例 IV - 1 至 12 製得之表面處理無機填料分別以下列比率與下列樹脂組份混合，製備環氧樹脂清漆。
溴酸化雙酚 A 環氧樹脂（環氧樹脂當量：530）：

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

錄

五、發明說明 (60)

1 0 0 重量份數

二氰胍：4 重量份數

矽氧烷低聚物處理無機填料：5 0 重量份數

2 - 乙基 - 4 - 甲基咪唑：0 . 5 重量份數

將這些化合物溶解且分散於甲基乙基甲酮 / 伸乙基乙二醇 - 甲基醚 (1 / 1 重量比率) 之溶劑混合物中，製得不揮發固體含量為 7 0 重量 % 之樹脂清漆。

對照實例 IV - 1

以同於上述方法製造樹脂清漆，但是以不經表面處理之煨燒黏土充作無機填料。

對照實例 IV - 2

使用 γ - 縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷 (商品名：A - 1 8 7，由 Nippon Unicar Co., Ltd. 所製) 代替含處理液體之矽氧烷低聚物製造矽烷偶合劑黏著量為 0 . 0 7 重量 % 之煨燒黏土，樹脂清漆之製法同上，但是使用其製得之煨燒黏土。

對照實例 IV - 3

使用環氧改良矽氧烷油 (商品名：K F 1 0 1，由 Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. 所製) 代替含處理液體之矽氧烷低聚物製造矽氧烷油黏著量為 0 . 0 6 重量 % 之煨燒黏土，樹脂清漆之製法同上，但是使用其製得之煨燒黏

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄

五、發明說明 (61)

土。

以實施例 IV - 1 至 1 2 和對照實例 IV - 1 至 3 製得之
每種樹脂清漆浸漬 0 . 2 mm 厚之玻璃製品，製得浸漬玻璃
織品，然後於 1 4 0 °C 加熱 5 至 1 0 分鐘乾燥之，製成樹
脂固體含量為 4 1 重量 % 之預浸物。將四片每種預浸物層
置，以 3 5 μ m 厚之銅箔置於每一側，於 1 7 0 °C，9 0
分鐘及 4 . 0 M P a 加壓條件下進行黏合作用，製成雙側
鍍金屬之積層板。

對製得之雙側鍍銅積層板進行鑽孔加工性，吸水性，
焊接耐熱性和抗離子移動性試驗。結果示於表 IV - 1 和
IV - 2 。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (62)

表 IV-1

	實施例						
	IV-1	IV-2	IV-3	IV-4	IV-5	IV-6	IV-7
二甲氧基二甲基矽烷 (g)	-	-	34	20	-	10	-
三甲氧基甲基矽烷 (g)	-	40	-	-	20	10	-
四甲氧基矽烷 (g)	40	-	8	25	22	20	-
四乙氧基矽烷 (g)	-	-	-	-	-	-	40
甲醇 (g)	93	93	98	105	98	93	93
醋酸 (g)	0.47	0.53	0.60	0.60	0.52	0.52	0.34
蒸餾水 (g)	18.9	15.8	14.0	17.8	18.3	16.5	13.8
合成條件	50°C, 8小時						
矽氧烷重複單位	20	15	28	30	25	23	19
煨燒黏土 (wt 份數)	使用	使用	使用	使用	使用	使用	使用
鑽孔加工性 (裂化%)	19	23	22	18	19	17	20
吸水性 (wt%)	0.75	0.72	0.71	0.74	0.74	0.72	0.70
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	>500	>500	>500	>500

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (63)

表 IV-2

	實施例					對照實例		
	IV-8	IV-9	IV-10	IV-11	IV-12	IV-1	IV-2	IV-3
矽氧烷低聚物	使用	使用	使用	使用	使用	-	-	-
實施例編號：	IV-4	IV-4	IV-1	IV-1	IV-1			
A-187	使用	-	-	-	-	-	使用	-
SZ-6032	-	使用	-	-	-	-	-	-
KF101	-	-	-	-	-	-	-	使用
煨燒黏土	使用	使用	-	-	使用	使用	使用	使用
滑石	-	-	使用	-	-	-	-	-
矽石	-	-	-	使用	-	-	-	-
鑽孔加工性	24	24	18	19	24	38	36	44
(裂化%)								
吸水性	0.68	0.67	0.74	0.73	0.77	0.88	0.80	0.92
(wt%)								
焊接耐熱性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
抗離子移動性 (hr)	>500	>500	>500	>500	>500	288	360	240

A-187: γ -縮水甘油氧代丙基三甲氧基矽烷SZ-6032: 氫氣化N- β -(N-乙基苯基氨基乙基)- γ -
氨基丙基三甲氧基矽烷

KF101: 環氧改良矽氧烷油

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (64)

該試驗以同於實施例 II - 1 至 9，參考實例 II - 1 至 5 和對照實例 II - 1 至 4 方法進行。除了抗離子移動性試驗外，使用之其它試樣銅箔完全蝕刻。

結果顯示實施例 IV - 1 至 12 不會降低焊接耐熱性，吸收少量水，難以藉由鑽孔而裂化，且抗離子移動性改善。

本發明樹脂組成物 (B) 可藉使用樹脂組成物 (B) 製造積層板改善其鑽孔加工性和包括抗離子移動性之絕緣特性，且不會使慣用積層板特性惡化。

工業應用

本發明提出之預浸物於基質材料和樹脂間之界面黏合性優良。本發明提出之樹脂清漆於無機填料分散性及無機填料和樹脂之界面黏合性優良。本發明提出之樹脂組成物之無機填料分散性以無機填料與樹脂和基質原料與樹脂間之界面黏合性亦優良。本發明提出之預浸物，樹脂清漆和樹脂組成物適於製造印刷電路板用之積層板和多層印刷電路板，且該印刷電路板和多層印刷電路板不只耐熱性和耐溼性良好，其鑽孔加工性和包括抗離子移動性之絕緣特性亦良好，因此適於充作不同電組件和電子裝置。

圖式簡要說明

第 1 圖為基質材料或以習知矽烷偶合劑處理之填料的表面之理想狀態示意圖。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(65)

B2
 修正
 補充
 8月1日

第2圖為以業界表面處理來處理基質材料或填料之表面真實狀態示意圖。

第3圖為以JP-A-1-204953之線型聚矽氧烷處理填料之表面狀態示意圖。

第4圖顯示使用本案預浸物製成之基質材料與樹脂層間的界面狀態。

圖號說明

- 1 : 基質材料或無機填料
- 2 : 化學性吸收矽氧烷鏈
- 3 : 物理性吸收矽氧烷鏈
- 4 : 樹脂層
- 5 : 環狀聚矽氧烷鏈
- 6 : 化學性吸收直鏈長聚矽氧烷鏈
- 7 : 物理性吸收長聚矽氧烷鏈

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

四、中文發明摘要(發明之名稱：

印刷電路板用之預浸物以及由彼製成之印刷電路板用之積層板

印刷電路板之製造中，基質原料或無機填料先以特殊結構之聚矽氧低聚物處理，特別是以三向交聯之聚矽氧烷低聚物處理之，改善該印刷電路板之鑽孔加工性和絕緣特性。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

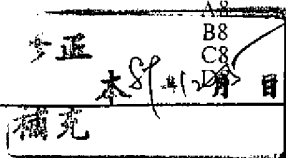
裝

英文發明摘要(發明之名稱：PREPREG FOR PRINTED WIRING BOARDS AND LAMINATES FOR PRINTED WIRING BOARDS PRODUCED THEREFROM)

訂

線

In the production of printed wiring boards, base materials or inorganic fillers are previously treated with silicone oligomers of specific structures, particularly with three-dimensionally crosslinked silicone oligomers, to improve the printed wiring boards in drilling processability and in insulating properties.



六、申請專利範圍

附件 A： 第 85107640 號專利申請案
中文申請專利範圍修正本

民國 89 年 12 月修正

1. 一種印刷電路板之預浸物，其係如下製得：以具有對羥基呈反應性之官能端基之矽氧烷低聚物處理玻璃基質材料，即，令該基質材料與該矽氧烷低聚物接觸，然後於 50 至 200 °C 乾燥 5 至 60 分鐘，然後以樹脂清漆浸漬該經處理之基質材料，並乾燥該浸漬之基質材料，

其中該樹脂清漆包括一種樹脂及為彼之熟化劑，該樹脂係由環氧樹脂，聚醯亞胺樹脂，三嗪樹脂，酚醛樹脂，三聚氰胺樹脂，聚酯樹脂及這些樹脂之改良樹脂組成之集合中選出，

其中該矽氧烷低聚物之聚合度為 70 或更小，為三度空間交聯且包括由三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中 R 係一有機基，且在矽氧烷低聚物中之有機基 R 彼此相同或不同，其中矽氧烷低聚物係在水存在下，藉使用酸觸媒使至少一種相對應於矽氧烷單位的氨基甲矽烷或烷氧基甲矽烷起縮合反應而予以合成者。

2. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括二官能矽氧烷單位 ($\text{R}_2\text{Si O}_{2/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$)，且聚合度為 6 至 70。

3. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

檢請委員明示，本案件正後是否變更原實質內容
經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

六、申請專利範圍

矽氧烷單位 ($\text{SiO}_{4/2}$)，且其聚合度為 6 至 70。

4. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括二官能矽氧烷單位 ($\text{R}_2\text{SiO}_{2/2}$) 和三官能矽氧烷單位 ($\text{SiO}_{3/2}$)，且聚合度為 6 至 70。

5. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括二官能矽氧烷單位 ($\text{R}_2\text{SiO}_{2/2}$) 三官能矽氧烷單位 ($\text{RSiO}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{SiO}_{4/2}$)，且其聚合度為 6 至 70。

6. 如申請專利範圍第 2 或 3 或 5 項之預浸物，其中四官能矽氧烷單位 ($\text{SiO}_{4/2}$) 至少佔矽氧烷低聚物之矽氧烷單位總量之至少 15 莫耳%。

7. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括四官能矽氧烷單位 ($\text{SiO}_{4/2}$)，且聚合度為 6 至 70。

8. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括三官能矽氧烷單位 ($\text{RSiO}_{3/2}$)，且聚合度為 6 至 70。

9. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物與矽烷偶合劑一齊使用以處理該基質材料。

10. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，以矽氧烷低聚物處理之後，再以矽烷偶合劑處理該基質材料。

11. 一種印刷電路板用之積層板，其係將二或多層如申請專利範圍第 1 項之預浸物黏合，將金屬箔置於該層置預浸物至少一側加熱加壓製成。

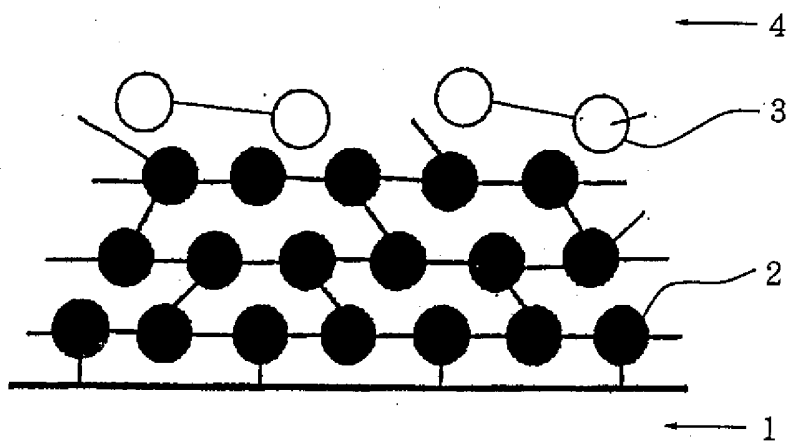
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

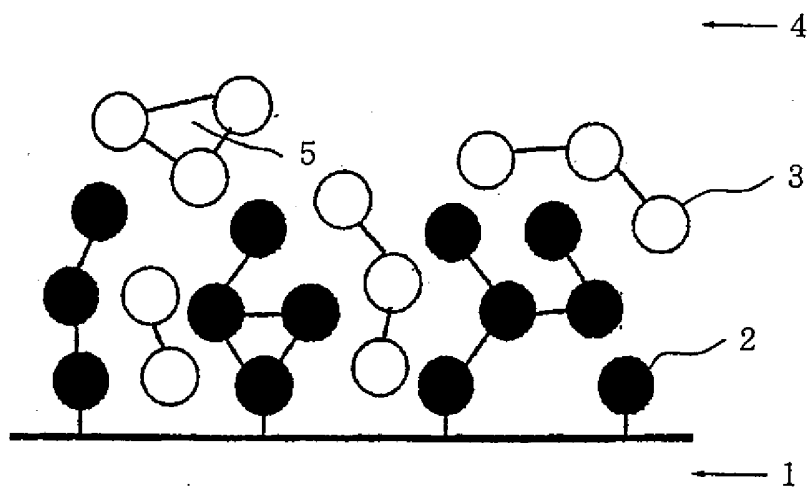
訂

線

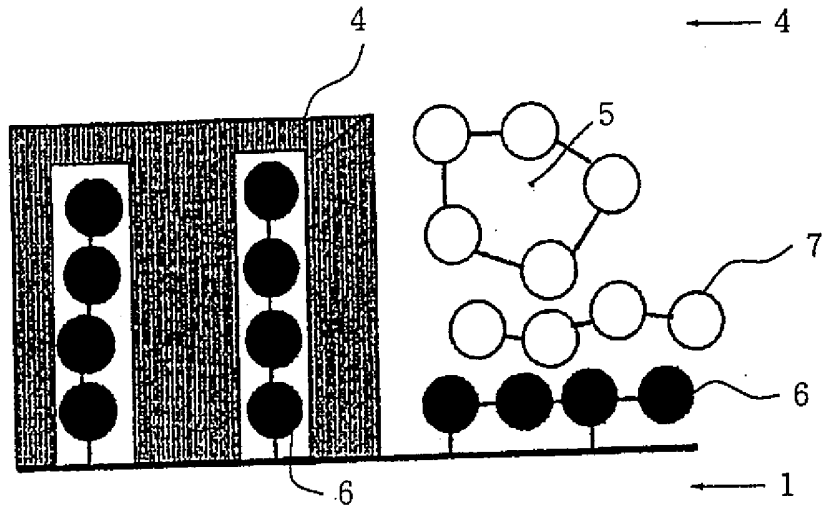
第 1 圖



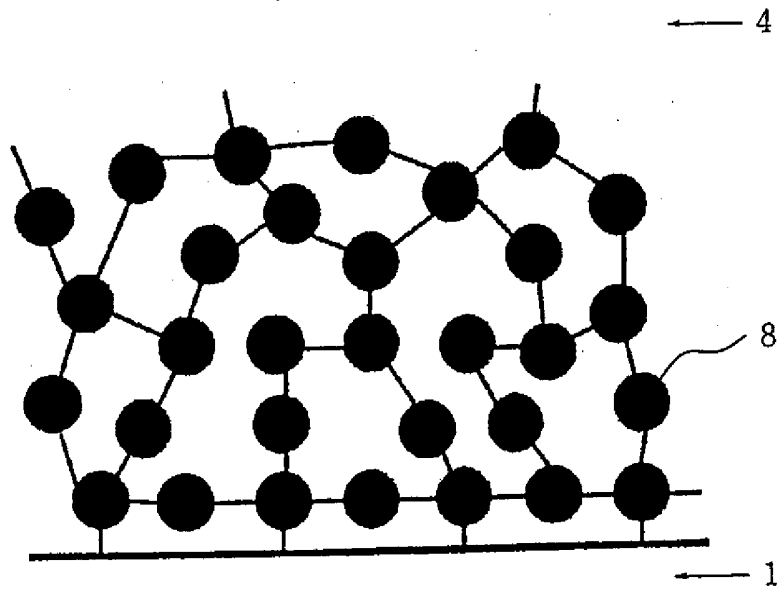
第 2 圖



第 3 圖



第 4 圖



申請日期	85 年 6 月 25	<div style="border: 1px solid black; padding: 5px; display: inline-block;"> 發 售 本 </div>
案 號	85107640	
類 別	08G 59/18, CoSL 6/00, CoSK 9/16, CoSK 1/03	

A4
C4

436496

88年9月2日 修正 補充

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 名稱	中 文	印刷電路板用之預浸物以及由彼製成之印刷電路板用之積層板
	英 文	Prepreg for printed wiring boards and laminates for printed wiring boards produced therefrom
二、發明 人	姓 名	(1) 高野希 (2) 佐瀨茂雄 (3) 福田富男
	國 籍	(1) 日本 (2) 日本 (3) 日本
	住、居所	(1) 日本國茨城縣結城市結城九二一番地一〇號 (2) 日本國茨城縣下館市飯島五七九番地一〇〇號 (3) 日本國茨城縣下館市樋口一三八八番地
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 日立化成工業股份有限公司 日立化成工業株式会社
	國 籍	(1) 日本
	住、居所 (事務所)	(1) 日本國東京都新宿區西新宿二丁目一番一號
	代 表 人 姓 名	(1) 丹野毅

裝 訂 線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明 (64)

該試驗以同於實施例 II - 1 至 9，參考實例 II - 1 至 5 和對照實例 II - 1 至 4 方法進行。除了抗離子移動性試驗外，使用之其它試樣銅箔完全蝕刻。

結果顯示實施例 IV - 1 至 12 不會降低焊接耐熱性，吸收少量水，難以藉由鑽孔而裂化，且抗離子移動性改善。

本發明樹脂組成物 (B) 可藉使用樹脂組成物 (B) 製造積層板改善其鑽孔加工性和包括抗離子移動性之絕緣特性，且不會使慣用積層板特性惡化。

工業應用

本發明提出之預浸物於基質材料和樹脂間之界面黏合性優良。本發明提出之樹脂清漆於無機填料分散性及無機填料和樹脂之界面黏合性優良。本發明提出之樹脂組成物之無機填料分散性以無機填料與樹脂和基質原料與樹脂間之界面黏合性亦優良。本發明提出之預浸物，樹脂清漆和樹脂組成物適於製造印刷電路板用之積層板和多層印刷電路板，且該印刷電路板和多層印刷電路板不只耐熱性和耐溼性良好，其鑽孔加工性和包括抗離子移動性之絕緣特性亦良好，因此適於充作不同電組件和電子裝置。

圖式簡要說明

第 1 圖為基質材料或以習知矽烷偶合劑處理之填料的表面之理想狀態示意圖。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(65)

B2
 修正
 補充
 8月1日

第 2 圖為以業界表面處理來處理基質材料或填料之表面真實狀態示意圖。

第 3 圖為以 JP - A - 1 - 204953 之線型聚矽氧烷處理填料之表面狀態示意圖。

第 4 圖顯示使用本案預浸物製成之基質材料與樹脂層間的界面狀態。

圖號說明

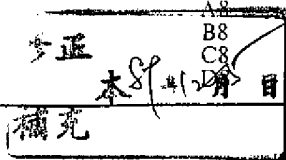
- 1 : 基質材料或無機填料
- 2 : 化學性吸收矽氧烷鏈
- 3 : 物理性吸收矽氧烷鏈
- 4 : 樹脂層
- 5 : 環狀聚矽氧烷鏈
- 6 : 化學性吸收直鏈長聚矽氧烷鏈
- 7 : 物理性吸收長聚矽氧烷鏈

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



六、申請專利範圍

附件 A： 第 85107640 號專利申請案
中文申請專利範圍修正本

民國 89 年 12 月修正

1. 一種印刷電路板之預浸物，其係如下製得：以具有對羥基呈反應性之官能端基之矽氧烷低聚物處理玻璃基質材料，即，令該基質材料與該矽氧烷低聚物接觸，然後於 50 至 200 °C 乾燥 5 至 60 分鐘，然後以樹脂清漆浸漬該經處理之基質材料，並乾燥該浸漬之基質材料，

其中該樹脂清漆包括一種樹脂及為彼之熟化劑，該樹脂係由環氧樹脂，聚醯亞胺樹脂，三嗪樹脂，酚醛樹脂，三聚氰胺樹脂，聚酯樹脂及這些樹脂之改良樹脂組成之集合中選出，

其中該矽氧烷低聚物之聚合度為 70 或更小，為三度空間交聯且包括由三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$) 選出之矽氧烷單位，其中 R 係一有機基，且在矽氧烷低聚物中之有機基 R 彼此相同或不同，其中矽氧烷低聚物係在水存在下，藉使用酸觸媒使至少一種相對應於矽氧烷單位的氨基甲矽烷或烷氧基甲矽烷起縮合反應而予以合成者。

2. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括二官能矽氧烷單位 ($\text{R}_2\text{Si O}_{2/2}$) 和四官能矽氧烷單位 ($\text{Si O}_{4/2}$)，且聚合度為 6 至 70。

3. 如申請專利範圍第 1 項之預浸物，其中該矽氧烷低聚物包括三官能矽氧烷單位 ($\text{R Si O}_{3/2}$) 和四官能

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

檢請委員明示，本案修正後是否變更實質內容，經濟部智慧財產局員工消費合作社印製