



(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 I861539 B

(45) 公告日：中華民國 113 (2024) 年 11 月 11 日

(21) 申請案號：111129445

(22) 申請日：中華民國 111 (2022) 年 08 月 05 日

(51) Int. Cl. : C08L61/14 (2006.01)

C08L83/04 (2006.01)

C08J5/18 (2006.01)

C08J5/24 (2006.01)

B32B15/08 (2006.01)

H05K1/03 (2006.01)

(30) 優先權：2021/08/05 日本

2021-128756

(71) 申請人：日商三菱瓦斯化學股份有限公司 (日本) MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC. (JP)

日本

(72) 發明人：山口翔平 YAMAGUCHI, SHOHEI (JP)；金子尚義 KANEKO, NAOYOSHI (JP)；
富澤克哉 TOMIZAWA, KATSUYA (JP)；高橋博史 TAKAHASHI, HIROSHI (JP)

(74) 代理人：周良吉；林郁君；周宜新

(56) 參考文獻：

TW 202010791A, A

JP 2019-1880A

審查人員：吳志明

申請專利範圍項數：17 項 圖式數：0 共 84 頁

(54) 名稱

硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板

(57) 摘要

一種硬化性組成物，含有烯基酚、環氧改性聚矽氧、該環氧改性聚矽氧以外之環氧化合物、及環狀碳二亞胺化合物。

A curable composition, containing an alkenylphenol, an epoxy modified silicone, an epoxy compound other than the epoxy modified silicone, and a cyclic carbodiimide compound.



公告本

I861539

【發明摘要】

【中文發明名稱】

硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板

【英文發明名稱】

CURABLE COMPOSITION, PREPREG, METAL FOIL CLAD LAMINATE, AND
PRINTED WIRING BOARD

【中文】

一種硬化性組成物，含有烯基酚、環氧改性聚矽氧、該環氧改性聚矽氧以外之環氧化合物、及環狀碳二亞胺化合物。

【英文】

A curable composition, containing an alkenylphenol, an epoxy modified silicone, an epoxy compound other than the epoxy modified silicone, and a cyclic carbodiimide compound.

【指定代表圖】 無

【代表圖之符號簡單說明】 無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板

【英文發明名稱】

CURABLE COMPOSITION, PREPREG, METAL FOIL CLAD LAMINATE,
AND PRINTED WIRING BOARD

【技術領域】

【0001】

本發明係關於硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板。

【先前技術】

【0002】

近年來，伴隨著廣泛使用於電子設備或通訊器材、個人電腦等之半導體封裝體之高功能化及小型化之進展，半導體封裝體用之各零件的高積體化或高密度安裝化於近年來日益加速。伴隨於此，對於半導體封裝體用之印刷配線板要求的各種特性變得越來越嚴格。就對於如此之印刷配線板要求之特性而言，可舉例如低熱膨脹率、耐藥品性、剝離強度等。

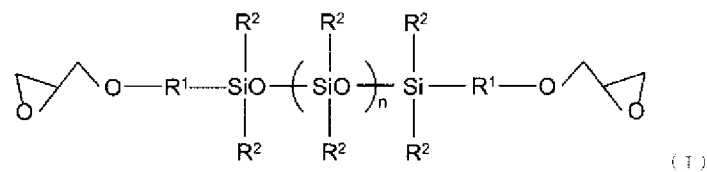
【0003】

專利文獻1中揭示含有特定之馬來醯亞胺化合物、於分子結構中具有環氧基之聚矽氧化合物、及具有酚性羥基之化合物的熱硬化性樹脂組成物係耐熱性及低熱膨脹性優良，適合使用於覆金屬箔疊層板及多層印刷配線板。

【0004】

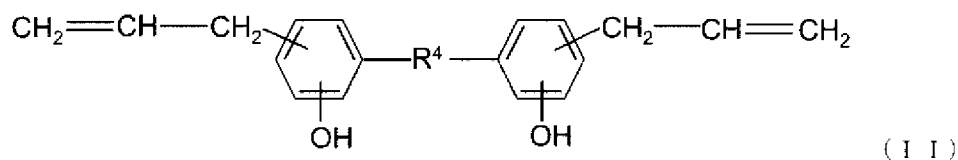
專利文獻2中揭示一種半導體封裝用樹脂之製造方法，使聚馬來醯亞胺、及下式(I)表示之二環氧丙基聚矽氧烷、及下式(II)表示之二烯丙基雙酚類之加成聚合物、及下式(III)表示之烯丙基化酚醛樹脂以預定之比例及條件進行反應而獲得半導體封裝用樹脂。根據該文獻，揭示藉由上述製造方法所獲得之半導體封裝用樹脂，係聚馬來醯亞胺、與上述之加成聚合物的相容性良好，且使用了半導體封裝用樹脂之組成物的硬化物特性(例如高玻璃轉移溫度、耐濕性及熱時之強度)優良，作為半導體封裝用樹脂組成物的可靠性高。於該文獻中，揭示下式(III)中之b成分係在與聚馬來醯亞胺之樹脂生成反應中與馬來醯亞胺基反應，改善聚馬來醯亞胺與聚矽氧烷之相容性的重要成分。

[化1]



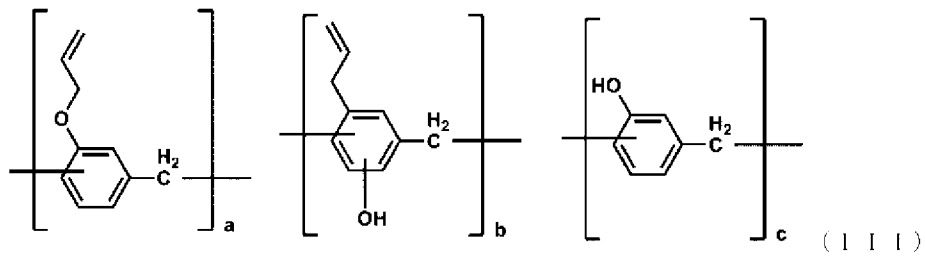
(式中，R¹表示伸烷基或伸苯基，R²各自獨立地表示烷基或苯基，n表示1~100之整數。)

[化2]



(式中，R⁴表示醚鍵、亞甲基、亞丙基、或直接鍵結(單鍵)。)

[化3]



(上式中，a、b、及c係各自獨立地表示各組成之百分率，為 $0 < a、b、c < 100$ 且 $a+b+c=100$ 。)

[先行技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本特開2012-149154號公報

[專利文獻2]日本特開平4-4213號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】

如專利文獻1，含有分子結構中具有環氧基之聚矽氧化合物、及馬來醯亞胺化合物般之熱硬化性樹脂的樹脂組成物係低熱膨脹性優良。然而，本案發明者們發現上述樹脂組成物起因於上述聚矽氧化合物與熱硬化性樹脂之相容性不夠充分，而有成形性之問題。另外，本案發明者們發現上述樹脂組成物係耐藥品性及製成覆金屬箔疊層板時之金屬箔剝離強度(例如銅箔剝離強度)不夠充分。

【0007】

另一方面，專利文獻2中記載之樹脂組成物係使用於半導體封裝用，並沒有針對作為印刷配線板之特性所要求的低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性進行探討。

【0008】

本發明有鑑於上述問題點而產生者，目的係提供具有優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性之硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔層板及印刷配線板。

[解決課題之手段]

【0009】

本案發明者們為了解決上述課題深入地研究。其結果，發現若為含有烯基酚、環氧改性聚矽氧、該環氧改性聚矽氧以外之環氧化合物、及環狀碳二亞胺化合物的硬化性組成物，或者為含有包含來自烯基酚之構成單元、來自環氧改性聚矽氧之構成單元、及來自該環氧改性聚矽氧以外之環氧化合物之構成單元的聚合物、以及環狀碳二亞胺化合物的硬化性組成物，能解決上述課題而完成了本發明。

【0010】

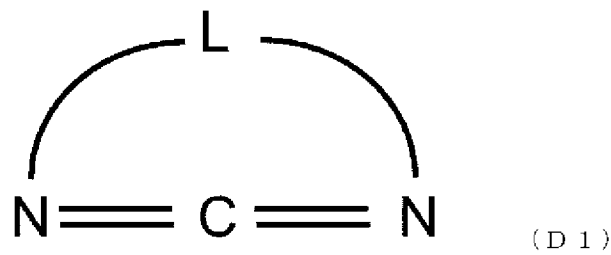
亦即，本發明如同下述。

[1]一種硬化性組成物，含有烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)、及環狀碳二亞胺化合物(D)。

[2]如[1]之硬化性組成物，其中，該環狀碳二亞胺化合物(D)具有下述式(D1)表示之環狀結構，

形成該環狀結構之原子數為8~50，

[化4]



(式中，L係作為脂肪族基、脂環族基、芳香族基或此等組合而成之基的2~4價鍵結基，該鍵結基亦可包含雜原子及/或取代基。)

[3]如[1]或[2]之硬化性組成物，其中，該環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，相對於樹脂固體成分100質量份，為2.0~15質量份。

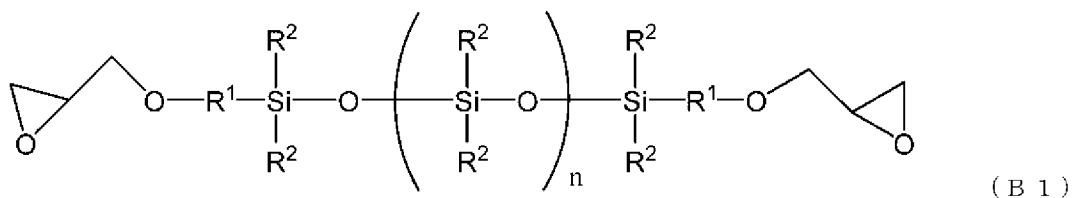
[4]如[1]~[3]中任一項之硬化性組成物，其中，該烯基酚(A)之每1分子之平均酚基數目係1以上且小於3，該環氧改性聚矽氧(B)之每1分子之平均環氧基數目係1以上且小於3，該環氧化合物(C)之每1分子之平均環氧基數目係1以上且小於3。

[5]如[1]~[4]中任一項之硬化性組成物，其中，該烯基酚(A)包含二烯丙基雙酚及/或二丙烯基雙酚。

[6]如[1]~[5]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧改性聚矽氧(B)包含具有140~250g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧。

[7]如[1]~[6]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧改性聚矽氧(B)含有下式(B1)表示之環氧改性聚矽氧；

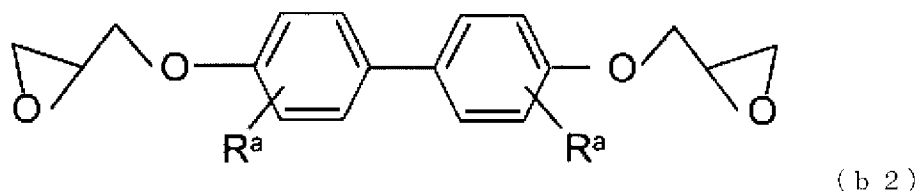
[化5]



(式中，R¹係各自獨立地表示單鍵、伸烷基、伸芳基或伸芳烷基，R²係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或苯基，n表示0~100之整數。)

[8]如[1]~[7]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧化合物(C)包含下式(b2)表示之化合物；

[化6]



(式(b2)中， R^a 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子。)

[9]一種硬化性組成物，含有聚合物(E)及環狀碳二亞胺化合物(D)，

該聚合物(E)含有來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、及來自該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)之構成單元。

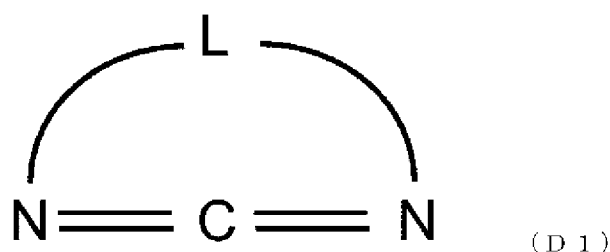
[10]如[9]之硬化性組成物，其中，該聚合物(E)之重量平均分子量為 $3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^4$ 。

[11]如[9]或[10]之硬化性組成物，其中，該聚合物(E)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，為5~50質量%。

[12]如[9]~[11]中任一項之硬化性組成物，其中，該環狀碳二亞胺化合物(D)具有下式(D1)表示之環狀結構，

形成該環狀結構之原子數為8~50，

[化7]



(式中，L係作為脂肪族基、脂環族基、芳香族基或此等組合而成之基的2~4價鍵結基，該鍵結基亦可包含雜原子及/或取代基。)

[13]如[9]~[12]中任一項之硬化性組成物，其中，該環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，相對於樹脂固體成分100質量份，為2.0~15質量份。

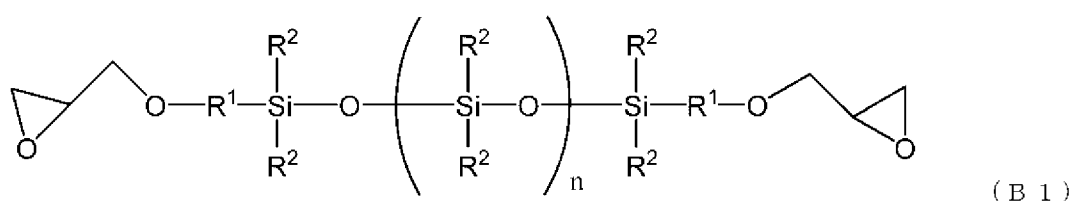
[14]如[9]~[13]中任一項之硬化性組成物，其中，該烯基酚(A)之每1分子之平均酚基數目為1以上且小於3，該環氧改性聚矽氧(B)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3，該環氧化合物(C)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3。

[15]如[9]~[14]中任一項之硬化性組成物，其中，該烯基酚(A)包含二烯丙基雙酚及/或二丙烯基雙酚。

[16]如[9]~[15]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧改性聚矽氧(B)包含具有140~250g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧。

[17]如[9]~[16]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧改性聚矽氧(B)包含下式(B1)表示之環氧改性聚矽氧；

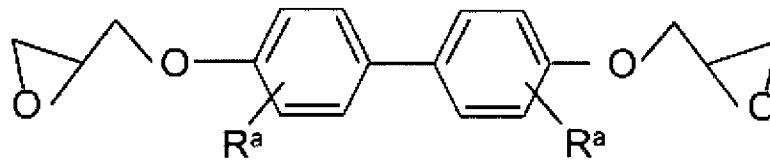
[化8]



(式中，R¹係各自獨立地表示單鍵、伸烷基、伸芳基或伸芳烷基，R²係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或苯基，n表示0~100之整數。)

[18]如[9]~[17]中任一項之硬化性組成物，其中，該環氧化合物(C)包含下式(b2)表示之化合物；

[化9]



(b 2)

(式(b2)中，R^a係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子。)

[19]如[9]~[18]中任一項之硬化性組成物，更含有選自於由烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)及該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)構成之群組中之1種以上。

[20]如[19]之硬化性組成物，其中，該環氧化合物(C)包含萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂及/或仲萘基醚型環氧樹脂。

[21]如[1]~[20]中任一項之硬化性組成物，更含有選自於由馬來醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、該烯基酚(A)以外之酚化合物(F)及經烯基取代之納迪克醯亞胺(nadiimide)化合物構成之群組中之1種以上之化合物(H)。

[22]如[1]~[20]中任一項之硬化性組成物，更含有無機填充材，該無機填充材包含選自於由二氧化矽類、軟水鋁石(Boehmite)及氧化鋁構成之群組中之1種以上。

[23]一種預浸體，包含：

基材、及

含浸或塗布至該基材之如[1]~[22]中任一項之硬化性組成物。

[24]一種覆金屬箔疊層板，包含：

含有如[23]之預浸體的疊層體、及

配置於該疊層體之單面或兩面之金屬箔。

[25]一種印刷配線板，包含：

含有如[23]之預浸體的絕緣層、及

形成於該絕緣層之表面的導體層。

[發明之效果]

【0011】

根據本發明，可提供具有優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性之硬化性組成物、預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板。

【實施方式】

【0012】

以下，針對本發明用以實施之形態(以下稱為「本實施形態」。)詳細地進行說明，但本發明不限定為此等，在不超出其要旨之範圍內可有各種變形。

【0013】

本說明書中之「樹脂固體成分」，在段落沒有特別載明的情況下，係指本實施形態之硬化性組成物中，排除了溶劑及填充材後的成分，樹脂固體成分100質量份係指硬化性組成物中排除溶劑及填充材後之成分的合計為100質量份。此外，樹脂固體成分100質量%係指硬化性組成物中排除溶劑及填充材後之成分之合計為100質量%。

【0014】

本說明書中之「相容性」係指下述情事。在詳細於後述之第1實施形態之組成物中，「優良之相容性」係指在含有烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)、及環狀碳二亞胺化合物(D)之混合物(例如清漆)中，不產生液相分離。此外，在詳細於後述之第2實施形態之組成物中，「優良之相容性」係指含有聚合物(E)及環狀碳二亞胺化合物(D)之混合物(例如清漆)中，不產生液相分離。本

實施形態之硬化性組成物，起因於相容性優良，而在成形過程中抑制液相分離，可獲得外觀優良之成形體，且有著獲得之成形體之物性之各向同性亦優良的傾向。此外，本說明書中，稱呼「本實施形態之硬化性組成物」時，在該段落沒有特別指明的情況下，為包含「第1實施形態之硬化性組成物」及「第2實施形態之硬化性組成物」兩者。

【0015】

<第1實施形態>

[第1實施形態之硬化性組成物]

第1實施形態之硬化性組成物含有烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)(以下也簡稱為「環氧化合物(C)」)、及環狀碳二亞胺化合物(D)。含有此等成分之第1實施形態之硬化性組成物係具有優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性。改善各特性之原因據認為如下述，但原因不限定為下述者。環狀碳二亞胺化合物(D)具有高熔點，故例如在製作預浸體時之溫度(約140°C)中，與烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)等各熱硬化性樹脂的反應性低，藉此抑制硬化性組成物之流動特性的惡化。而，在更高溫度之加壓成形時中，環狀碳二亞胺化合物(D)會熔融，烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)等熱硬化性樹脂與環狀碳二亞胺化合物(D)進行反應，藉此形成交聯密度更高之結構體，故改善低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性。

【0016】

[烯基酚(A)]

烯基酚(A)只要是具有1個以上之烯基直接鍵結於酚性芳香環之結構的化合物便沒有特別之限定。本實施形態之硬化性組成物，藉由含有烯基酚(A)，能展現優良之相容性，藉此改善耐熱性及低熱膨脹性之平衡。

【0017】

作為烯基，並沒有特別之限定，可舉例如乙烯基、烯丙基、丙烯基、丁烯基、己烯基等碳數2~30之烯基。其中，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，烯基宜為烯丙基及/或丙烯基，更宜為烯丙基。直接鍵結於1個酚性芳香環之烯基之數目係沒有特別之限定，例如為1~4。考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，直接鍵結於1個酚性芳香環之烯基之數目宜為1~2，更宜為1。此外，烯基之對於酚性芳香環之鍵結位置亦沒有特別之限定，宜為鄰位(2、6位)。

【0018】

酚性芳香環係1個以上之羥基直接鍵結於芳香環者，可列舉苯酚環、萘酚環。直接鍵結於1個酚性芳香環之羥基之數目係沒有特別之限定，例如為1~2，宜為1。

【0019】

酚性芳香環亦可具有烯基以外之取代基。就如此之取代基而言，可舉例如碳數1~10之直鏈狀烷基、碳數3~10之分支狀烷基、碳數3~10之環狀烷基、碳數1~10之直鏈狀烷氧基、碳數3~10之分支狀烷氧基、碳數3~10之環狀烷氧基、及鹵素原子。酚性芳香環具有烯基以外之取代基的情況，直接鍵結於1個酚性芳香環之該取代基之數目係沒有特別之限定，例如為1~2。此外，該取代基之對於酚性芳香環之鍵結位置亦沒有特別限定。

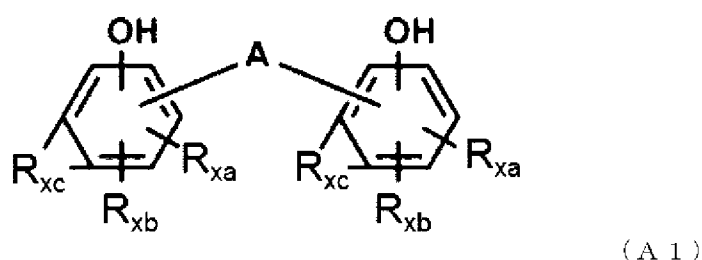
【0020】

烯基酚(A)可具有1個或複數個之1個以上之烯基直接鍵結於酚性芳香環之結構。考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，烯基酚(A)宜具有1個或2個之1個以上之烯基直接鍵結於酚性芳香環之結構，宜具有2個。

【0021】

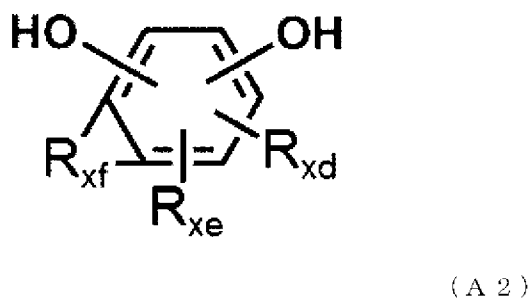
烯基酚(A)例如可為下式(A1)或下式(A2)表示之化合物。

[化10]



(式中，Rxa係各自獨立地表示碳數2~8之烯基，Rxb係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子，Rxc係各自獨立地表示碳數4~12之芳香環，Rxc亦可與苯環形成縮合結構，Rxc可存在亦可不存在，A係碳數1~6之伸烷基、碳數7~16之伸芳烷基、碳數6~10之伸芳基、亞萸基、磺醯基、氧原子、硫原子或直接鍵結(單鍵)，不存在Rxc之情況，於1個苯環中亦可具有2個以上之Rxa及/或Rxb之基。)

[化11]



(式中，Rxd係各自獨立地表示碳數2~8之烯基，Rxe係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子，Rxf表示碳數4~12之芳香環，Rxf亦可與苯環形成縮合結構，Rxf可存在亦可不存在，Rxf不存在之情況，於1個苯環亦可具有2個以上之Rxd及/或Rxe之基。)

【0022】

式(A1)及式(A2)中，作為Rxa及Rxd表示之碳數2~8之烯基，並沒有特別之限制，可舉例如乙烯基、烯丙基、丙烯基、丁烯基、己烯基等。

【0023】

就式(A1)及式(A2)中，Rxc及Rxf表示之基與苯環形成縮合結構之情況而言，可舉例如含有萘酚環作為酚性芳香環之化合物。此外，就式(A1)及式(A2)中，不存在Rxc及Rxf表示之基之情況而言，可舉例如含有苯酚環作為酚性芳香環之化合物。

【0024】

就式(A1)及式(A2)中，作為Rxb及Rxe表示之碳數1~10之烷基而言，並沒有特別之限制，可舉例如甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基等直鏈狀烷基、異丙基、異丁基、第三丁基等分支狀烷基。

【0025】

式(A1)中，就作為A表示之碳數1~6之伸烷基而言，並沒有特別之限制，可舉例如亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基。就作為A表示之碳數7~16之伸芳烷基而言，沒有特別之限制，可舉例如式： $-\text{CH}_2-\text{Ar}-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{Ar}-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ 、或式： $-\text{CH}_2-\text{Ar}-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ (式中，Ar表示伸苯基、伸萘基、或伸聯苯基。)表示之基，就作為A表示之碳數6~10之伸芳基而言，沒有特別之限制，可舉例如伸苯基環。

【0026】

式(A2)表示之化合物，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，宜為Rxf係苯環(含有二羥基萘骨架之化合物)。

【0027】

烯基酚(A)，考慮更進一步改善相容性之觀點，宜為於雙酚類之2個酚性芳香環各別鍵結1個烯基之烯基雙酚。考慮同樣的觀點，烯基雙酚宜為於雙酚類之2個酚性芳香環各別鍵結1個烯丙基之二烯丙基雙酚、及/或於雙酚類之2個酚性芳香環各別鍵結1個丙烯基之二丙烯基雙酚。

【0028】

就二烯丙基雙酚而言，沒有特別之限制，可舉例如o,o'-二烯丙基雙酚A(大和化成工業(股)公司製品之「DABPA」)、o,o'-二烯丙基雙酚F、o,o'-二烯丙基雙酚S、o,o'-二烯丙基雙酚第。就二丙烯基雙酚而言，沒有特別之限制，可舉例如o,o'-二丙烯基雙酚A(群榮化學工業(股)公司之「PBA01」)、o,o'-二丙烯基雙酚F、o,o'-二丙烯基雙酚S、o,o'-二丙烯基雙酚第。

【0029】

烯基酚(A)之每1分子之平均酚基數，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，宜為1以上且小於3，更宜為1.5以上2.5以下。平均酚基數係藉由下式算出。

[數1]

$$\text{平均酚基數} = \sum_{i=1}^n (A_i \times X_i)$$

【0030】

式中， A_i 表示分子中具有*i*個酚基之烯基酚的酚基數， X_i 表示分子中具有*i*個酚基之烯基酚佔烯基酚全體的比例， $X_1+X_2+\dots+X_n=1$ 。

【0031】

[環氧改性聚矽氧(B)]

環氧改性聚矽氧(B)只要是藉由含環氧基之基改性而得之聚矽氧化合物或樹脂便沒有特別之限定。本實施形態之硬化性組成物藉由含有環氧改性聚矽氧(B)，為低熱膨脹性及耐藥品性優良。

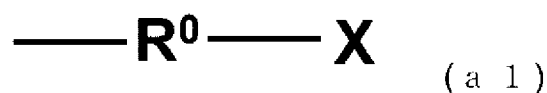
【0032】

聚矽氧化合物或樹脂只要是具有矽氧烷鍵重複所形成之聚矽氧烷骨架的化合物便沒有特別之限定。聚矽氧烷骨架可為直鏈狀之骨架，亦可為環狀之骨架，亦可為網目狀之骨架。其中，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，宜為直鏈狀之骨架。

【0033】

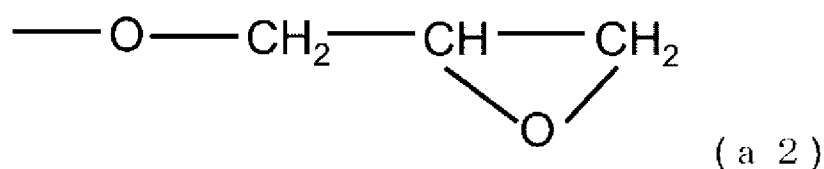
就含環氧基之基而言，沒有特別之限制，可舉例如下式(a1)表示之基。

[化12]

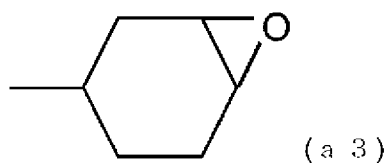


(式中，R⁰表示伸烷基(例如亞甲基、伸乙基、伸丙基等碳數1~5之伸烷基)，X表示下式(a2)表示之1價基或下式(a3)表示之1價基。)

[化13]



[化14]



【0034】

環氧改性聚矽氧(B)宜包含具有140~250g/mol之環氧當量之環氧改性聚矽氧。環氧改性聚矽氧(B)藉由包含具有上述範圍內之環氧當量的環氧改性聚矽氧，因為具有更優良之相容性，有能平衡良好地更改善低熱膨脹性及耐藥品性的傾向。上述環氧當量，考慮相同的觀點，宜為145~245g/mol，更宜為150~240g/mol。

【0035】

環氧改性聚矽氧(B)，考慮與熱硬化性樹脂之相容性更優良、能平衡良好地更進一步地改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，宜含有2種以上之環氧改性聚矽氧。該情況，2種以上之環氧改性聚矽氧宜各別具有不同之環氧當量，更宜為含有具有50~350g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧(以下也稱為「低當量環氧改性聚矽氧(B1')」))、及具有400~4000g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧(以下也稱為「高當量環氧改性聚矽氧(B2')」))，進一步宜為含有具有140~250g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧(低當量環氧改性聚矽氧(B1''))、及具有450~3000g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧(高當量環氧改性聚矽氧(B2''))。

【0036】

環氧改性聚矽氧(B)包含2種以上之環氧改性聚矽氧時，環氧改性聚矽氧(B)之平均環氧當量宜為140~3000g/mol，更宜為250~2000g/mol，進一步宜為300~1000g/mol。平均環氧當量係藉由下式算出。

[數2]

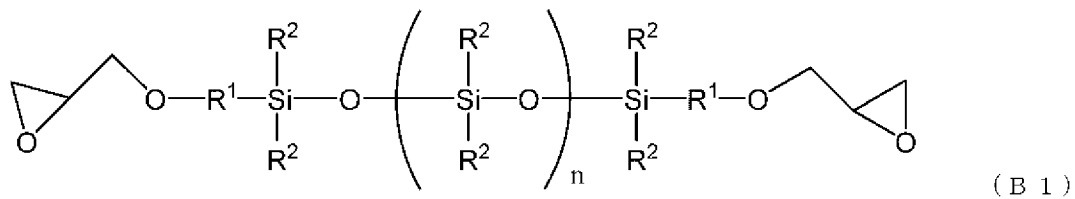
$$\text{平均環氧當量} = \sum_{i=1}^n (E_i \times W_i)$$

(式中， E_i 表示2種以上之環氧改性聚矽氧中之1種環氧改性聚矽氧之環氧當量， W_i 表示環氧改性聚矽氧(B)中之上述環氧改性聚矽氧之比例，為 $W_1+W_2+\dots+W_n=1$)

【0037】

環氧改性聚矽氧(B)，考慮具有更優良之相容性，且能平衡良好地更改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，宜包含下式(B1)表示之環氧改性聚矽氧。

[化15]



(式中， R^1 係各自獨立地表示單鍵、伸烷基、伸芳基或伸芳烷基， R^2 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或苯基， n 表示0~100之整數。)

【0038】

式(B1)中， R^1 表示之伸烷基，可為直鏈狀、分支狀或環狀之任一者。伸烷基之碳數宜為1~12，更宜為1~4。就伸烷基而言，可舉例如亞甲基、伸乙基或伸丙基。此等之中， R^1 宜為伸丙基。

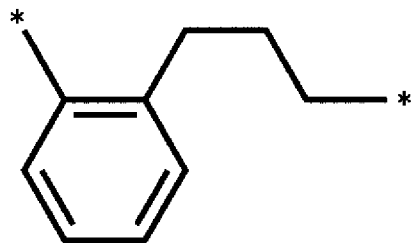
【0039】

式(B1)中， R^1 表示之伸芳基亦可具有取代基。就伸芳基之碳數而言，宜為6~40，更宜為6~20。就伸芳基而言，可舉例如伸苯基、環己基伸苯基、經基伸苯基、氰基伸苯基、硝基伸苯基、伸萘基、伸聯苯基、伸蒽基、伸芘基、及伸萘基等。此等基亦可包含醚鍵、酮鍵、或酯鍵。

【0040】

式(B1)中， R^1 表示之伸芳烷基之碳數宜為7~30，更宜為7~13。就伸芳烷基而言，沒有特別之限制，可舉例如下式(X-I)表示之基。

[化16]



式 (X - I)

(式(X-I)中，*表示原子鍵。)

【0041】

式(B1)中， R^1 表示之基亦可更具有取代基，就取代基而言，可舉例如碳數1~10之直鏈狀烷基、碳數3~10之分支狀烷基、碳數3~10之環狀烷基、碳數1~10之直鏈狀烷氧基、碳數3~10之分支狀烷氧基、碳數3~10之環狀烷氧基。此等之中， R^1 尤其宜為丙烯基。

【0042】

式(B1)中， R^2 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或苯基。上述烷基及苯基亦可具有取代基。碳數1~10之烷基可為直鏈狀、分支狀或環狀之任一者。就烷基而言，沒有特別之限制，可舉例如甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、異丙基、異丁基、環己基。此等之中， R^2 宜為甲基或苯基。

【0043】

式(B1)中， n 表示0以上之整數，例如為1~100。考慮具有更優良之相容性，且能平衡良好地更改善低熱膨脹性及耐藥品性的觀點， n 宜為50以下，更宜為30以下，進一步宜為20以下。

【0044】

環氧改性聚矽氧(B)，考慮與熱硬化性樹脂之相容性更優良，平衡良好地更進一步改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，宜含有2種以上之式(B1)表示之環氧改性聚矽氧。該情況，含有2種以上之環氧改性聚矽氧宜各別具有不同的n，更宜為含有在式(B1)中之n為1~2之環氧改性聚矽氧、及式(B1)中之n為5~20之環氧改性聚矽氧。

【0045】

環氧改性聚矽氧(B)之每1分子之平均環氧基數，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，宜為1以上且小於3，更宜為1.5以上2.5以下。平均環氧基數係藉由下式算出。

[數3]

$$\text{平均環氧基數} = \sum_{i=1}^n (B_i \times Y_i)$$

(式中， B_i 表示分子中具有i個環氧基之環氧改性聚矽氧之環氧基數， Y_i 表示分子中具有i個環氧基之環氧改性聚矽氧之佔環氧改性聚矽氧全體的比例， $Y_1+Y_2+\dots+Y_n=1$)

【0046】

環氧改性聚矽氧(B)之含量，考慮能展現更優良之低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，相對於環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)之合計100質量%，宜為5~95質量%，更宜為10~90質量%，進一步宜為40~85質量%，更進一步宜為50~80質量%。

【0047】

作為環氧改性聚矽氧(B)，可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製造品。就市售品而言，可舉例如信越化學工業(股)製品之「X-22-163」、「KF-105」。

【0048】**[環氧化合物(C)]**

環氧化合物(C)係環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物，更具體而言，係不具有聚矽氧烷骨架之環氧化合物。本實施形態之硬化性組成物藉由含有環氧化合物(C)，能展現更優良之相容性、耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性。

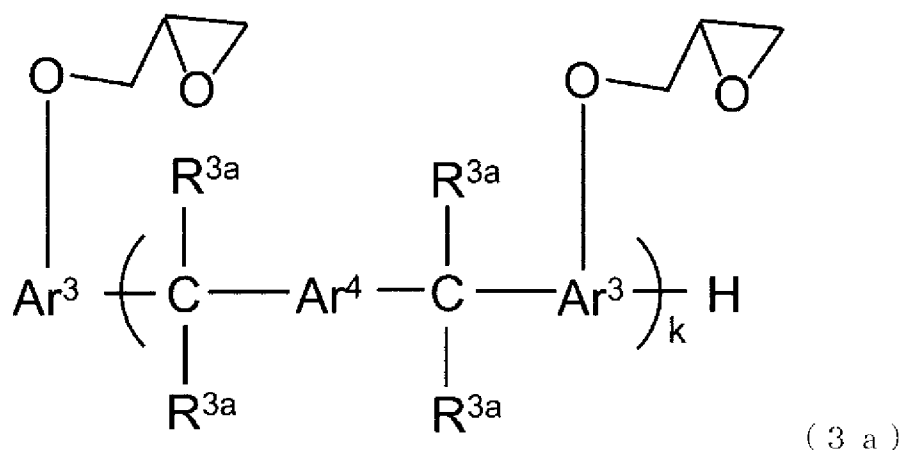
【0049】

作為環氧化合物(C)，只要是環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物便沒有特別之限定。就本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)而言，典型來說，可使用1分子中具有2個環氧基之2官能環氧化合物、1分子中具有3個以上之環氧基之多官能環氧化合物。環氧化合物(C)考慮能展現更優良之相容性、耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，宜含有2官能環氧化合物及/或多官能環氧化合物。

【0050】

就本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)而言，沒有特別之限定，可使用下式(3a)表示之化合物。

[化17]



(式(3a)中，Ar³係各自獨立地表示苯環或萘環，Ar⁴表示苯環、萘環或聯苯環，R^{3a}係各自獨立地表示氫原子或甲基，k表示1~50之整數，

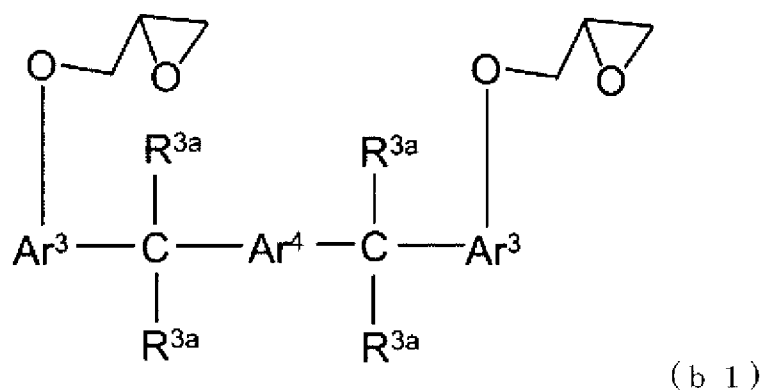
此處，Ar³中之苯環或萘環亦可更具有有一個或複數個取代基，該取代基亦可為圖中未表示之環氧丙基氧基，亦可為其他取代基，例如碳數1~5之烷基、苯基等，

Ar⁴中之苯環、萘環或聯苯環亦可更具有有一個或複數個取代基，該取代基可為環氧丙基氧基，亦可為其他取代基，例如碳數1~5之烷基、苯基等。)

【0051】

上式(3a)表示之化合物中，作為2官能環氧化合物，可舉例如下式(b1)表示之化合物。

[化18]



(式(b1)中，Ar³係各自獨立地表示苯環或萘環，Ar⁴表示苯環、萘環或聯苯環，R^{3a}係各自獨立地表示氫原子或甲基，

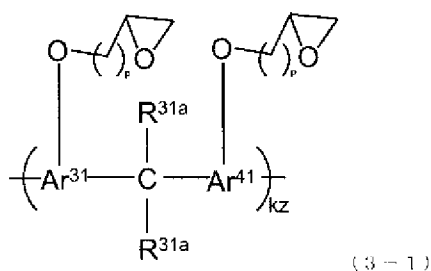
此處， Ar^3 中之苯環或萘環亦可更具有有一個或複數個取代基，該取代基例如可為碳數1~5之烷基、苯基等環氧丙基氧基以外之取代基，

Ar^4 中之苯環、萘環或聯苯環亦可具有有一個或複數個取代基，該取代基例如可為碳數1~5之烷基、苯基等環氧丙基氧基以外之取代基。)

【0052】

式(3a)表示之化合物宜為式(3a)中之 Ar^4 至少經環氧丙基氧基取代之酚類酚醛清漆型環氧樹脂。就酚類酚醛清漆型環氧樹脂而言，沒有特別之限定，可舉例如具有下式(3-1)表示之結構的化合物(具有萘骨架之含萘骨架之多官能環氧樹脂)、萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂。

[化19]

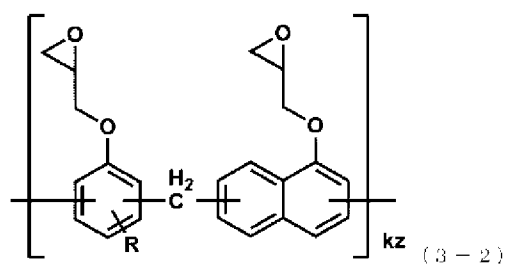


(式中， Ar^{31} 係各自獨立地表示苯環或萘環， Ar^{41} 係各自獨立地表示苯環、萘環或聯苯環， R^{31a} 係各自獨立地表示氫原子或甲基， p 表示0~2之整數，宜為0或1， kz 表示1~50之整數，各環亦可具有環氧丙基氧基以外之取代基(例如碳數1~5之烷基、碳數1~5之烷氧基或苯基)， Ar^{31} 及 Ar^{41} 之至少一者表示萘環。)

【0053】

就具有式(3-1)表示之結構之化合物而言，可列舉具有式(3-2)表示之結構的化合物。

[化20]

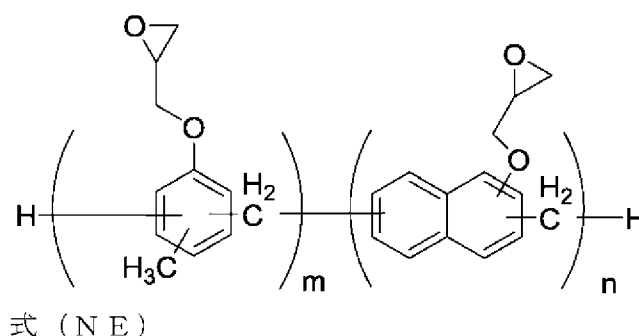


(式中，R表示甲基，kz係與上式(3-1)中之kz同義。)

【0054】

就萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂而言，沒有特別之限定，例如宜為下式(NE)表示之甲酚/萘酚酚醛清漆型環氧樹脂。此外，下式(NE)表示之化合物係甲酚酚醛清漆環氧之構成單元與萘酚酚醛清漆環氧之構成單元的無規共聚物，末端可為甲酚環氧及萘酚環氧之任一者。

[化21]



【0055】

上述式(NE)中之m及n各別表示1以上之整數。m及n之上限及其比並沒有特別之限定，考慮低熱膨脹性之觀點，作為m：n(此處，m+n=100)，宜為30~50：70~50，更宜為45~55：55~45。

【0056】

作為萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂，可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製品。就市售品而言，可舉例如日本化藥(股)公司製品之「NC-7000」、

「NC-7300」、「NC-7300L」、DIC(股)公司製品之「HP-9540」、「HP-9500」等，尤其宜為「HP-9540」。

【0057】

式(3a)表示之化合物亦可為不相當於上述酚類酚醛清漆型環氧樹脂之化合物(以下也稱為「芳烷基型環氧樹脂」)。

就芳烷基型環氧樹脂而言，宜為式(3a)中之 Ar^3 為萘環， Ar^4 為苯環之化合物(也稱為「萘酚芳烷基型環氧樹脂」)、及式(3a)中之 Ar^3 為苯環， Ar^4 為聯苯環之化合物(也稱為「聯苯芳烷基型環氧樹脂」)，更宜為聯苯芳烷基型環氧樹脂。

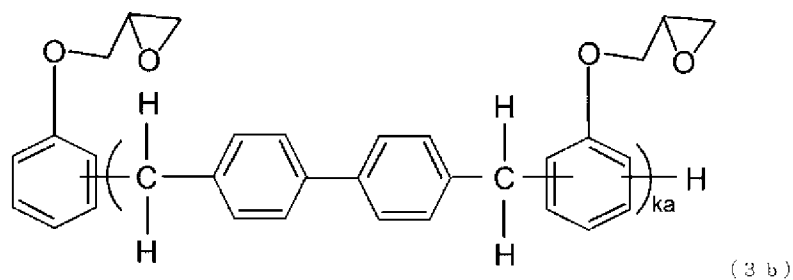
【0058】

就萘酚芳烷基型環氧樹脂，可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製品。就市售品而言，可舉例如DIC(股)公司製品之「HP-5000」、「HP-9900」、NIPPON STEEL Chemical & Material Co., Ltd.製品之「ESN-375」、「ESN-475」等。

【0059】

聯苯芳烷基型環氧樹脂宜為下式(3b)表示之化合物。

[化22]



(式中， ka 表示1以上之整數，宜為1~20，更宜為1~6)

【0060】

上式(3b)表示之化合物中，作為2官能環氧化合物，可舉例如式(3b)中之ka為1的化合物。

【0061】

作為聯苯芳烷基型環氧樹脂，可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製品。就市售品而言，可舉例如日本化藥(股)公司製品之「NC-3000」、「NC-3000L」、「NC-3000FH」等。

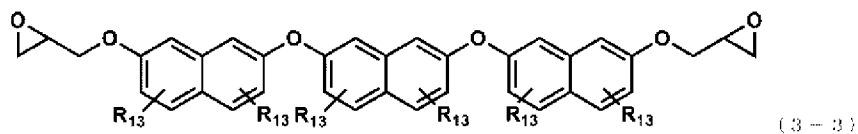
【0062】

此外，作為本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)，宜使用萘型環氧樹脂(排除相當於式(3a)表示之化合物。)。就萘型環氧樹脂而言，考慮更改善耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，宜為仲萘基醚型環氧樹脂。

【0063】

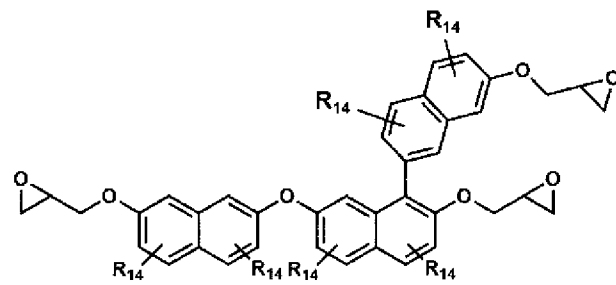
仲萘基醚型環氧樹脂，考慮更改善耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，宜為下式(3-3)表示之2官能環氧化合物或下式(3-4)表示之多官能環氧化合物、或者它們的混合物。

[化23]



(式中， R_{13} 係各自獨立地表示氫原子、碳數1~3之烷基(例如甲基或乙基)、或碳數2~3之烯基(例如乙烯基、烯丙基或丙烯基)。)

[化24]



(式中，R₁₄係各自獨立地表示氫原子、碳數1~3之烷基(例如甲基或乙基)、或碳數2~3之烯基(例如乙烯基、烯丙基或丙烯基)。)

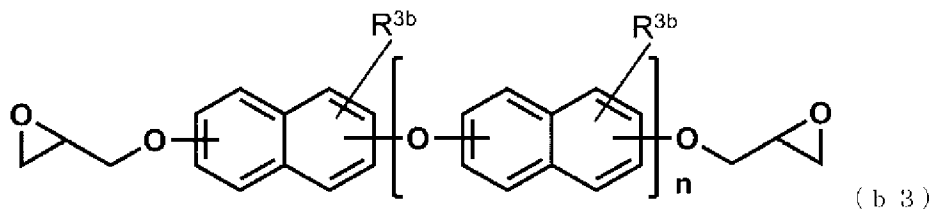
【0064】

伸萘基醚型環氧樹脂，可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製品。就伸萘基醚型環氧樹脂之市售品而言，可舉例如DIC(股)公司製品之「HP-6000」、「EXA-7300」、「EXA-7310」、「EXA-7311」、「EXA-7311L」、「EXA7311-G3」、「EXA7311-G4」、「EXA-7311G4S」、「EXA-7311G5」等，尤其宜為HP-6000。

【0065】

就萘型環氧樹脂之上述者以外之例而言，不限定於後述，可列舉下式(b3)表示之化合物。

[化25]



(式(b3)中，R^{3b}係各自獨立地表示氫原子、碳數1~5之烷基(例如甲基或乙基)、芳烷基、苄基、萘基、含有至少1個環氧丙基氧基之萘基或含有至少1個環氧丙基氧基之萘基甲基，n表示0以上之整數(例如0~2)。)

【0066】

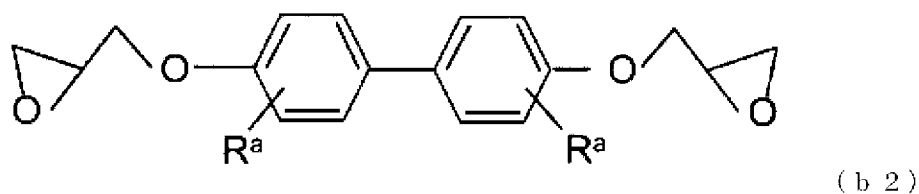
就上式(b3)表示之化合物之市售品而言，可舉例如DIC(股)公司製品之「HP-4032」(上式(b3)中 $n=0$)、「HP-4710」(上式(b3)中， $n=0$ ， R^{3b} 為含有至少1個環氧丙基氧基之萘基甲基)等。

【0067】

此外，就本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)而言，宜使用聯苯型環氧樹脂(排除相當於上述環氧化合物(C)者。)

作為聯苯型環氧樹脂，沒有特別之限定，可舉例如下式(b2)表示之化合物(化合物(b2))。

[化26]



(式(b2)中， R^a 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子。)

【0068】

式(b2)中，碳數1~10之烷基，可為直鏈狀、分支狀或環狀之任一者。就烷基而言，沒有特別之限定，可舉例如甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、異丙基、異丁基及環己基。

【0069】

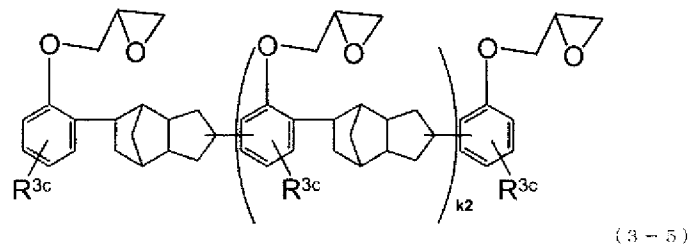
在聯苯型環氧樹脂為化合物(b2)之情況，聯苯型環氧樹脂亦可為烷基之 R^a 的數目不同之化合物(b2)的混合物形態。具體而言，宜為烷基之 R^a 之數目不同之聯苯型環氧樹脂之混合物，進一步宜為烷基之 R^a 之數目為0的化合物(b2)與烷基之 R^a 之數目為4之化合物(b2)的混合物。

【0070】

此外，作為本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)，可使用二環戊二烯型環氧樹脂(排除相當於上述環氧化合物(C)者。)

作為二環戊二烯型環氧樹脂，沒有特別之限定，可舉例如下式(3-5)表示之化合物。

[化27]

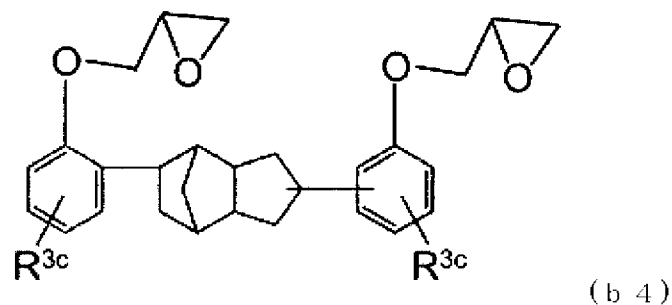


(式中， R^{3c} 係各自獨立地表示氫原子或碳數1~5之烷基， k_2 表示0~10之整數。)

【0071】

上式(3-5)表示之化合物係沒有特別之限定，例如可為下式(b4)表示之化合物。

[化28]



(式(b4)中， R^{3c} 係各自獨立地表示氫原子或碳數1~5之烷基(例如甲基或乙基)。)

【0072】

二環戊二烯型環氧樹脂可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製造品。就二環戊二烯型環氧樹脂之市售品而言，可列舉Dainippon Ink and Chemicals,

Incorporated 製品之「EPICRON HP-7200L」、「EPICRON HP-7200」、「EPICRON HP-7200H」、「EPICRON HP-7000HH」等。

【0073】

此等之中，環氧化合物(C)，考慮可展現更優良之耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，宜為選自於由式(3a)表示之環氧樹脂、萘型環氧樹脂及聯苯型環氧樹脂構成之群組中之1種以上，在該情況，宜為式(3a)表示之環氧樹脂係包含萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂，萘型環氧樹脂係包含仲萘基醚型環氧樹脂。

【0074】

就環氧化合物(C)而言，亦可以包含不相當於上述環氧化合物之其他環氧樹脂。

就其他環氧樹脂而言，沒有特別之限定，可列舉雙酚型環氧樹脂、參酚甲烷型環氧樹脂、蔥型環氧樹脂、環氧丙基酯型環氧樹脂、多元醇型環氧樹脂、含異氰尿酸酯環之環氧樹脂、萘型環氧樹脂、由雙酚A型結構單元與烴系結構單元構成之環氧樹脂等。

就其它環氧樹脂而言，在上述之中，考慮更改善耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，可含有雙酚型環氧樹脂，就雙酚型環氧樹脂而言，例如可使用二烯丙基雙酚型環氧樹脂(例如二烯丙基雙酚A型環氧樹脂、二烯丙基雙酚E型環氧樹脂、二烯丙基雙酚F型環氧樹脂、二烯丙基雙酚S型環氧樹脂等)等。

【0075】

作為環氧化合物(C)，上述環氧化合物及環氧樹脂之中，可單獨使用1種、或組合2種以上使用。

【0076】

環氧化合物(C)之每1分子之平均環氧基數，考慮更有效且確實地發揮本發明之作用效果的觀點，宜為1以上且小於3，更宜為1.5以上2.5以下。平均環氧基數係藉由下式算出。

[數4]

$$\text{平均環氧基數} = \sum_{i=1}^n (C_i \times Z_i)$$

(式中， C_i 表示分子中具有 i 個環氧基之環氧化合物之環氧基數， Z_i 表示分子中具有 i 個環氧基之環氧化合物佔環氧化合物全體的比例， $Z_1+Z_2+\dots+Z_n=1$ 。)

【0077】

環氧化合物(C)之含量，考慮能展現更優良之相容性、耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，相對於環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)之合計量100質量%，宜為5~95質量%，更宜為10~90質量%，進一步宜為15~60質量%，尤其宜為20~50質量%。

【0078】

[環狀碳二亞胺化合物(D)]

環狀碳二亞胺化合物(D)只要是分子內具有1個以上之環狀結構，且於1個環狀結構中具有1個碳二亞胺基的化合物便沒有特別之限定。本實施形態之硬化性組成物藉由含有環狀碳二亞胺化合物(D)，則能在不使流動性劣化、維持充分之成形性的狀態下，提高玻璃轉移溫度(Tg)，耐熱性、低熱膨脹性、銅箔玻璃強度及耐藥品性優良。

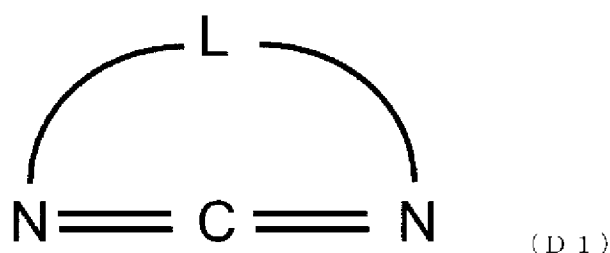
【0079】

環狀結構係具有碳二亞胺基(-N=C=N-)，其第1氮原子與第2氮原子藉由鍵結基而鍵結。形成環狀結構之原子數宜為8~50，更宜為10~30，進一步宜為10~20。此處，形成環狀結構之原子數係指直接構成環狀結構之原子的數目。例如，若為8員環則形成環狀結構之原子數為8，若為50員環則形成環狀結構之原子數為50。藉由形成環狀結構之原子數為8以上，環狀碳二亞胺化合物之安定性良好，具備容易保存、容易使用的優點。此外，形成環狀結構之原子數超過50則環狀碳二亞胺化合物的合成困難。

【0080】

環狀碳二亞胺化合物(D)宜包含下式(D1)表示之環狀結構。

[化29]



(式(D1)中，L係作為脂肪族基、脂環族基、芳香族基或此等之組合之基的2~4價之鍵結基。鍵結基亦可含有雜原子及/或取代基。)

【0081】

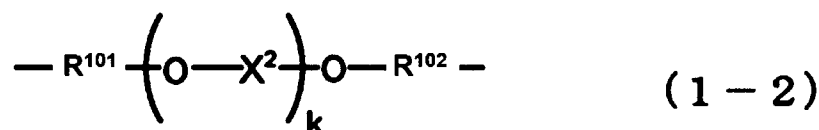
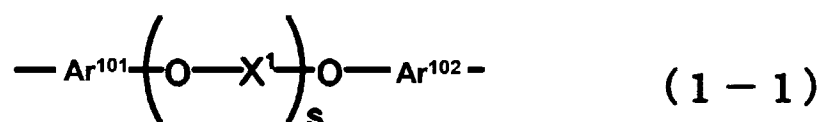
雜原子係指O、N、S及P。鍵結基中之2個價係用來形成環狀結構。在L為3價或4價之鍵結基的情況，L係介隔單鍵、雙鍵、原子或原子團而與聚合物或其他環狀結構鍵結。

【0082】

(鍵結基L)

鍵結基L宜為下式(1-1)、(1-2)或(1-3)表示之2~4價之鍵結基。

[化30]



【0083】

式(1-1)中， Ar^{101} 及 Ar^{102} 係各自獨立地為亦可含有雜原子及取代基之2~4價之碳數5~15之芳香族烴基。

【0084】

就 Ar^{101} 及 Ar^{102} 表示之芳香族烴基而言，沒有特別之限定，例如亦可為具有含有雜原子之雜環結構，可列舉碳數5~15之伸芳基、碳數5~15之芳烴三基、碳數5~15之芳烴四基。此處，作為伸芳基(2價)，可列舉伸苯基、萘二基等。作為芳烴三基(3價)，可列舉苯三基、萘三基等。作為芳烴四基(4價)，可列舉苯四基、萘四基等。此等芳香族烴基亦可具有取代基。就取代基而言，可列舉碳數1~20之烷基、碳數6~15之芳基、鹵素原子、硝基、醯胺基、羥基、酯基、醚基、醛基等。

【0085】

作為 Ar^{101} 及 Ar^{102} ，宜為伸苯基、萘二基、苯三基、萘三基或苯四基，更宜為伸苯基或苯三基。

【0086】

式(1-2)中， R^{101} 及 R^{102} 係各自獨立地亦可含有雜原子及/或取代基，可列舉2~4價之碳數1~20之脂肪族基(脂肪族烴基)、2~4價之碳數3~20之脂環族基(脂環族烴基)及此等之組合、或者此等脂肪族基及/或脂環族基與2~4價之碳數5~15之芳香族基(芳香族烴基)的組合。

【0087】

就 R^{101} 及 R^{102} 表示之脂肪族基，沒有特別之限制，可舉例如碳數1~20之伸烷基、碳數1~20之烷烴三基、碳數1~20之烷烴四基等。就伸烷基而言，可列舉亞甲基、伸乙基、伸丙基、伸丁基、伸戊基、伸己基、伸庚基、伸辛基、伸壬基、伸癸基、伸十二烷基、伸十六烷基等。就烷烴三基而言，可列舉甲烷三基、乙烷三基、丙烷三基、丁烷三基、戊烷三基、己烷三基、庚烷三基、辛烷三基、壬烷三基、癸烷三基、十二烷三基、十六烷三基等。就烷烴四基而言，可列舉甲烷四基、乙烷四基、丙烷四基、丁烷四基、戊烷四基、己烷四基、庚烷四基、辛烷四基、壬烷四基、癸烷四基、十二烷四基、十六烷四基等。此等脂肪族基亦可具有取代基。就取代基而言，可列舉碳數1~20之烷基、碳數6~15之芳基、鹵素原子、硝基、醯胺基、羥基、酯基、醚基、醛基等。

【0088】

就脂環族基而言，可列舉碳數3~20之伸環烷基、碳數3~20之環烷烴三基、碳數3~20之環烷烴四基。就伸環烷基而言，可列舉伸環丙基、伸環丁基、伸環戊基、伸環己基、伸環庚基、伸環辛基、伸環壬基、伸環癸基、伸環十二烷基、伸環十六烷基等。就環烷烴三基而言，可列舉環丙烷三基、環丁烷三基、環戊烷三基、環己烷三基、環庚烷三基、環辛烷三基、環壬烷三基、環癸烷三基、環十二烷三基、環十六烷三基等。就環烷烴四基而言，可列舉環丙烷四基、環丁烷四基、環

戊烷四基、環己烷四基、環庚烷四基、環辛烷四基、環壬烷四基、環癸烷四基、環十二烷四基、環十六烷四基等。此等脂環族基，亦可具有取代基。就取代基而言，可列舉碳數1~20之烷基、碳數6~15之芳基、鹵素原子、硝基、醯胺基、羥基、酯基、醚基、醛基等。

【0089】

就芳香族基而言，亦可具有含雜原子之雜環結構，可列舉碳數5~15之伸芳基、碳數5~15之芳烴三基、碳數5~15之芳烴四基。就伸芳基而言，可列舉伸苯基、萘二基等。就芳烴三基(3價)而言，可列舉苯三基、萘三基等。就芳烴四基(4價)而言，可列舉苯四基、萘四基等。此等芳香族基亦可具有取代基。就取代基而言，可列舉碳數1~20之烷基、碳數6~15之芳基、鹵素原子、硝基、醯胺基、羥基、酯基、醚基、醛基等。

【0090】

就 R^{101} 及 R^{102} 而言，宜各自獨立地為亞甲基、伸乙基、亞乙烯基、伸苯基或醚基，更宜為亞甲基、伸苯基或醚基。

【0091】

式(1-1)及(1-2)中， X^1 及 X^2 係各自獨立地為亦可含有雜原子及/或取代基之2~4價之碳數1~20之脂肪族基、2~4價之碳數3~20之脂環族基、2~4價之碳數5~15之芳香族基或此等的組合。

【0092】

作為 X^1 及 X^2 中之脂肪族基、脂環族基及芳香族基之例，可列舉與上述 R^{101} 及 R^{102} 中例示者為相同者。 X^1 及 X^2 宜為亞甲基、伸乙基、亞乙烯基或醚基，更宜為亞甲基或醚基。

【0093】

式(1-1)及(1-2)中，s及k宜各自獨立地為0~10，更宜為0~3，進一步宜為0~1。s及k各別超過10則環狀碳二亞胺化合物的合成困難，成本增加。此外，s或k為2以上時，作為重複單元之 X^1 或 X^2 可與其他 X^1 或 X^2 不同。

【0094】

式(1-3)中， X^3 係亦可含有雜原子及/或取代基之2~4價之碳數1~20之脂肪族基、2~4價之碳數3~20之脂環族基、2~4價之碳數5~15之芳香族基或此等之組合。

【0095】

就 X^3 中之脂肪族基、脂環族基及芳香族基之例而言，可列舉與上述 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 及 X^2 例示者相同者。作為 X^3 ，宜為亞甲基、伸乙基、亞乙烯基或醚基，更宜為亞甲基或醚基。

【0096】

此外， Ar^{101} 、 Ar^{102} 、 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 、 X^2 及 X^3 亦可具有選自O原子、N原子、S原子及P原子之雜原子。惟，雜原子為N原子之情況，其N原子係作為硝基及/或醯胺基存在。

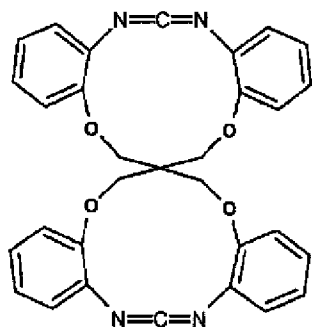
【0097】

此外，L為2價之鍵結基時， Ar^{101} 、 Ar^{102} 、 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 、 X^2 及 X^3 全部為2價基。L為3價之鍵結基時， Ar^{101} 、 Ar^{102} 、 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 、 X^2 及 X^3 中之1者為3價基。L為4價之鍵結基時， Ar^{101} 、 Ar^{102} 、 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 、 X^2 及 X^3 中之1者為4價基，或 Ar^{101} 、 Ar^{102} 、 R^{101} 、 R^{102} 、 X^1 、 X^2 及 X^3 中之2者為3價基。

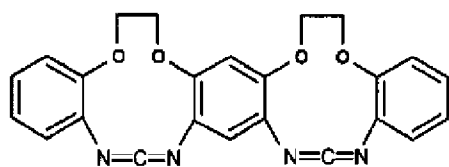
【0098】

就L為3價或4價之鍵結基，且L與具有碳二亞胺基之其他環狀結構鍵結的態樣而言，可列舉式(1)表示之2個以上之環狀結構介隔選自螺環結構、單鍵、碳數1~10之伸烷基、碳數6~10之芳香族環結構、碳數4~12之環烷環結構等之碳數1~15(宜為1~12)之共有部分而鍵結的態樣。如此態樣之具體例表示於下式(2)、(4)、(5)。

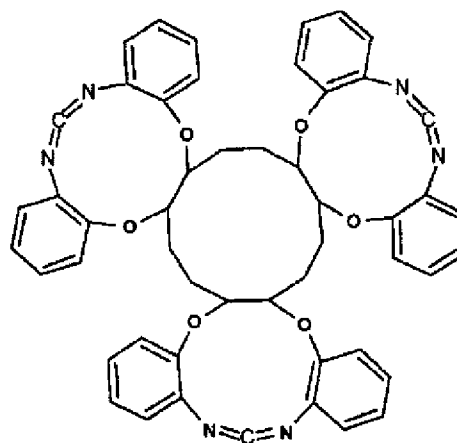
[化31]



(2)



(4)

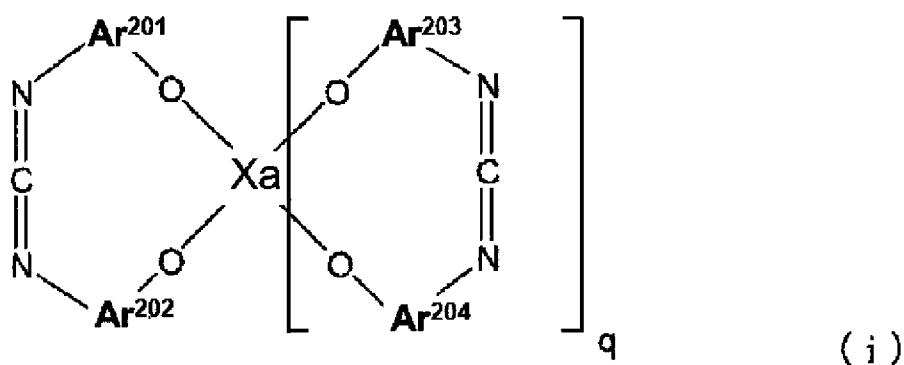


(5)

【0099】

環狀碳二亞胺化合物(D)亦可為下式(i)表示之環狀碳二亞胺化合物。此外，下式(i)表示之環狀碳二亞胺化合物係可於分子中具有2個以上之碳二亞胺基，亦可具有1個碳二亞胺基。

[化32]



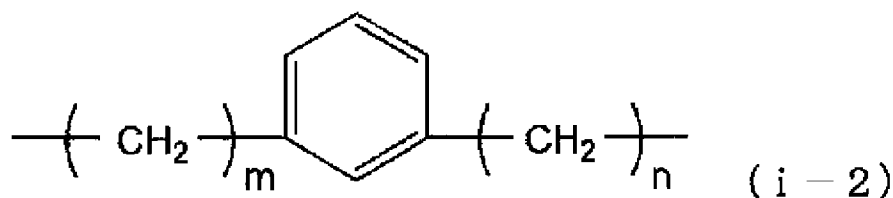
(式(i)中，Xa係下式(i-1)~(i-3)表示之2價基或下式(i-4)表示之4價基。Xa為2價時q為0，Xa為4價時q為1。Ar²⁰¹~Ar²⁰⁴係各自獨立地為芳香族烴基。此等芳香族烴基亦可具有碳數1~6之烷基或苯基作為取代基。)

[化33]



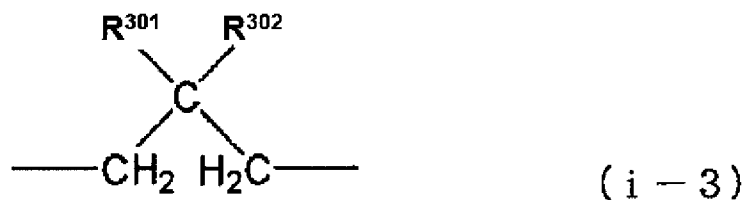
(式(i-1)中，n係1~6之整數。)

[化34]



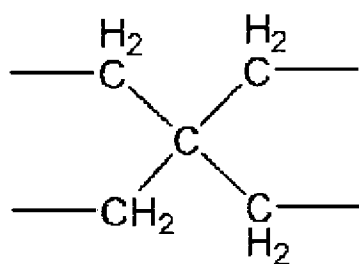
(式(i-2)中，m及n係各自獨立地為0~3之整數。)

[化35]



(式(i-3)中，R³⁰¹及R³⁰²係各自獨立地表示碳數1~6之烷基、苯基。)

[化36]

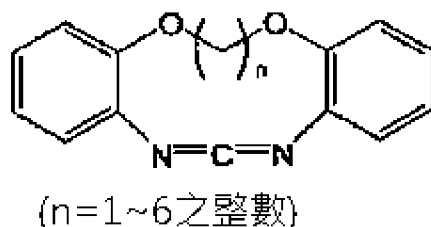


(i - 4)

【0100】

此外，作為上式(i)表示之環狀碳二亞胺化合物，例示數個具有以下結構式之化合物。

[化37]



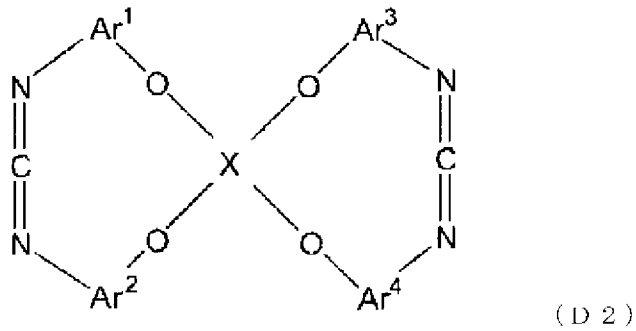
【0101】

環狀碳二亞胺化合物(D)，考慮玻璃轉移溫度(T_g)、耐藥品性及耐熱性更優良之觀點，宜包含1分子內含有2個以上之碳二亞胺基的多價環狀碳二亞胺化合物。環狀碳二亞胺化合物(D)，考慮硬化性能更優良之觀點，更宜為包含於1分子內含有2個或3個碳二亞胺基的多價環狀碳二亞胺化合物。此等多價環狀碳二亞胺化合物，可單獨使用1種、或組合2種以上使用。

【0102】

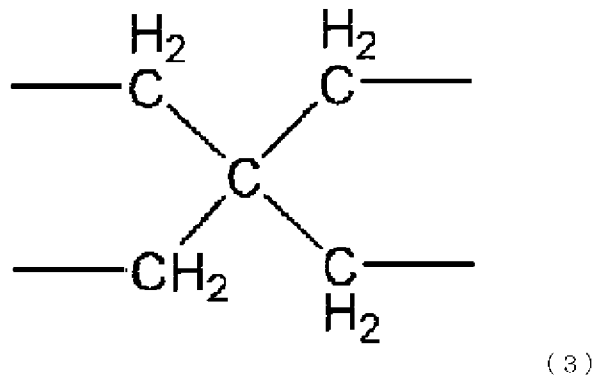
就多價環狀碳二亞胺化合物而言，可舉例如上述碳二亞胺化合物之中，於1分子內含有2個以上之碳二亞胺基者。此等之中，考慮玻璃轉移溫度(T_g)、耐藥品性及耐熱性更優良之觀點，宜為下式(D2)表示之化合物。

[化38]



(式(D2)中，X係下式(3)表示之4價基，Ar¹~Ar⁴係各自獨立地為伸苯基(例如伸鄰苯基)或萘二基(例如1,2-萘二基)之2價鍵結基，該鍵結基亦可具有取代基。就取代基而言，可列舉碳數1~20之烷基、碳數6~15之芳基、鹵素原子、硝基、醯胺基、羥基、酯基、醚基、醛基等。此外，此等鍵結基亦可具有含雜原子之雜環結構。)

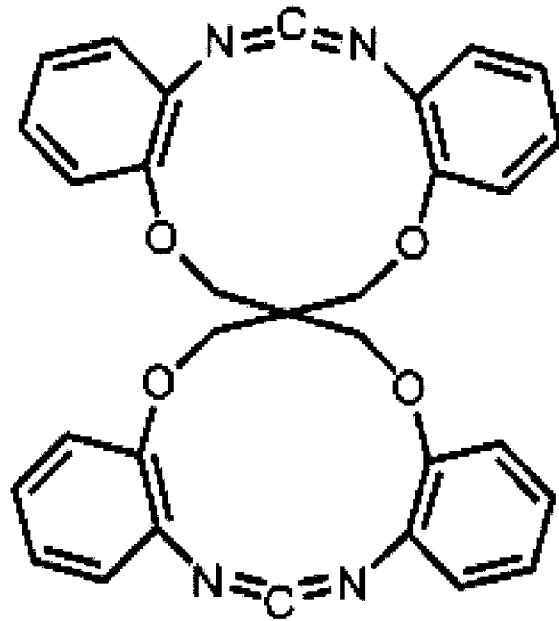
[化39]



【0103】

環狀碳二亞胺化合物(D)，考慮耐熱性更優良之觀點，宜為下式(D3)表示之化合物。

[化40]



(D 3)

【0104】

此等環狀碳二亞胺化合物(D)能藉由公知方法(例如國際公開第2010/071213號小冊中記載之方法)進行製造。

【0105】

環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為1.0~30質量份，更宜為2.0~15質量份，進一步宜為2.5~12.0質量份。藉由環狀碳二亞胺化合物(D)之含量為1.0質量份以上，有耐熱性、低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性更優良的傾向，藉由環狀碳二亞胺化合物(D)之含量為30質量份以下，有阻燃性更優良的傾向。

【0106】**[化合物(H)]**

本實施形態之硬化性組成物，考慮更改善低熱膨脹性、耐藥品性及銅箔剝離強度之觀點，宜更含有選自於由馬來醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、烯基酚(A)以外之酚化合物(F)及經烯基取代之納迪克醯亞胺(nadiimide)化合物構成之群組

中之1種以上之化合物(H)。就化合物(H)而言，沒有特別之限定，宜為2官能以上，亦可為3官能以上之多官能。

【0107】

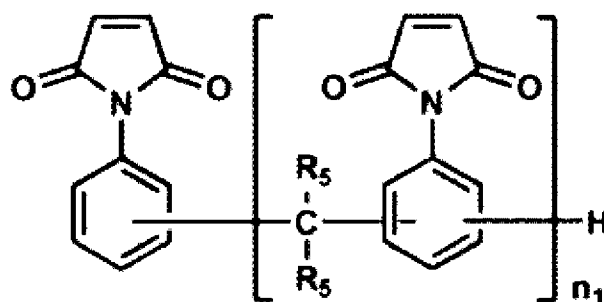
本實施形態之硬化性組成物中之化合物(H)的含量，相對於樹脂固體成分100質量%，宜為10~80質量%，更宜為20~60質量%，進一步宜為30~50質量%。

【0108】

[馬來醯亞胺化合物]

本實施形態之硬化性組成物，考慮更改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，宜含有馬來醯亞胺化合物。就馬來醯亞胺化合物而言，只要是1分子中具有1個以上之馬來醯亞胺基之化合物便沒有特別之限定，可舉例如1分子中具有1個馬來醯亞胺基之單馬來醯亞胺化合物(例如N-苯基馬來醯亞胺、N-羥基苯基馬來醯亞胺等)、1分子中具有2個以上之馬來醯亞胺基之多馬來醯亞胺化合物(例如雙(4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、2,2-雙{4-(4-馬來醯亞胺苯氧基)-苯基}丙烷、雙(3-乙基-5-甲基-4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、雙(3,5-二甲基-4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、雙(3,5-二乙基-4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、間伸苯基雙馬來醯亞胺、4-甲基-1,3-伸苯基雙馬來醯亞胺、1,6'-雙馬來醯亞胺-(2,2,4-三甲基)己烷、下式(H1a)表示之馬來醯亞胺化合物、下式(H1b)表示之馬來醯亞胺化合物、此等馬來醯亞胺化合物與胺化合物之預聚物等。

[化41]



(H 1 a)

(式中， R_5 係各自獨立地表示氫原子或甲基， n_1 表示1以上之整數。)

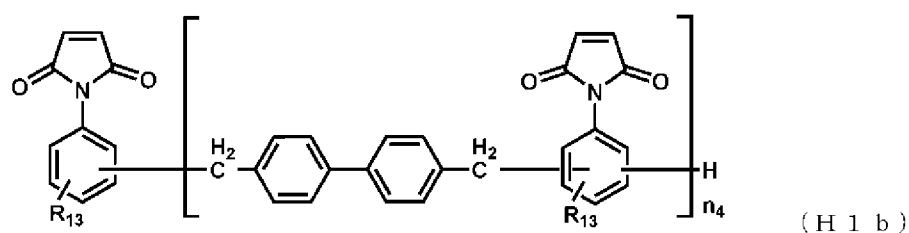
【0109】

n_1 係1以上，宜為1~100，更宜為1~10。

【0110】

此等馬來醯亞胺化合物可單獨使用1種，或組合2種以上使用。此等之中，考慮更改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，馬來醯亞胺化合物宜包含選自於由雙(4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、2,2-雙{4-(4-馬來醯亞胺苯氧基)-苯基}丙烷、雙(3-乙基-5-甲基-4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、式(H1a)表示之馬來醯亞胺化合物及下式(H1b)表示之馬來醯亞胺化合物構成之群組中之至少1種。

[化42]



(式(H1b)中， R^{13} 係各自獨立地表示氫原子、碳數1~5之烷基、或苯基， n^4 表示1以上10以下之整數。)

【0111】

馬來醯亞胺化合物可使用市售品，亦可使用藉由公知方法所製造之製品。就馬來醯亞胺化合物之市售品而言，可列舉K·I Chemical Industry Co., LTD. 製品之「BMI-70」、
「BMI-80」、「BMI-1000P」、大和化成工業(股)公司製品之「BMI-3000」、「BMI-4000」、「BMI-5100」、「BMI-7000」、「BMI-2300」、日本化藥(股)公司製品之
「MIR-3000」等。

【0112】

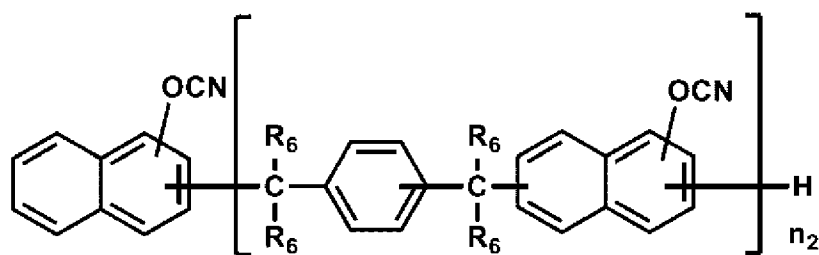
馬來醯亞胺化合物之含量，考慮更改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為1~50質量份，更宜為5~40質量份，進一步宜為10~40質量份。

【0113】

[氰酸酯化合物]

本實施形態之硬化性組成物，考慮更改善低熱膨脹性及銅箔剝離強度之觀點，宜含有氰酸酯化合物。就氰酸酯化合物而言，只要是1分子中具有2個以上之氰氧基(氰酸酯基)之化合物便沒有特別之限定，可舉例如下式(H2a)表示等之萘酚芳烷基型氰酸酯化合物、排除式(H2a)表示之化合物之下式(H2b)表示之化合物等之酚醛清漆型氰酸酯化合物、聯苯芳烷基型氰酸酯、二烯丙基雙酚型氰酸酯化合物、雙(3,3-二甲基-4-氰氧基苯基)甲烷、雙(4-氰氧基苯基)甲烷、1,3-二氰氧基苯、1,4-二氰氧基苯、1,3,5-三氰氧基苯、1,3-二氰氧基萘、1,4-二氰氧基萘、1,6-二氰氧基萘、1,8-二氰氧基萘、2,6-二氰氧基萘、2,7-二氰氧基萘、1,3,6-三氰氧基萘、4,4'-二氰氧基聯苯、雙(4-氰氧基苯基)醚、雙(4-氰氧基苯基)硫醚、雙(4-氰氧基苯基)砜、2,2-雙(4-氰氧基苯基)丙烷。此等氰酸酯化合物，可單獨使用1種、或組合2種以上使用。本實施形態中，考慮耐熱性、低熱膨脹性及銅箔剝離強度之觀點，氰酸酯化合物宜包含萘酚芳烷基型氰酸酯化合物及/或酚醛清漆型氰酸酯化合物等多官能氰酸酯化合物。

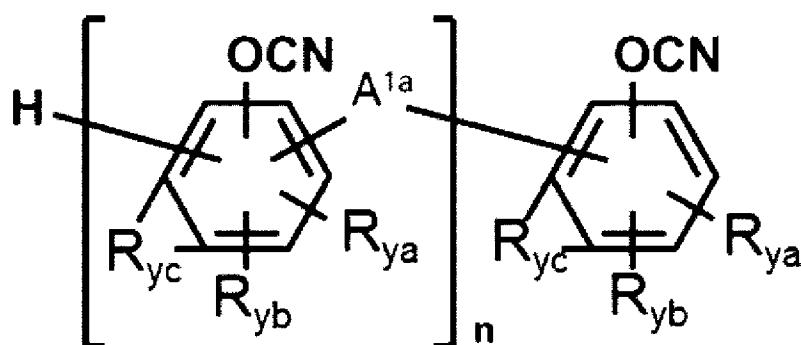
[化43]



(H 2 a)

(式中， R_6 係各自獨立地表示氫原子或甲基， n_2 表示1以上之整數。)

[化44]



(H 2 b)

(式中， R_{ya} 係各自獨立地表示碳數2~8之烯基或氫原子， R_{yb} 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子， R_{yc} 係各自獨立地表示碳數4~12之芳香環， R_{yc} 亦可與苯環形成縮合結構， R_{yc} 可存在亦可不存在， A^{1a} 係各自獨立地表示碳數1~6之伸烷基、碳數7~16之伸芳烷基、碳數6~10之伸芳基、亞萸基、磺醯基、氧原子、硫原子、或直接鍵結(單鍵)，不存在 R_{yc} 之情況，於1個苯環亦可具有2個以上之 R_{ya} 及/或 R_{yb} 之基。 n 表示1~20之整數。)

【0114】

此等之中，考慮更改善耐熱性、低熱膨脹性及銅箔剝離強度之觀點，氰酸酯化合物宜包含式(H2a)及/或式(H2b)表示之化合物。

【0115】

式(H2a)中， n_2 表示1以上之整數，宜為1~20之整數，更宜為1~10之整數。

【0116】

式(H2b)中，就作為R_{ya}表示之碳數2~8之烯基而言，沒有特別之限制，可舉例如乙烯基、烯丙基、丙烯基、丁烯基、己烯基等。

【0117】

式(H2b)中，就作為R_{yb}表示之碳數1~10之烷基而言，沒有特別之限制，可舉例如甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基等直鏈狀烷基；異丙基、異丁基、第三丁基等分支狀烷基。

【0118】

式(H2b)中，就作為A^{la}表示之碳數1~6之伸烷基而言，沒有特別之限制，可列舉亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基。此外，式(H2b)中，就作為A^{la}表示之碳數7~16之伸芳烷基而言，沒有特別之限制，可舉例如式： $-\text{CH}_2\text{-Ar-CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2\text{-CH}_2\text{-Ar-CH}_2\text{-CH}_2-$ 、或式： $-\text{CH}_2\text{-Ar-CH}_2\text{-CH}_2-$ (式中，Ar表示伸苯基、伸萘基、或伸聯苯基。)表示之基。進一步地，就作為A^{la}表示之碳數6~10之伸芳基而言，沒有特別之限制，可舉例如伸苯環。

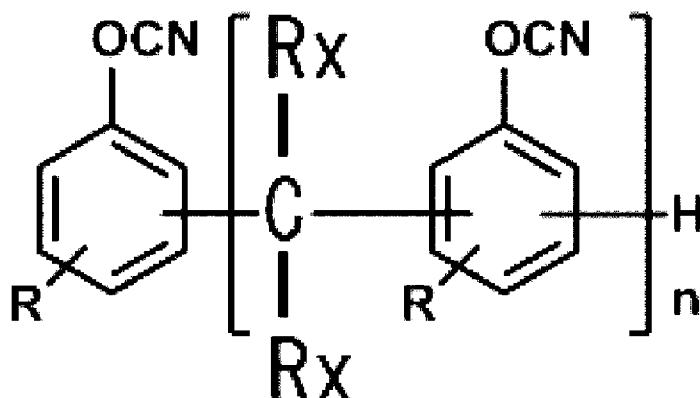
【0119】

式(H2b)中，n表示1~20之整數，宜為1~15之整數，更宜為1~10之整數。

【0120】

式(H2b)表示之化合物宜為下式(H2c)表示之化合物。

[化45]



(H 2 c)

(式中， R_x 係各自獨立地表示氫原子或甲基， R 係各自獨立地表示碳數2~8之烯基、碳數1~10之烷基或氫原子， n 表示1~10之整數。)

【0121】

此等氰酸酯化合物亦可依循公知方法來製造。就具體之製造方法而言，可舉例如日本特開2017-195334號公報(尤其為段落0052~0057)等中記載之方法。

【0122】

氰酸酯化合物之含量，考慮更改善低熱膨脹性及銅箔剝離強度之觀點，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為3~70質量份，更宜為5~60質量份，進一步宜為10~40質量份。

【0123】

(烯基酚(A)以外之酚化合物(F))

本實施形態之硬化性組成物，考慮展現更優良之耐藥品性之觀點，宜含有烯基酚(A)以外之酚化合物(F)。就酚化合物(F)而言，沒有特別之限定，可列舉雙酚型酚醛樹脂(例如雙酚A型樹脂、雙酚E型樹脂、雙酚F型樹脂、雙酚S型樹脂等)、酚類酚醛清漆樹脂(例如苯酚酚醛清漆樹脂、萘酚酚醛清漆樹脂、甲酚酚醛清漆樹脂、後述之胺基三吡啶酚醛清漆樹脂等)、環氧丙基酯型酚醛樹脂、萘型酚醛樹脂、蒽型酚醛樹脂、二環戊二烯型酚醛樹脂、聯苯型酚醛樹脂、脂環族酚醛樹脂、多元醇型酚醛樹脂、芳烷基型酚醛樹脂、酚改性芳香族烴甲醛樹脂、萘型酚醛樹脂等。此等酚化合物係單獨使用1種、或組合2種以上使用。

【0124】

此等之中，考慮展現更優良之相容性及耐藥品性之觀點，酚化合物(F)宜包含1分子中具有2個酚性羥基之2官能酚化合物或胺基三吡啶酚醛清漆樹脂。

【0125】

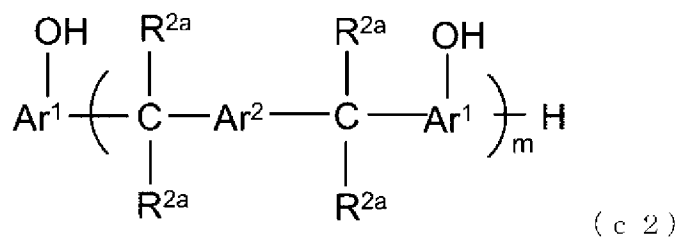
就2官能酚化合物，沒有特別之限定，可列舉雙酚、雙甲酚、具有萸骨架之雙酚類(例如具有萸骨架之雙酚、具有萸骨架之雙甲酚等)、聯苯酚(例如p,p'-聯苯酚等)、二羥基二苯基醚(例如4,4'-二羥基二苯基醚等)、二羥基二苯基酮(例如4,4'-二羥基二苯基酮等)、二羥基二苯基硫醚(例如4,4'-二羥基二苯基硫醚等)、二羥基芳烴(例如對苯二酚等)。此等2官能酚化合物可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，2官能酚化合物，考慮能展現更優良之耐藥品性之觀點，宜包含選自於由雙酚、雙甲酚、及具有萸骨架之雙酚類構成之群組中之至少1種。考慮與上述同樣之觀點，作為具有萸骨架之雙酚類，宜為雙甲酚萸。

【0126】

就芳烷基型酚醛樹脂而言，可舉例如下式(c2)表示之化合物。

【0127】

[化46]



【0128】

(式中，Ar¹係各自獨立地表示苯環或萘環，Ar²係表示苯環、萘環、或聯苯環，R^{2a}係各自獨立地表示氫原子或甲基，m表示1~50之整數，各環亦可具有羥基以外之取代基(例如碳數1~5之烷基或苯基等)。)

【0129】

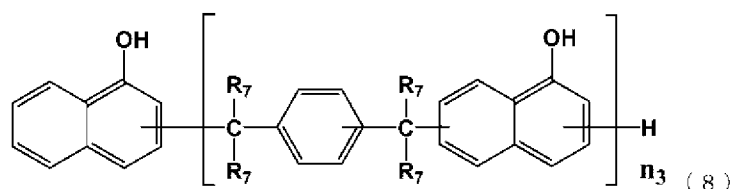
式(c2)表示之化合物，考慮更改善銅箔剝離強度之觀點，宜為式(c2)中，Ar¹係萘環，Ar²係苯環之化合物(以下也稱為「萘酚芳烷基型酚醛樹脂」。)、及式(c2)中，Ar¹係苯環、Ar²係聯苯環之化合物(以下也稱為「聯苯芳烷基型酚醛樹脂」。)

【0130】

萘酚芳烷基型酚醛樹脂宜為下式(8)表示之化合物。

【0131】

[化47]



【0132】

(式中，R₇係各自獨立地表示氫原子或甲基，n₃表示1以上之整數。)

【0133】

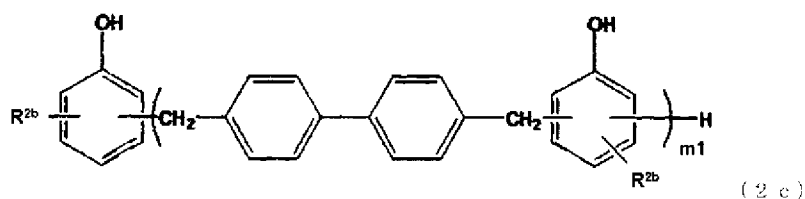
式(8)中，n₃表示1以上之整數，宜為1~10之整數，更宜為1~6之整數。

【0134】

聯苯芳烷基型酚醛樹脂宜為下式(2c)表示之化合物。

【0135】

[化48]



【0136】

(式中， R^{2b} 係各自獨立地表示氫原子、碳數1~5之烷基或苯基(宜為氫原子)， $m1$ 表示1~20之整數(宜為1~6之整數)。

【0137】

酚化合物A'，考慮更改善低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，宜含有上式(8)表示之化合物。

【0138】

芳烷基型酚醛樹脂可使用市售品，亦可使用藉由公知方法製造之製品。就芳烷基型酚醛樹脂之市售品而言，可列舉日本化藥(股)公司製品之「KAYAHARD GPH-65」、
「KAYAHARD GPH-78」、
「KAYAHARD GPH-103」(聯苯芳烷基型酚醛樹脂)、新日鐵化學(股)公司製品之「SN-495」(萘酚芳烷基型酚醛樹脂)。

【0139】

本實施形態之硬化性組成物係如同前述，作為酚化合物(F)亦可含有胺基三吡啶酚醛清漆樹脂。含有胺基三吡啶酚醛清漆樹脂之情況，烯基酚(A)、與環氧改性聚矽氧(B)、與環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)反應所生成之末端羥基、環氧基，更與胺基三吡啶酚醛清漆樹脂反應，有增加羥基、胺基等末端官能基之傾向。藉此，因為大量存在與熱硬化性樹脂之反應性高的末端官能基，故有改善相容性及交聯密度、改善銅箔剝離強度之傾向。

【0140】

就胺基三吡啶酚醛清漆樹脂而言，沒有特別之限定，考慮改善銅箔剝離強度之觀點，宜為分子內之相對於一個三吡啶骨架具有2~20個之酚羥基的酚醛清漆樹脂，更宜為分子內之相對於一個三吡啶骨架具有2~15個之酚羥基的酚醛清漆樹脂，進一步宜為分子內之相對於一個三吡啶骨架具有2~10個之酚羥基的酚醛清漆樹脂。

【0141】

本實施形態之硬化性組成物中之烯基酚(A)之含量，考慮能展現更優良之相容性、耐熱性及低熱膨脹性之觀點，相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及酚化合物(F)之總量100質量份，宜為1~50質量份，更宜為3~30質量份，進一步宜為5~20質量份。

【0142】

本實施形態之硬化性組成物中之環氧改性聚矽氧(B)之含量，考慮能平衡良好地展現更優良之低熱膨脹性及耐藥品性之觀點，相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及酚化合物(F)之總量100質量份，宜為5~70質量份，更宜為10~60質量份，進一步宜為20~55質量份。

【0143】

本實施形態之硬化性組成物中之環氧化合物(C)之含量，考慮能展現更優良之相容性、耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之觀點，相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及酚化合物(F)之總量100質量份，宜為5~50質量份，更宜為10~30質量份，進一步宜為15~25質量份。

【0144】

本實施形態之硬化性組成物中之酚化合物(F)之含量，考慮能展現更優良之耐藥品性之觀點，相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及酚化合物(F)之總量100質量份，宜為5~30質量份，更宜為10~25質量份，進一步宜為15~20質量份。

【0145】

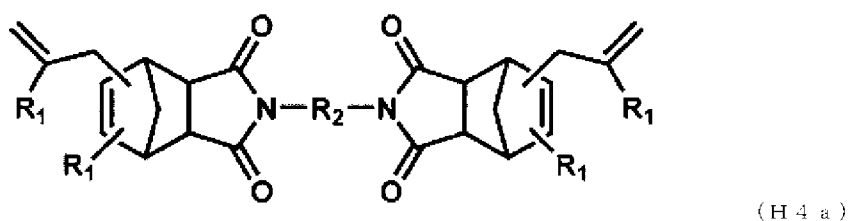
此外，硬化性組成物在不含有酚化合物(F)之情況下，上述烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)之各含量係表示相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)之總量100質量份的含量。

【0146】

(經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物)

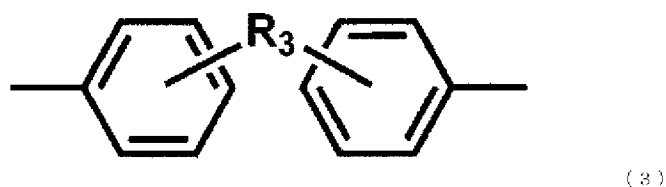
本實施形態之硬化性組成物考慮更改善耐熱性之觀點，宜含有經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物。經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物只要是1分子中具有1個以上之經烯基取代之納迪克醯亞胺基之化合物便沒有特別之限定，可舉例如式(H4a)表示之化合物。

[化49]



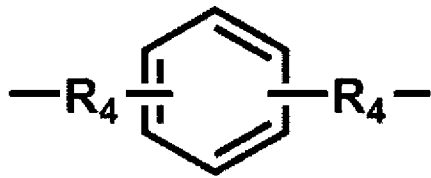
(式中， R_1 係各自獨立地表示氫原子、或碳數1~6之烷基(例如甲基或乙基)， R_2 係碳數1~6之伸烷基、伸苯基、伸聯苯基、伸萘基、或下式(3)或者下式(4)表示之基。)

[化50]



(式(3)中， R_3 表示亞甲基、異亞丙基、CO、O、S或 SO_2 。)

[化51]



(式(4)中， R_4 係各自獨立地表示碳數1~4之伸烷基、或碳數5~8之伸環烷基。)

【0147】

式(H4a)表示之經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物可使用市售品，亦可使用依循公知方法所製造之製品。就市售品而言，可列舉丸善石油化學(股)公司製品之「BANI-M」、及「BANI-X」。

【0148】

經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物之含量，考慮更改善耐熱性之觀點，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為1~40質量份，更宜為5~35質量份，進一步宜為10~30質量份。

【0149】

<第2實施形態>

[第2實施形態之硬化性組成物]

第2實施形態之硬化性組成物，含有：含有來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、及來自該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)之構成單元的聚合物(E)、以及環狀碳二亞胺化合物(D)。就烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及環狀碳二亞胺化合物(D)而言，如同上述第1實施形態所說明。本說明書中，第1實施形態之硬化性組成物係不含有聚合物(E)之硬化性組成物，而與第2實施形態之硬化性組成物有所區別。

【0150】

第2實施形態之硬化性組成物，在聚合物(E)及環狀碳二亞胺化合物(D)之外，因應需求亦可更含有上述之選自於由馬來醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、該烯基酚(A)以外之酚化合物(F)及經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物構成之群組中之1種以上之化合物(H)。化合物(H)可為聚合物(E)之聚合後殘留之未反應成分，亦可為對於合成後之聚合物(E)再另外添加的成分。

【0151】

此外，第2實施形態之硬化性組成物，在聚合物(E)之外，亦可更含有選自於由烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)構成之群組中之1種以上。該情況，第2實施形態之硬化性組成物所含之烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)或環氧化合物(C)可為在聚合物(E)之聚合後殘留之未反應成分，亦可為對於經合成之聚合物(E)另外添加之成分。

【0152】

第2實施形態之硬化性組成物具有優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性。改善各特性之原因，據推測與第1實施形態之硬化性組成物中之作用機制相同，藉由控制硬化性組成物之放置溫度所致之環狀碳二亞胺化合物(D)與聚合物(E)及任意添加之化合物(H)等之熱硬化性樹脂與反應性，適當地控制相容性及交聯反應速度，而改善低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性。除此之外，第2實施形態之硬化性組成物藉由含有聚合物(E)，具有更優良之相容性，能展現更優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性，絕緣可靠性亦優良。聚合物(E)即使在與聚矽氧系化合物之相容性差之熱硬化性樹脂混合之情況，亦能發揮充分之相容性。藉此，含有聚合物(E)及熱硬化性樹脂之硬化性組成物，能給予均

勻之清漆、硬化物。使用該硬化性組成物獲得之預浸體等硬化物成為各成分均勻地相容，更抑制成分之不均勻導致之物性的偏差者。

【0153】

[聚合物(E)]

聚合物(E)係含有來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、及來自環氧化合物(C)之構成單元，因應需求亦可更含有來自選自於由馬來醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、烯基酚A以外之酚化合物(F)及經烯基取代之納迪克醯亞胺化合物構成之群組中之1種以上之化合物(H)的構成單元。聚合物(E)具有來自化合物(H)之構成單元的情況，作為化合物(H)宜為2官能之化合物。此外，本說明書中，「來自烯基酚(A)之構成單元」、「來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元」、「來自環氧化合物(C)之構成單元」及「來自化合物(H)之構成單元」，係指聚合物(E)中含有使烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及化合物(H)之各成分聚合而得之構成單元，且亦指含有藉由能給予同樣之構成單元的反應等所形成的構成單元。以下，將各構成單元各別稱為構成單元(A)、(B)、(C)、(H)。

【0154】

聚合物(E)之重量平均分子量，藉由凝膠滲透層析之聚苯乙烯換算，宜為 $3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^4$ ，更宜為 $3.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4$ 。藉由重量平均分子量為 3.0×10^3 以上，第2實施形態之硬化性組成物有能展現更優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性之傾向。藉由重量平均分子量為 5.0×10^4 以下，第2實施形態之硬化性組成物有能展現更優良之相容性的傾向。

【0155】

聚合物(E)中之構成單元(A)之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為5~50質量%。藉由構成單元(A)之含量為上述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物能展現更優良之相容性，有改善耐熱性及低熱膨脹性之平衡的傾向。考慮同樣的觀點，構成單元(A)之含量宜為10~45質量%，更宜為15~40質量%。

【0156】

聚合物(E)中之構成單元(B)之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為20~60質量%。藉由構成單元(B)之含量為上述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物有能平衡良好地展現更優良之低熱膨脹性及耐藥品性之傾向。考慮同樣的觀點，構成單元(B)之含量更宜為25~55質量%，進一步宜為30~50質量%。

【0157】

構成單元(B)宜包含來自具有50~350g/mol之環氧當量之環氧改性聚矽氧(低當量環氧改性聚矽氧(B1'))、及具有400~4000g/mol之環氧當量之環氧改性聚矽氧(高當量環氧改性聚矽氧(B2'))的構成單元。低當量環氧改性聚矽氧(B1')、高當量環氧改性聚矽氧(B2')各別更宜為具有140~250g/mol之環氧當量之環氧改性聚矽氧(低當量環氧改性聚矽氧(B1''))、具有450~3000g/mol之環氧當量之環氧改性聚矽氧(高當量環氧改性聚矽氧(B2''))。

【0158】

聚合物(E)中之來自低當量環氧改性聚矽氧(B1')之構成單元(B)1之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為5~25質量%，更宜為7.5~20質量%，進一步宜為10~17質量%。

【0159】

聚合物(E)中之來自高當量環氧改性聚矽氧(B2')之構成單元(B)2之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為15~55質量%，更宜為20~52.5質量%，進一步宜為25~50質量%。

【0160】

構成單元(B)2之含量相對於構成單元(B)1之含量之質量比，宜為1.5~4，更宜為1.5~3.5，進一步宜為1.9~3.3。藉由構成單元(B)1及構成單元(B)2之含量具有上述關係，第2實施形態之硬化性組成物有更改善銅箔剝離強度及耐藥品性的傾向。

【0161】

作為聚合物(E)中之構成單元(C)，宜為來自選自於由上式(b1)表示之化合物、上式(b2)表示之化合物、上式(b3)表示之化合物及上式(b4)表示之化合物構成之群組中之至少1種的單元。

【0162】

聚合物(E)中之構成單元(C)之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為5~40質量%。若構成單元(C)之含量為上述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物係有具有更優良之相容性，能展現更優良之耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之傾向。考慮同樣的觀點，構成單元(C)之含量宜為10~30質量%，更宜為15~25質量%。

【0163】

此外，構成單元(C)之含量，相對於構成單元(B)及構成單元(C)之總質量，宜為5~95質量%，更宜為10~90質量%，進一步宜為15~60質量%，尤其宜為20~50質量%。藉由構成單元(B)及構成單元(C)之含量具有上述關係，第2實施形態之硬化性組成物有具有更優良之相容性，更改善耐熱性、耐藥品性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性之傾向。

【0164】

聚合物(E)具有來自化合物(H)之構成單元的情況，聚合物(E)中之構成單元(H)之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為3~40質量%。藉由構成單元(H)之含有量為上述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物有能展現更優良之低熱膨脹性、耐藥品性及銅箔剝離強度之傾向。考慮同樣的觀點，構成單元(H)之含量宜為5~35質量%，更宜為10~30質量%。

【0165】

聚合物(E)具有來自烯基酚(A)以外之酚化合物(F)之構成單元(以下也稱為「構成單元(F)」)之情況，聚合物(E)中之構成單元(F)之含量，相對於聚合物(E)之總質量，宜為5~30質量%。藉由構成單元(F)之含量為上述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物有能展現更優良之耐藥品性之傾向。考慮同樣之觀點，構成單元(F)之含量更宜為10~27.5質量%，進一步宜為10~25質量%。

【0166】

聚合物(E)之烯基當量宜為300~1500g/mol。藉由烯基當量為300g/mol以上，第2實施形態之硬化性組成物之硬化物有彈性模數更下降之傾向，其結果，有使用硬化物獲得之基板等之熱膨脹率更下降的傾向。藉由烯基當量為1500g/mol以下，有第2實施形態之硬化性組成物之相容性、耐熱性、耐藥品性、低熱膨脹性、銅箔剝離強度及絕緣可靠性更改善的傾向。考慮同樣的觀點，烯基當量宜為350~1200g/mol，更宜為400~1000g/mol。

【0167】

第2實施形態之硬化性組成物中之聚合物(E)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，宜為5~50質量%，更宜為10~45質量%，進一步宜為10~40質量%。若含量為上

述範圍內，第2實施形態之硬化性組成物有具有更優良之相容性，能平衡良好地更展現低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性的傾向。

【0168】

聚合物(E)係例如藉由於聚合觸媒(G)之存在下使烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、及環氧化合物(C)、及因應需求之化合物(H)反應的步驟而獲得。該反應液可在有機溶劑之存在下進行。更具體而言，上述步驟中，藉由進行環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)具有之環氧基與烯基酚(A)具有之羥基之間的加成反應、及獲得之加成反應物具有之羥基與環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)具有之環氧基之間的加成反應等，可獲得聚合物(E)。

【0169】

作為聚合觸媒(G)，沒有特別之限定，可舉例如咪唑觸媒及磷系觸媒。此等觸媒可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，宜為咪唑觸媒。

【0170】

作為咪唑觸媒，沒有特別之限定，可舉例如、2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基咪唑、1-氰基乙基-2-苯基咪唑、1-氰基乙基-2-苯基咪唑、1-氰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基-4,5-二羥基甲基咪唑、2-苯基-4-甲基-5-羥基甲基咪唑、2,3-二氫-1H-吡咯[1,2-a]苯并咪唑(四國化成工業(股)公司製品之「TBZ」)、2,4,5-三苯基咪唑(東京化成工業(股)公司製品之「TPIZ」)等咪唑類。此等之中，考慮防止環氧成分單獨聚合之觀點，宜為2,3-二氫-1H-吡咯[1,2-a]苯并咪唑及/或2,4,5-三苯基咪唑。

【0171】

聚合觸媒(G)(宜為咪唑觸媒)之使用量係沒有特別之限定，例如相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及化合物(H)之總量100質量份，為0.1~10質量份。

考慮使聚合物(E)之重量平均分子量大之觀點，聚合觸媒(G)之使用量宜為0.5質量份以上，更宜為4.0質量份以下。

【0172】

作為有機溶劑，沒有特別之限定，例如可使用極性溶劑或無極性溶劑。就極性溶劑而言，沒有特別之限制，可舉例如丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁基酮等酮類；丙二醇一甲基醚、丙二醇一甲基醚乙酸酯等賽珞蘇系溶劑；乳酸乙酯、乙酸甲酯、乙酸乙酯、乙酸丁酯、乙酸異戊酯、乳酸乙酯、甲氧基丙酸甲酯、羥基異丁酸甲酯等酯系溶劑；二甲基乙醯胺、二甲基甲醯胺等醯胺類等。作為無極性溶劑，沒有特別之限制，可舉例如甲苯、二甲苯等芳香族烴等。此等溶劑可單獨使用1種，或組合2種以上使用。

【0173】

有機溶劑之使用量係沒有特別之限定，例如相對於烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)、環氧化合物(C)及化合物(H)之總量100質量份，為50~150質量份。

【0174】

反應溫度係沒有特別之限定，例如可為100~170°C。反應時間亦沒有特別之限定，例如可為3~8小時。

【0175】

本步驟中之反應結束後，亦可藉由慣用之方法從反應混合物將聚合物(E)予以分離精製。

【0176】

如上述，第2實施形態之硬化性組成物在聚合物(E)之外，因應需求亦可更含有化合物(H)。藉由在聚合物(E)之外，更含有化合物(H)，第2實施形態之硬化性組成物有耐熱性、低熱膨脹性、耐藥品性及銅箔剝離強度更改善的傾向。

【0177】

在第2實施形態之硬化性組成物含有聚合物(E)及化合物(H)之情況，第2實施形態之硬化性組成物中之聚合物(E)之含量，相對於聚合物(E)及化合物(H)之合計100質量%，宜為5~60質量%，更宜為10~55質量%，進一步宜為20~50質量%。若含量為上述範圍內，硬化性組成物係有相容性更優良，能平衡良好地展現耐熱性、低熱膨脹性、耐藥品性及銅箔剝離強度之傾向。

【0178】

在第2實施形態之硬化性組成物含有聚合物(E)及化合物(H)之情況，第2實施形態之硬化性組成物中之化合物(H)之含量，相對於聚合物(E)及化合物(H)之合計100質量%，宜為20~80質量%，更宜為35~75質量%，進一步宜為45~65質量%。

【0179】

此外，第2實施形態之硬化性組成物中之環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，係與第1實施形態之硬化性組成物中之含量相同。環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，藉由為上述範圍，有耐熱性、低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性更優良的傾向。

【0180】

本實施形態之硬化性組成物，在不妨害本實施形態之硬化性組成物中之效果的情況下，亦可更含有其他樹脂。就其他樹脂而言，可舉例如氧雜環丁烷樹脂、苯并噁吡啶化合物、及具有可聚合之不飽和基之化合物等。此等樹脂可單獨使用1種或組合2種以上使用。

【0181】

作為氧雜環丁烷樹脂，可舉例如氧雜環丁烷、2-甲基氧雜環丁烷、2,2-二甲基氧雜環丁烷、3-甲基氧雜環丁烷、3,3-二甲基氧雜環丁烷等烷基氧雜環丁烷、3-甲基-3-甲氧基甲基氧雜環丁烷、3,3'-二(三氟甲基)全氟氧雜環丁烷、2-氯甲基氧雜環丁烷、3,3-雙(氯甲基)氧雜環丁烷、聯苯型氧雜環丁烷、東亞合成(股)公司製品之「OXT-101」、「OXT-121」等。

【0182】

本說明書中之「苯并呋啶化合物」係指1分子中具有2個以上之二氫苯并呋啶環之化合物。就苯并呋啶化合物而言，可列舉小西化學(股)公司製品之「雙酚F型苯并呋啶BF-BXZ」、「雙酚S型苯并呋啶BS-BXZ」等。

【0183】

就具有可聚合之不飽和基之化合物而言，可舉例如乙烯、丙烯、苯乙烯、二乙烯基苯、二乙烯基聯苯等乙烯基化合物；(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸2-羥基乙酯、(甲基)丙烯酸2-羥基丙酯、聚丙二醇二(甲基)丙烯酸酯、三羥甲基丙烷二(甲基)丙烯酸酯、三羥甲基丙烷三(甲基)丙烯酸酯、新戊四醇四(甲基)丙烯酸酯、二新戊四醇六(甲基)丙烯酸酯等1元或多元醇之(甲基)丙烯酸酯類；雙酚A型環氧(甲基)丙烯酸酯、雙酚F型環氧(甲基)丙烯酸酯等環氧(甲基)丙烯酸酯類；苯并環丁烯樹脂等。

【0184】**[無機填充材]**

本實施形態之硬化性組成物，考慮更改善低熱膨脹性之觀點，宜更含有無機填充材。就無機填充材而言，沒有特別之限定，可舉例如二氧化矽類、矽化合物

(例如白碳等)、金屬氧化物(例如氧化鋁、鈦白、氧化鋅、氧化鎂、氧化鋇等)、金屬氮化物(例如氮化硼、凝聚氮化硼、氮化矽、氮化鋁等)、金屬硫酸化物(例如硫酸鋇等)、金屬氫氧化物(例如氫氧化鋁、氫氧化鋁加熱處理品(例如將氫氧化鋁進行加熱處理，去除一部分結晶水者)、軟水鋁石、氫氧化鎂等)、鋁化合物(例如氧化鋁、鋁酸鋅等)、鋅化合物(例如硼酸鋅、錫酸鋅等)、黏土、高嶺土、滑石、煨燒黏土、煨燒高嶺土、煨燒滑石、雲母、E-玻璃、A-玻璃、NE-玻璃、C-玻璃、L-玻璃、D-玻璃、S-玻璃、M-玻璃G20、玻璃短纖維(包含E玻璃、T玻璃、D玻璃、S玻璃、Q玻璃等玻璃微粉末類。)、中空玻璃、球狀玻璃等。此等無機填充材可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，考慮更改善低熱膨脹性之觀點，無機填充材宜為選自於由二氧化矽類、金屬氫氧化物及金屬氧化物構成之群組中之至少1種，更宜為含有選自於由二氧化矽類、軟水鋁石及氧化鋁構成之群組中之1種以上，進一步宜為二氧化矽類。

【0185】

就二氧化矽類而言，可舉例如天然二氧化矽、熔融二氧化矽、合成二氧化矽、AEROSIL、中空二氧化矽等。此等二氧化矽類可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，考慮分散性之觀點，宜為熔融二氧化矽，考慮填充性及流動性之觀點，更宜為具有不同粒度之2種以上之熔融二氧化矽。

【0186】

無機填充材之含量，考慮更改善低熱膨脹性之觀點，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為50~1000質量份，更宜為70~500質量份，進一步宜為100~300質量份。

【0187】

[矽烷偶聯劑]

本實施形態之硬化性組成物，亦可更含有矽烷偶聯劑。本實施形態之硬化性組成物，藉由含有矽烷偶聯劑，有能更改善無機填充材之分散性，能更改善本實施形態之硬化性組成物之成分、與後述基材之黏接強度的傾向。

【0188】

就矽烷偶聯劑而言沒有特別之限定，可列舉一般於無機物之表面處理中使用之矽烷偶聯劑，可列舉胺基矽烷系化合物(例如 γ -胺基丙基三乙氧基矽烷、N- β -(胺基乙基)- γ -胺基丙基三甲氧基矽烷等)、環氧矽烷系化合物(例如 γ -環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷等)、丙烯酸矽烷系化合物(例如 γ -丙烯醯基丙基三甲氧基矽烷等)、陽離子矽烷系化合物(例如N- β -(N-乙基苄基胺基乙基)- γ -胺基丙基三甲氧基矽烷鹽酸鹽等)、苯乙烯基矽烷系化合物、苯基矽烷系化合物等。矽烷偶聯劑可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，矽烷偶聯劑宜為環氧矽烷系化合物。就環氧矽烷系化合物而言，可舉例如信越化學工業(股)公司製品之「KBM-403」、「KBM-303」、「KBM-402」、「KBE-403」等。

【0189】

矽烷偶聯劑之含量係沒有特別之限定，相對於樹脂固體成分100質量份，可為0.1~5.0質量份。

【0190】

[濕潤分散劑]

本實施形態之硬化性組成物亦可更含有濕潤分散劑。硬化性組成物藉由含有濕潤分散劑，有更改善填充材之分散性的傾向。

【0191】

就濕潤分散劑而言，只要是用以使填充材分散之公知之分散劑(分散安定劑)即可，可舉例如BYK JAPAN KK.製之DISPER BYK-110、111、118、180、161、BYK-W996、W9010、W903等。

【0192】

濕潤分散劑之含量係沒有特別之限定，相對於樹脂固體成分100質量份，宜為0.5質量份以上5.0質量份以下。

【0193】**[溶劑]**

本實施形態之硬化性組成物亦可更含有溶劑。本實施形態之硬化性組成物藉由含有溶劑，有硬化性組成物之製備時之黏度下降、操作性(處理性)更改善、或對於基材之含浸性更改善的傾向。

【0194】

就溶劑而言，只要能溶解硬化性組成物中之各成分之一部分或全部，並沒有特別之限定，可舉例如酮類(丙酮、甲基乙基酮等)、芳香族烴類(例如甲苯、二甲苯等)、醯胺類(例如二甲基甲醯胺等)、丙二醇一甲基醚及其乙酸酯等。此等溶劑可單獨使用1種、或組合2種以上使用。

【0195】

就本實施形態之硬化性組成物之製造方法而言，沒有特別之限定，可舉例如將各成分一次地或分次地摻合至溶劑、進行攪拌之方法。此時，為了將各成分均勻地溶解或分散，可使用攪拌、混合、混練處理等公知之處理。

【0196】**[用途]**

本實施形態之硬化性組成物係如同上述，能展現優良之低熱膨脹性、銅箔剝離強度及耐藥品性。因此，本實施形態之硬化性組成物可適合使用於預浸體、覆金屬箔疊層板及印刷配線板。本實施形態之硬化性組成物，藉由使其硬化能適用於上述之用途中。亦即，本實施形態之硬化物係使本實施形態之硬化性組成物硬化而成。

【0197】

此外，尤其在上述用途中，第2實施形態之硬化性組成物係在聚合物(E)及環狀碳二亞胺化合物(D)之外，至少更含有環氧化合物(C)(與聚合物(E)中之構成單元(C)為另外存在之環氧化合物(C))較為理想。

該情況中，聚合物(E)就來自環氧化合物(C)之單元而言，宜具有來自上述2官能環氧化合物之單元，更宜為具有來自上述聯苯型環氧樹脂之單元，更宜為具有來自上式(b2)表示之化合物(化合物(b2))之單元，進一步宜為具有來自 R^a 之數目為0之化合物(b2)、及烷基之 R^a 之數目為4之化合物(b2)(就市售品而言，例如三菱化學(股)製之商品名「YL-6121H」等)的單元。

此外，就與聚合物(E)中之構成單元(C)為另外存在之環氧化合物(C)，宜含有前述之仲萘基醚型環氧樹脂(就市售品而言，例如DIC(股)公司製品之「HP-6000」等)及/或萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂(就市售品而言，例如DIC(股)公司製品之「HP-9540」等)。

【0198】

[預浸體]

本實施形態之預浸體包含基材、及含浸或塗布至該基材之本實施形態之硬化性組成物。預浸體可為如同上述藉由公知方法而獲得之預浸體，具體而言，能

將本實施形態之硬化性組成物含浸或塗布至基材後，藉由以100~200°C條件來加熱乾燥使其半硬化(B階段化)來獲得。

【0199】

本實施形態之預浸體亦包含將半硬化狀態之預浸體以180~230°C之加熱溫度及60~180分之加熱時間的條件使其熱硬化而獲得之硬化物之形態。

【0200】

預浸體中之硬化性組成物之含量，相對於預浸體之總量，以預浸體之固體成分換算，宜為30~90體積%，更宜為35~85體積%，進一步宜為40~80體積%。藉由硬化性組成物之含量為上述範圍內，有更改善成形性之傾向。此外，此處所述之硬化性組成物之含量計算，亦包含本實施形態之硬化性組成物之硬化物。此外，此處所述之預浸體之固體成分係指從預浸體中排除了溶劑後之成分，例如填充材係包含於預浸體之固體成分中。

【0201】

就基材而言，沒有特別之限定，可舉例如各種印刷配線板之材料中使用之公知之基材。就基材之具體例而言，可列舉玻璃基材、玻璃以外之無機基材(例如以石英等玻璃以外之無機纖維所構成之無機基材)、有機基材(例如以全芳香族聚醯胺、聚酯、聚對仲苯基苯并噁唑、聚醯亞胺等有機纖維所構成之有機基材)等。此等基材可單獨使用1種、或組合2種以上使用。此等之中，考慮加熱尺寸安定性更優良之觀點，宜為玻璃基材。

【0202】

就構成玻璃基材之纖維而言，可舉例如E玻璃、D玻璃、S玻璃、T玻璃、Q玻璃、L玻璃、NE玻璃、HME玻璃等之纖維。此等之中，構成玻璃基材之纖維，考

慮強度及低吸水性更優良之觀點，宜為選自於由E玻璃、D玻璃、S玻璃、T玻璃、Q玻璃、L玻璃、NE玻璃、及HME玻璃構成之群組中之1種以上之纖維。

【0203】

就基材之形態而言，沒有特別之限定，可舉例如織布、不織布、粗紗、切股氈(chopped strand mat)、表面氈(surfacing mat)等形態。就織布之織法而言，沒有特別之限定，例如已知平織、魚子織、斜紋織等，可取決於目的之用途、性能從此等公知者中適當地選擇並使用。此外，適宜使用將此等經開纖處理、以矽烷偶聯劑等經表面處理而得之玻璃織布。基材之厚度、質量係沒有特別之限定，通常適宜使用約0.01~0.1mm。

【0204】

[覆金屬箔疊層板]

本實施形態之覆金屬箔疊層板係包含：含有本實施形態之預浸體的疊層體、及配置於該疊層體之單面或兩面之金屬箔。該疊層體能以1個預浸體形成，亦能以複數個預浸體形成。此外，該疊層體亦可含有本實施形態之預浸體以外之樹脂片。

【0205】

就金屬箔(導體層)而言，只要是各種印刷配線板材料中使用之金屬箔即可，可舉例如銅、鋁等金屬箔，就銅金屬箔而言，可列舉壓延銅箔、電解銅箔等銅箔。導體層之厚度例如為1~70 μm ，宜為1.5~35 μm 。

【0206】

覆金屬箔疊層板之成形方法及其成形條件係沒有特別之限定，能使用一般之印刷配線板用疊層板及多層板之方法及條件。例如在疊層板(上述疊層體)或覆金屬箔疊層板之成形時能使用多段壓合機、多段真空壓合機、連續成形機、高壓釜成形機等。

此外，在疊層板(上述疊層體)或覆金屬箔疊層板之成形(疊層成形)中，一般而言溫度為100~300°C、壓力為面壓2~100kgf/cm²、加熱時間為0.05~5小時之範圍。另外，因應需求，亦能於150~300°C之溫度進行後硬化。尤其在使用了多段壓合機之情況，考慮充分促進預浸體之硬化之觀點，宜為溫度200°C~250°C、壓力10~40kgf/cm²、加熱時間80分~130分，更宜為溫度215°C~235°C、壓力25~35kgf/cm²、加熱時間90分~120分。此外，藉由組合上述預浸體、及另外製作之內層用之配線板進行疊層成形，亦能製作多層板。

【0207】

[印刷配線板]

本實施形態之印刷配線板係包含：含有本實施形態之預浸體的絕緣層、及形成於該絕緣層之表面的導體層。此處，絕緣層亦可為本實施形態之預浸體經硬化而得之硬化物。例如能藉由將本實施形態之覆金屬箔疊層板之金屬箔蝕刻成預定之配線圖案而製成導體層來形成本實施形態之印刷配線板。

【0208】

本實施形態之印刷配線板，具體而言，例如能藉由以下方法製造。首先，準備本實施形態之覆金屬箔疊層板。將覆金屬箔疊層板之金屬箔蝕刻成預定之配線圖案製作具有導體層(內層電路)之內層基板。然後，於內層基板之導體層(內裝電路)表面，按後述的順序疊層預定數目之絕緣層、及外層電路用之金屬箔，進行加熱加壓予以成形為一體(疊層成形)，藉此獲得疊層體。此外，疊層成形之方法及其成形條件係與上述疊層板及覆金屬箔疊層板中之疊層成形之方法及其成形條件相同。然後，對於疊層體實施通孔(through hole)或介層孔(via hole)用之鑽孔加工，於藉此形成之孔之壁面形成用以使導體層(內裝電路)與外層電路用之金

屬箔導通的鍍敷金屬皮膜。然後，將外層電路用之金屬箔蝕刻為預定之配線圖案製作具有導體層(外層電路)之外層基板。以如此方式製作印刷配線板。

【0209】

此外，未使用覆金屬箔疊層板之情況，亦可於上述絕緣層形成成為電路之導體層來製作印刷配線板。此時，導體層之形成亦可使用無電解鍍敷之方法。

[實施例]

【0210】

以下，藉由實施例來更詳細地說明本發明，但本發明不限定為此等實施例。

(製造例1)環狀碳二亞胺化合物之合成

將鄰硝基苯酚(0.11mol)、四溴化新戊四醇(0.025mol)、碳酸鉀(0.33mol)、及N,N-二甲基甲醯胺(DMF)200ml於N₂環境下加入至設置了攪拌裝置及加熱裝置之反應裝置中，於130°C使其反應12小時。之後，藉由減壓除去DMF，將獲得之固形物溶解於二氯甲烷200ml，以水100ml進行3次分液操作。將有機層藉由硫酸鈉5g進行脫水，藉由減壓除去二氯甲烷，獲得中間產物(硝基體)。

【0211】

然後，將獲得之中間產物(硝基體、0.1mol)、5%鈀碳(Pd/C)(2g)、及乙醇/二氯甲烷(70/30)400ml加入至設置了攪拌裝置之反應裝置中，進行5次氫取代，於25°C在持續供給氫氣的狀態下使其反應，在氫不再減少之時間點結束反應。回收Pd/C，除去混合溶劑，獲得中間產物(胺體)。

【0212】

然後，於設置了攪拌裝置、加熱裝置、及滴液漏斗之反應裝置中，在N₂環境下，加入二溴化三苯基磷(0.11mol)及1,2-二氯乙烷150ml並攪拌。對於其，於25°C緩慢地

滴加將中間產物(胺體、0.025mol)及三乙基胺(0.25mol)溶解於1,2-二氯乙烷50ml而得之溶液。滴下結束後，於70°C使其反應5小時。之後，將反應溶液過濾，將濾液以水100ml進行5次分液操作。將有機層以硫酸鈉5g進行脫水，藉由減壓除去1,2-二氯乙烷，獲得中間產物(三苯基磷體)。

【0213】

然後，於設置了攪拌裝置及滴液漏斗之反應裝置中，在N₂環境下，添加二第三丁基二碳酸酯(0.11mol)、N,N-二甲基-4-胺基吡啶(0.055mol)、及二氯甲烷150ml，並攪拌。對於其，於25°C緩慢地滴加溶解了中間產物(0.025mol)的二氯甲烷100ml。滴加後，使其反應12小時。之後，除去二氯甲烷，將獲得之固形物予以精製，藉此獲得環狀碳二亞胺化合物。

【0214】

(實施例1)

於裝設了溫度計及戴氏冷凝器(Dimroth condenser)之三口燒瓶中，添加二烯丙基雙酚A(DABPA、大和化成工業(股))5.0質量份、雙甲酚萘(BCF、大阪瓦斯化學(股))5.4質量份、環氧改性聚矽氧(B)1(X-22-163、信越化學工業(股)、官能基當量200g/mol)3.7質量份、環氧改性聚矽氧(B)2(KF-105、信越化學工業(股)、官能基當量490g/mol)11.0質量份、聯苯型環氧樹脂(C)1(YL-6121H、三菱化學(股))4.9質量份、作為溶劑之丙二醇一甲基醚乙酸酯(DOWANOLPMA、陶氏化學日本(股))30質量份，藉由油浴加熱至120°C並攪拌。確認原料已溶解至溶劑後，添加咪唑觸媒g1(TBZ、四國化成工業(股))0.3質量份，升溫至140°C後，攪拌5小時，冷卻後，獲得苯氧基聚合物溶液(固體成分50質量%)(聚合物生成步驟)。

【0215】

此外，二烯丙基雙酚A相當於「烯基酚(A)」，環氧改性聚矽氧(B)1及環氧改性聚矽氧(B)2相當於「環氧改性聚矽氧(B)」，聯苯型環氧樹脂(C)1相當於「環氧化合物(C)」。此外，苯氧基聚合物溶液中，含有聚合物(E)，聚合物(E)含有來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、及來自環氧化合物(C)之構成單元。以下，也將聚合物(E)稱為苯氧基聚合物。

相對於聚合物(E)，來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元之含量為48.8質量%。

來自環氧化合物(C)之構成單元之含量相對於來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元及來自環氧化合物(C)之構成單元之總量為25質量%。

【0216】

重量平均分子量Mw之測定：

將如上述方式獲得之苯氧基聚合物之重量平均分子量Mw，藉由如下述方式進行測定。將使苯氧基聚合物溶液0.5g溶解於2g之THF而得的溶液之20 μ L注入至高速液相層析儀(島津製作所製、泵：LC-20AD)進行分析。管柱使用昭和電工製Shodex GPC KF-804(長度30cm \times 內徑8mm)、Shodex GPC KF-803(長度30cm \times 內徑8mm)、Shodex GPC KF-802(長度30cm \times 內徑8mm)、Shodex GPC KF-801(長度30cm \times 內徑8mm)共4支，作為移動相使用THF(溶劑)，流速設為1mL/min，檢測器使用RID-10A。重量平均分子量Mw係藉由GPC法將標準聚苯乙烯作為標準物質來求得。如上述方式測定之苯氧基聚合物之重量平均分子量Mw為12,000。

【0217】

對於該苯氧基聚合物溶液30質量份(固體成分換算)，混合酚醛清漆型氰酸酯化合物(PT-30、Lonza(股))14質量份、酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))17質量份、雙馬來醯亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)6質

量份、萘甲酚酚醛清漆型環氧化合物(HP-9540、DIC(股))28質量份、製造例1獲得之環狀碳二亞胺化合物5質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))140質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布至S玻璃織布(厚度100 μm)，於165°C加熱乾燥5分鐘，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量47.4質量%的預浸體(預浸體製造步驟)。

【0218】

(實施例2)

在預浸體製造步驟中，將酚醛清漆型氰酸酯化合物(PT-30、Lonza(股))14質量份變更為13質量份、酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))17質量份變更為16質量份、雙馬來醯亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)6質量份變更為5質量份、萘甲酚酚醛清漆型環氧化合物(HP-9540、DIC(股))28質量份變更為26質量份、製造例1獲得之環狀碳二亞胺化合物5質量份變更為10質量份，除此以外，以與實施例1同樣的操作，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量47.4質量%之預浸體。

【0219】

(實施例3)

在聚合物生成步驟中，將二烯丙基雙酚A(DABPA、大和化成工業(股))5.0質量份變更為5.1質量份、雙甲酚萘(BCF、大阪瓦斯化學(股))5.4質量份變更為5.6質量份、環氧改性聚矽氧(B)1(X-22-163、信越化學工業(股)、官能基當量200g/mol)3.7質量份變更為4.2質量份、環氧改性聚矽氧(B)2(KF-105、信越化學工業(股)、官能基當量490g/mol)11.0質量份變更為8.5質量份、聯苯型環氧樹脂(C)1(YL-6121H、三菱化學(股))4.9質量份

變更為5.6質量份，除此以外，藉由與實施例1同樣的操作，獲得苯氧基聚合物溶液(固體成分50質量%)(聚合物生成步驟)。

【0220】

將該苯氧基聚合物溶液藉由油浴加熱至100°C後，添加胺基三吡啶醌清漆(LA-3018)1.0質量份，攪拌2小時，冷卻後，獲得改性苯氧基聚合物溶液(固體成分50質量%)(聚合物改性步驟)。此外，改性苯氧基聚合物溶液中含有聚合物(E)，該聚合物(E)含有來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、來自環氧化合物(C)之構成單元、及來自胺基三吡啶醌清漆之構成單元。與上述同樣方式測定之改性苯氧基聚合物之重量平均分子量Mw係12,000。聚合物改性步驟亦能與聚合物生成步驟連續地進行。

【0221】

對於該改性苯氧基聚合物溶液30質量份(固體成分換算)，混合醌醌清漆型馬來醌亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))8質量份、雙馬來醌亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)8質量份、伸萘基醚型環氧化合物(HP-6000、DIC(株))25質量份、萘酚芳烷基型酚化合物(SN495V、日鐵化學(股))24質量份、製造例1獲得之環狀碳二亞胺化合物5質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))200質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，以150°C進行3分鐘加熱乾燥，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量48.8質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0222】

(實施例4)

對於與實施例3同樣之方式獲得之改性苯氧基聚合物溶液30質量份(固體成分換算)，混合酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))7.5質量份、雙馬來醯亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)7.5質量份、伸萘基醚型環氧化合物(HP-6000、DIC(股))23質量份、萘酚芳烷基型酚化合物(SN49 5V、日鐵化學(股))22質量份、製造例1獲得之環狀碳二亞胺化合物10質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))200質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，於140°C進行3分鐘加熱乾燥，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量48.8質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0223】

(比較例1)

對於以與實施例1同樣的方式獲得之苯氧基聚合物溶液30質量份(固體成分換算)，混合酚醛清漆型氰酸酯化合物(PT-30、Lonza(股))15質量份、酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(株))18質量份、雙馬來醯亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)6質量份、萘甲酚酚醛清漆型環氧化合物(HP-9540、DIC(株))30質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))140質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(株))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，以165°C進行5分鐘加熱乾燥，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量47.4質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0224】

(比較例2)

對於以與實施例3同樣之方式獲得之改性苯氧基聚合物溶液30質量份(固體成分換算)，混合酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))9質量份、雙馬來醯亞胺化合物(BMI-80、K·I Chemical Industry Co.,LTD.)9質量份、伸萘基醚型環氧化合物(HP-6000、DIC(股))27質量份、萘酚芳烷基型酚化合物(SN495V、日鐵化學(股))25質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))200質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，於140°C加熱乾燥3分鐘，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量48.8質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0225】

(比較例3)

混合酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))22.5質量份、伸萘基醚型環氧化合物(HP-6000、DIC(股))35.1質量份、萘酚芳烷基型酚化合物(SN495V、日鐵化學(股))33.5質量份、製造例1獲得之環狀碳二亞胺化合物9.1質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))200質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，於140°C加熱乾燥3分鐘，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量48.8質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0226】

(比較例4)

混合酚醛清漆型馬來醯亞胺化合物(BMI-2300、大和化成工業(股))24.6質量份、伸萘基醚型環氧化合物(HP-6000、DIC(股))38.6質量份、萘酚芳烷基型酚化合

物(SN495V、日鐵化學(股))36.8質量份、球狀二氧化矽(SC-2050MB、Admatechs.(股))200質量份、濕潤分散劑(DISPERBYK-161、BYK Japan(股))1質量份、矽烷偶聯劑(KMB-403、信越化學工業(股))5質量份，而獲得清漆。將該清漆含浸塗布於S玻璃織布(厚度100 μ m)，於140 $^{\circ}$ C進行3分鐘加熱乾燥，獲得樹脂組成物固體成分(包含填充材)之含量48.8質量%之預浸體(預浸體製造步驟)。

【0227】

[覆金屬箔疊層板之製作]

將在各實施例1~4及比較例1~4獲得之2片預浸體重疊，進一步地於上下方配置具有12 μ m之厚度之電解銅箔(3EC-VLP、三井金屬礦業(股)製)，以壓力30kgf/cm²、溫度230 $^{\circ}$ C進行100分鐘之疊層成形，作為覆金屬箔疊層板，獲得具有0.2mm之厚度之包含絕緣層之覆銅箔疊層板。獲得之覆銅箔疊層板之特性藉由以下所示之方法予以評價。結果表示於表1。

【0228】

[Tg(玻璃轉移溫度)]

將上述方法獲得之覆金屬箔疊層板(20mm \times 5mm \times 0.2mm)之兩面的銅箔藉由蝕刻除去後，依循JISC6481，以動態黏彈性測定裝置(TA Instruments.製)測定玻璃轉移溫度(Tg)、(單位： $^{\circ}$ C)。

【0229】

[CTE(線熱膨脹係數)]

對於覆金屬箔疊層板之絕緣層，測定玻璃布之縱方向之線熱膨脹係數。具體而言，藉由蝕刻除去上述方法獲得之覆銅箔疊層板(10mm \times 6mm \times 0.2mm)之兩面之銅箔後，於220 $^{\circ}$ C之恆溫槽中加熱2小時，除去成形所致之應力。之後，使用熱

膨脹率測定裝置(LINSEIS製水平膨脹計)以每分鐘10°C從40°C升溫至320°C，測定從60°C至260°C的線熱膨脹係數(CTE)、(單位：ppm/°C)。

【0230】

[銅箔剝離強度(銅箔密接性)]

使用上述方法獲得之覆銅箔疊層板(10mm×150mm×0.2mm)，依循JIS C6481，測定銅箔剝離強度(銅箔密接性)、(單位：kN/m)。

【0231】

[耐去污跡(Desmear)性]

藉由蝕刻除去上述方法獲得之覆銅箔疊層板(50mm×50mm×0.2mm)之兩面之銅箔後，於為膨潤液之Atotech Japan K.K.之Swelling Dip Securiganth P於80°C浸漬10分鐘，然後於為粗化液之Atotech Japan K.K.之concentrates Compact CP於80°C浸漬5分鐘，最後於為中和液之Atotech Japan K.K.之Reduction Conditioner Securiganth P500於45°C浸漬10分鐘。重複進行該處理3次。測定處理前後之覆銅箔疊層板之質量，將處理前之樣本質量作為基準求得質量減少量(單位：質量%)。質量減少量之絕對值越小，則表示耐去污跡性越為優良。

【0232】

[表1]

	實施例1	實施例2	實施例3	實施例4
Tg	266	274	245	254
CTE	6.2	6.1	6.2	6.2
銅箔剝離強度	0.73	0.78	0.54	0.62
耐去污跡性	-4.4	-2.1	-1.8	-1.3

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
Tg	255	235	278	270
CTE	6.3	6.2	7.8	7.9
銅箔剝離強度	0.71	0.51	0.82	0.87
耐去污跡性	-11.8	-3.5	-0.8	-1.5

【0233】

本申請案係基於2021年8月5日向日本專利局提申之日本專利申請案(日本特願2021-128756)，且其內容係納入於此作為參考。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】

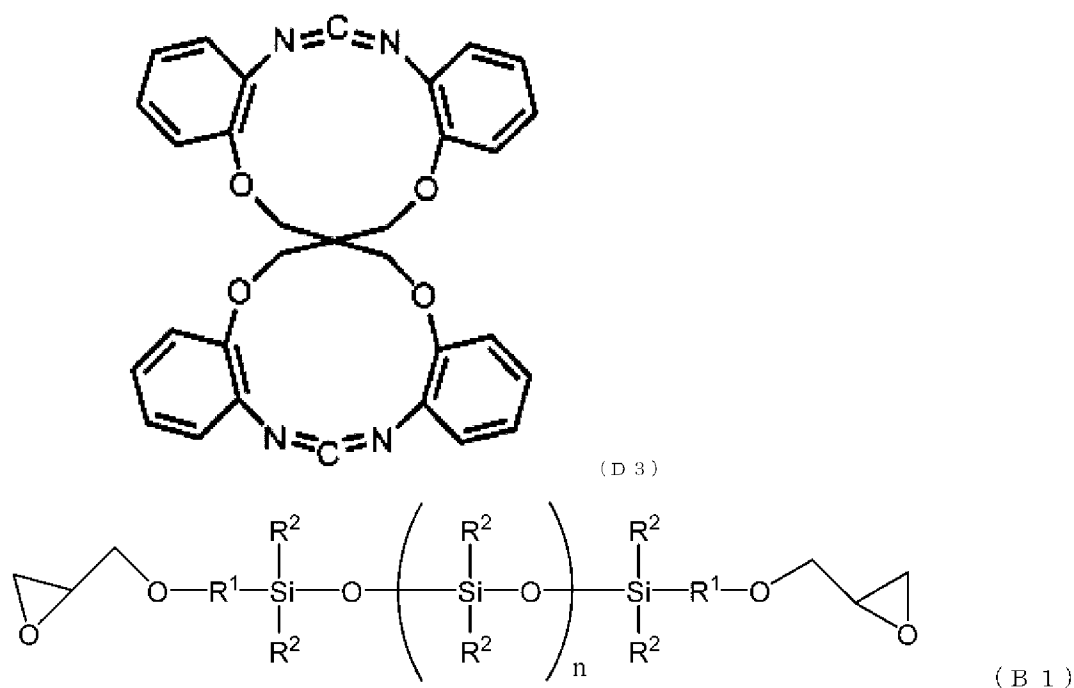
一種硬化性組成物，含有包含來自烯基酚(A)之構成單元、來自環氧改性聚矽氧(B)之構成單元、來自該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)之構成單元之聚合物(E)、及環狀碳二亞胺化合物(D)，

該烯基酚(A)包含二烯丙基雙酚及/或二丙烯基雙酚，

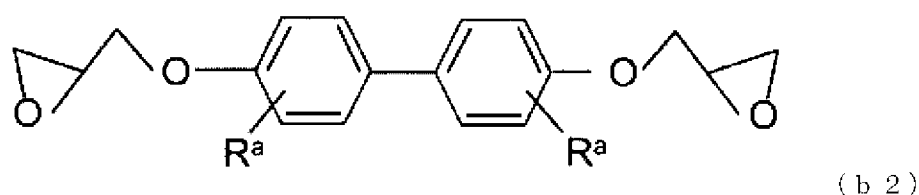
該環氧改性聚矽氧(B)包含下式(B1)表示之環氧改性聚矽氧，

該環氧化合物(C)包含下式(b2)表示之化合物，

該環狀碳二亞胺化合物(D)具有下式(D3)表示之環狀結構



式中， R^1 係各自獨立地表示單鍵、伸烷基、伸芳基或伸芳烷基， R^2 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或苯基， n 表示0~100之整數；



式(b2)中， R^a 係各自獨立地表示碳數1~10之烷基或氫原子；

該聚合物(E)係至少藉由該環氧改性聚矽氧(B)及該環氧化合物(C)具有之環氧基與該烯基酚(A)具有之羥基之間的加成反應、及獲得之加成反應物具有之羥基與環氧改性聚矽氧(B)及環氧化合物(C)具有之環氧基之間的加成反應而得的聚合物。

【請求項2】

如請求項1之硬化性組成物，其中，該聚合物(E)之重量平均分子量為 $3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^4$ 。

【請求項3】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，該聚合物(E)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，為5~50質量%。

【請求項4】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，來自該烯基酚(A)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為5~50質量%。

【請求項5】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，來自該環氧改性聚矽氧(B)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為20~60質量%。

【請求項6】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，來自該環氧化合物(C)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為5~40質量%。

【請求項7】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，該環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，為1.0~30質量%。

【請求項8】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，該烯基酚(A)之每1分子之平均酚基數目為1以上且小於3，該環氧改性聚矽氧(B)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3，該環氧化合物(C)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3。

【請求項9】

如請求項1或2之硬化性組成物，其中，該環氧改性聚矽氧(B)包含具有140~250g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧。

【請求項10】

如請求項1之硬化性組成物，其中，該聚合物(E)之重量平均分子量為 $3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^4$ ，該聚合物(E)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，為5~50質量%，

來自該烯基酚(A)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為5~50質量%，

來自該環氧改性聚矽氧(B)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為20~60質量%，

來自該環氧化合物(C)之構成單元之含量，相對於該聚合物(E)之總質量，為5~40質量%，

該環狀碳二亞胺化合物(D)之含量，相對於樹脂固體成分100質量%，為1.0~30質量%，

該烯基酚(A)之每1分子之平均酚基數目為1以上且小於3，該環氧改性聚矽氧(B)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3，該環氧化合物(C)之每1分子之平均環氧基數目為1以上且小於3，

該環氧改性聚矽氧(B)包含具有140~250g/mol之環氧當量的環氧改性聚矽氧。

【請求項11】

如請求項1、2或10之硬化性組成物，更含有選自於由烯基酚(A)、環氧改性聚矽氧(B)及該環氧改性聚矽氧(B)以外之環氧化合物(C)構成之群組中之1種以上。

【請求項12】

如請求項11之硬化性組成物，其中，該環氧化合物(C)包含萘甲酚酚醛清漆型環氧樹脂及/或仲萘基醚型環氧樹脂。

【請求項13】

如請求項1、2或10之硬化性組成物，更含有選自於由馬來醯亞胺化合物、氰酸酯化合物、該烯基酚(A)以外之酚化合物(F)及經烯基取代之納迪克醯亞胺(nadiimide)化合物構成之群組中之1種以上之化合物(H)。

【請求項14】

如請求項1、2或10之硬化性組成物，更含有無機填充材，該無機填充材包含選自於由二氧化矽類、軟水鋁石(Boehmite)及氧化鋁構成之群組中之1種以上。

【請求項15】

一種預浸體，包含：

基材、及

含浸或塗布至該基材之如請求項1至14中任一項之硬化性組成物。

【請求項16】

一種覆金屬箔疊層板，包含：

含有如請求項15之預浸體的疊層體、及

配置於該疊層體之單面或兩面之金屬箔。

【請求項17】

一種印刷配線板，包含：

含有如請求項15之預浸體的絕緣層、及
形成於該絕緣層之表面的導體層。