



(21) 申請案號：110116225

(22) 申請日：中華民國 110 (2021) 年 05 月 05 日

(51) Int. Cl. : *C08G61/10 (2006.01)*      *C08G59/62 (2006.01)*  
*C08L65/00 (2006.01)*      *C08L63/00 (2006.01)*  
*C08L79/04 (2006.01)*      *C08K5/3415 (2006.01)*  
*C09K3/10 (2006.01)*      *H01L23/29 (2006.01)*  
*H01L23/31 (2006.01)*      *H01L23/14 (2006.01)*  
*H05K1/03 (2006.01)*      *C08J5/24 (2006.01)*  
*B32B27/00 (2006.01)*

(30) 優先權：2020/05/11      日本      2020-083218

(71) 申請人：日商日鐵化學材料股份有限公司 (日本) NIPPON STEEL CHEMICAL &amp; MATERIAL CO., LTD. (JP)

日本

南韓商國都化學股份有限公司 (南韓) KUKDO CHEMICAL CO., LTD. (KR)

南韓

(72) 發明人：宗正浩 SOH, MASAHIRO (JP)；石原一男 ISHIHARA, KAZUO (JP)；高島智行 TAKASHIMA, TOMOYUKI (JP)；池仲輝 JEE, JOONG HWI (KR)；朴燦鎬 PARK, CHAN HO (KR)

(74) 代理人：葉璟宗；鄭婷文；詹富閔

申請實體審查：無      申請專利範圍項數：7 項      圖式數：3      共 35 頁

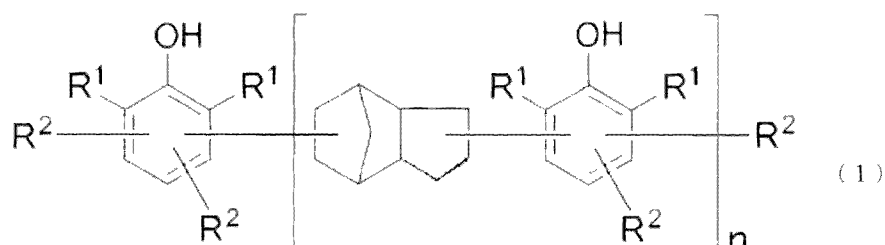
(54) 名稱

熱硬化性樹脂組成物及其硬化物、密封材、電路基板用材料、預浸體、積層板

(57) 摘要

本發明提供一種低介電特性、高耐熱性及高接著性等優異且提供硬化物的熱硬化性樹脂組成物。一種熱硬化性樹脂組成物，含有下述通式 (1) 所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物。

[化 1]



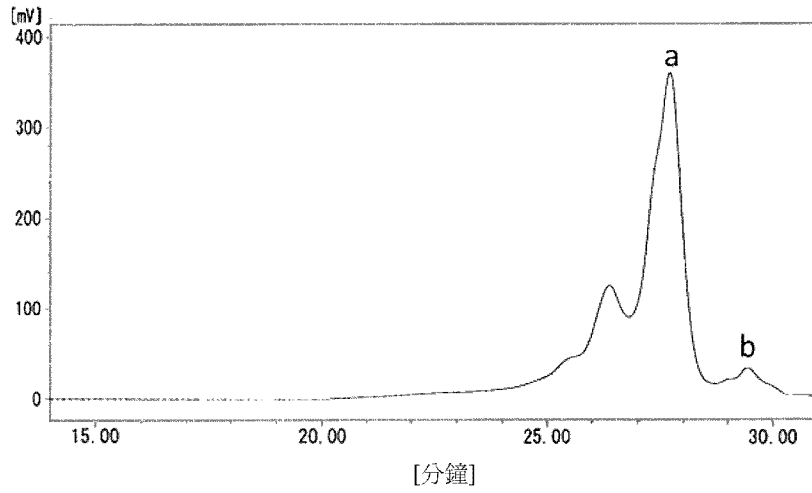
此處，

$R^1$  獨立地表示碳數 1 ~ 8 的烴基，

$R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。

n 表示重覆數，其平均值為 1 ~ 5 的數。

指定代表圖：



【圖 1】

202146511

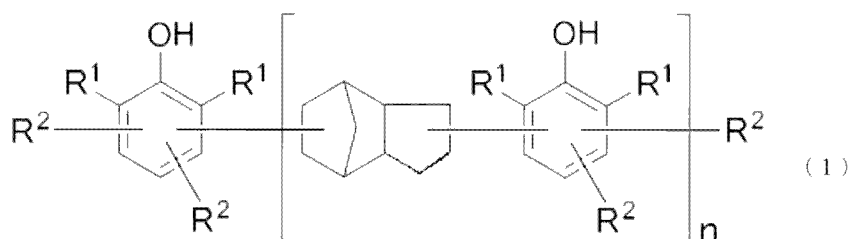
## 【發明摘要】

【中文發明名稱】熱硬化性樹脂組成物及其硬化物

【中文】

本發明提供一種低介電特性、高耐熱性及高接著性等優異且提供硬化物的熱硬化性樹脂組成物。一種熱硬化性樹脂組成物，含有下述通式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物。

[化 1]



此處，

R<sup>1</sup> 獨立地表示碳數 1~8 的烴基，

R<sup>2</sup> 獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。

n 表示重覆數，其平均值為 1~5 的數。

【指定代表圖】圖 1。

【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】 熱硬化性樹脂組成物及其硬化物

【技術領域】

【0001】 本發明是有關於一種低介電特性、高耐熱性、高接著性等優異且提供硬化物的以熱硬化性樹脂為必需成分的熱硬化性樹脂組成物、及自該熱硬化性樹脂組成物獲得的硬化物、密封材、電路基板用材料、預浸體或積層板。

【先前技術】

【0002】 環氧樹脂或酚樹脂等熱硬化性樹脂由於接著性、可撓性、耐熱性、耐化學品性、絕緣性、硬化反應性優異，因此於塗料、土木接著、注塑、電氣電子材料、膜材料等多方面中使用。尤其於作為電氣電子材料之一的印刷配線基板用途中，藉由對環氧樹脂賦予阻燃性而得到廣泛使用。

【0003】 作為印刷配線基板的用途之一的可攜式設備或維持其的基站等基礎設施設備隨著近年來飛躍性的資訊量增大，一直需要高功能化的要求。尤其是，藉由通信標準自 4G 變化為 5G，資訊量進一步增加，預想需要利用高頻進行信號的發送。因此，於印刷配線基板中，為了抑制由高頻引起的信號的衰減，需要介電損耗正切更低的材料。另外，為了應對印刷配線基板的細線化或高多層化，對基質樹脂要求高接著性及高耐熱等特性。為了滿足該些要求，使用先前的環氧樹脂的基質樹脂並不充分，需要功能更高的熱硬化性樹脂。

【0004】 關於印刷配線基板的基質樹脂中所使用的環氧樹脂的低介電常數化，作為原料環氧樹脂，有如下例示：對雙酚 A 等二元酚類進行縮水甘油基化而得的化合物，對三(縮水甘油氧基苯基)烷烴類或胺基苯酚等進行縮水甘油基化而得的化合物等，或者對苯酚酚醛清漆等酚醛清漆類進行縮水甘油基化而得的化合物（專利文獻 1）。

於專利文獻 2、專利文獻 3 中揭示有為了較環氧樹脂而言進一步改善耐熱性或機械特性而使用含醯亞胺基的酚樹脂的方法，藉由含有醯亞胺基而改善了耐熱性。另外，作為適合於改善與基材的接著性的基質樹脂的樹脂，例示有對含醯亞胺基的酚樹脂進行環氧化而得的化合物（專利文獻 4）。另外，於專利文獻 5 中例示有藉由使用馬來醯亞胺化合物、環氧樹脂及特定結構的酚硬化劑而可提供改善了基板的耐熱性或阻燃性的組成物，於專利文獻 6 及專利文獻 7 中例示有藉由使用具有特定的結構的馬來醯亞胺化合物而可提供接著力或介電特性優異的組成物。

但是，於任一文獻中所揭示的環氧樹脂均並不充分滿足基於近年來的高功能化的介電特性的要求，且均並不同時滿足各物性。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1]日本專利特開平 5-43655 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開平 7-33858 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開平 7-10970 號公報

[專利文獻 4]日本專利特開 2010-235823 號公報

[專利文獻 5]國際公開第 2011/126070 號

[專利文獻 6]國際公開第 2016/208667 號

[專利文獻 7]國際公開第 2020/054526 號

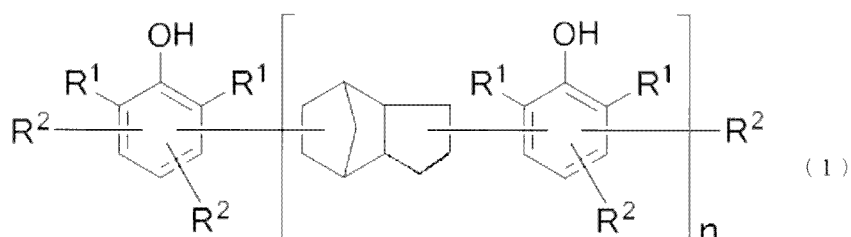
### 【發明內容】

【0006】 因此，本發明所欲解決的課題在於提供一種具有同時滿足低介電性、高耐熱性、高接著性的優異的性能並有效用於積層、成型、接著等用途中的樹脂組成物及其硬化物。

【0007】 為解決所述課題，本發明者進行了努力研究，結果發現含有下述式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物的熱硬化性樹脂組成物同時滿足前所未有的低介電特性、高玻璃轉移溫度（ $T_g$ ）及良好的接著強度，從而完成了本發明。

【0008】 即，本發明是一種熱硬化性樹脂組成物，其特徵在於含有：下述通式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物。

[化 1]



此處，

$R^1$  獨立地表示碳數 1~8 的烴基，

$R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。

$n$  表示重覆數，其平均值為 1~5 的數。

**【0009】** 所述熱硬化性樹脂組成物較佳為更含有環氧樹脂。

**【0010】** 另外，本發明是一種使所述樹脂組成物硬化而成的硬化物，且為一種以使用所述樹脂組成物為特徵的電路基板用材料、密封材、預浸體或積層板。

**【0011】** 關於本發明的樹脂組成物，其硬化物維持良好的接著力，並且可獲得玻璃轉移溫度高的硬化物。另外，介電特性亦優異，且於要求低介電常數、低介電損耗正切的積層板及電子電路基板中發揮良好的特性。

#### **【圖式簡單說明】**

#### **【0012】**

圖 1 是合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物的凝膠滲透層析（Gel Permeation Chromatography，GPC）圖。

圖 2 是合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物的紅外光譜（infrared spectroscopy，IR）圖。

圖 3 是合成例 4 中獲得的環氧樹脂的 GPC 圖。

#### **【實施方式】**

**【0013】** 以下，對本發明進行詳細說明。

本發明中所使用的芳香族多元羥基化合物（以下，亦稱為酚

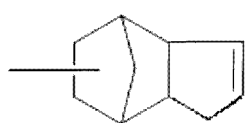
樹脂) 由所述通式 (1) 表示。

於通式 (1) 中， $R^1$  獨立地表示碳數 1~8 的烴基，較佳為碳數 1~8 的烷基、碳數 6~8 的芳基、碳數 7~8 的芳烷基或烯丙基。作為碳數 1~8 的烷基，可為直鏈狀、分支狀、環狀的任一種，例如可列舉甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第三丁基、己基、環己基、甲基環己基等，但並不限定於該些。作為碳數 6~8 的芳基，可列舉苯基、甲苯基、二甲苯基、乙基苯基等，但並不限定於該些。作為碳數 7~8 的芳烷基，可列舉苜基、 $\alpha$ -甲基苜基等，但並不限定於該些。於該些取代基中，就獲取的容易性及製成硬化物時的反應性的觀點而言，較佳為苯基、碳數 1~3 的烷基，特佳為甲基。

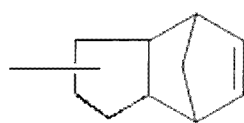
**【0014】**  $R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。較佳為一分子中的  $R^2$  每一個苯酚環平均具有 0.1 個~1 個二環戊烯基。

二環戊烯基是源自二環戊二烯的基，且由下述式 (1a) 或式 (1b) 表示。

[化 2]



(1 a)



(1 b)

**【0015】**  $n$  為重覆數，且表示 0 或 1 以上的數，其平均值 (數量

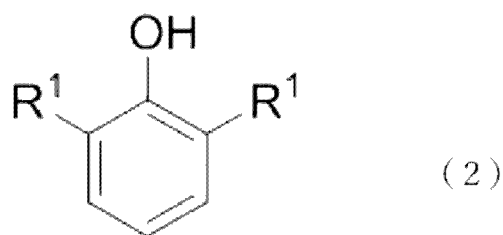
平均) 為 1~5, 較佳為 1.1~3, 更佳為 1.5~2.5, 進而佳為 1.6~2。作為基於 GPC 所得的含量, 較佳為 n=0 體處於 10 面積%以下的範圍內, n=1 體處於 50 面積%~70 面積%的範圍內, n=2 體以上處於 20 面積%~40 面積%的範圍內。

【0016】 酚樹脂的分子量較佳為重量平均分子量 (Mw) 為 400~1000 的範圍, 數量平均分子量 (Mn) 為 350~800 的範圍。

酚樹脂中, 羥基當量較佳為 230 以上, 更佳為 240 以上, 軟化點較佳為 120°C 以下, 更佳為 110°C 以下。

【0017】 所述酚樹脂例如可藉由使下述通式 (2) 所表示的 2,6-二取代苯酚類與二環戊二烯於三氟化硼-醚觸媒等路易斯酸存在下反應而獲得。

【0018】 [化 3]



此處,

R<sup>1</sup> 與所述通式 (1) 中的定義為相同含義。

【0019】 作為所述 2,6-二取代苯酚類, 可列舉 2,6-二甲基苯酚、2,6-二乙基苯酚、2,6-二丙基苯酚、2,6-二異丙基苯酚、2,6-二(正

丁基)苯酚、2,6-二(第三丁基)苯酚、2,6-二己基苯酚、2,6-二環己基苯酚、2,6-二苯基苯酚、2,6-二甲苯基苯酚、2,6-二苄基苯酚、2,6-雙( $\alpha$ -甲基苄基)苯酚、2-乙基-6-甲基苯酚、2-烯丙基-6-甲基苯酚、2-甲苄基-6-苯基苯酚等，就獲取的容易性及製成硬化物時的反應性的觀點而言，較佳為 2,6-二苯基苯酚、2,6-二甲基苯酚，特佳為 2,6-二甲基苯酚。

**【0020】** 所述反應中使用的觸媒為路易斯酸，具體而言為三氟化硼、三氟化硼-酚錯合物、三氟化硼-醚錯合物、氯化鋁、氯化錫、氯化鋅、氯化鐵等，其中，就操作的容易度而言，較佳為三氟化硼-醚錯合物。於三氟化硼-醚錯合物的情況下，相對於二環戊二烯 100 質量份，觸媒的使用量為 0.001 質量份～20 質量份，較佳為 0.5 質量份～10 質量份。

**【0021】** 作為用以向 2,6-二取代類中導入所述二環戊烯基的反應方法，是使二環戊二烯以規定的比率與 2,6-二取代苯酚類反應的方法，可連續添加或數階段添加二環戊二烯（分批逐次添加兩次以上），間歇地進行反應。關於比率，相對於 2,6-二取代苯酚類 1 莫耳，二環戊二烯為 0.25 倍莫耳～2 倍莫耳。

關於連續添加二環戊二烯使其反應時的比率，相對於 2,6-二取代苯酚類，二環戊二烯為 0.25 倍莫耳～1 倍莫耳，較佳為 0.28 倍莫耳～1 倍莫耳，更佳為 0.3 倍莫耳～0.5 倍莫耳。於分批逐次添加二環戊二烯使其反應的情況下，整體較佳為 0.8 倍莫耳～2 倍莫耳，更佳為 0.9 倍莫耳～1.7 倍莫耳。再者，各階段中的二環戊

二烯的使用比率較佳為 0.28 倍莫耳～1 倍莫耳。

【0022】 作為確認於所述通式 (1) 所表示的酚樹脂中導入有二環戊烯基的方法，可使用質量分析法與傅立葉轉換紅外光譜 (Fourier transform infrared spectroscopy, FT-IR) 測定。

【0023】 於使用質量分析方法的情況下，可使用電灑質量分析法 (電灑游離質譜法 (electrospray ionization mass spectrometry, ESI-MS)) 或場脫附法 (場脫附質譜 (field desorption mass spectrometry, FD-MS)) 等。藉由對利用 GPC 等將核體數不同的成分分離所得的樣品實施質量分析法，可確認導入有二環戊烯基。

【0024】 於使用 FT-IR 測定法的情況下，將溶解於四氫呋喃 (tetrahydrofuran, THF) 等有機溶媒中的樣品塗佈於 KRS-5 單元上，利用 FT-IR 來測定使有機溶媒乾燥而獲得的帶樣品薄膜的單元時，由苯酚核的 C-O 伸縮振動引起的波峰出現在  $1210\text{ cm}^{-1}$  附近，僅於導入有二環戊烯基的情況下，在  $3040\text{ cm}^{-1}$  附近出現由二環戊二烯骨架的烯烴部位的 C-H 伸縮振動引起的波峰。當將以直線形式連接目標波峰的起點與終點而得者設為基線、將自波峰的頂點至基線的長度設為峰高時，根據  $3040\text{ cm}^{-1}$  附近的波峰 ( $A_{3040}$ ) 與  $1210\text{ cm}^{-1}$  附近的波峰 ( $A_{1210}$ ) 的比率 ( $A_{3040}/A_{1210}$ )，可確定二環戊烯基的導入量。可確認到其比率越大物性值越良好，用以滿足目標物性的較佳比率 ( $A_{3040}/A_{1210}$ ) 為 0.05 以上，更佳為 0.10 以上，尤其是 0.10～0.30。

【0025】 本反應適宜為將 2,6-二取代苯酚類與觸媒裝入至反應器

中，用 1 小時～10 小時滴加二環戊二烯的方式。

【0026】 反應溫度較佳為 50℃～200℃，更佳為 100℃～180℃，進而佳為 120℃～160℃。反應時間較佳為 1 小時～10 小時，更佳為 3 小時～10 小時，進而佳為 4 小時～8 小時。

【0027】 反應結束後，加入氫氧化鈉、氫氧化鉀、氫氧化鈣等鹼而使觸媒失活。其後，加入甲苯、二甲苯等芳香族烴類或甲基乙基酮、甲基異丁基酮等酮類等的溶媒加以溶解，水洗後，於減壓下回收溶媒，藉此可獲得目標酚樹脂。再者，較佳為使二環戊二烯儘可能全部反應，使 2,6-二取代苯酚類的一部分未反應、較佳為 10%以下未反應，並將其減壓回收。

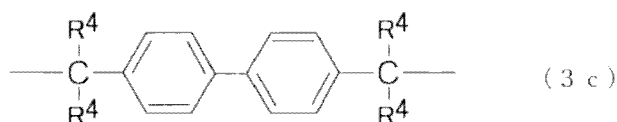
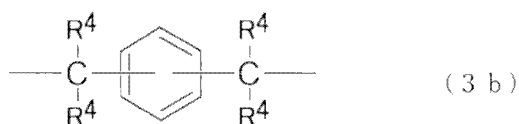
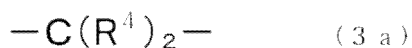
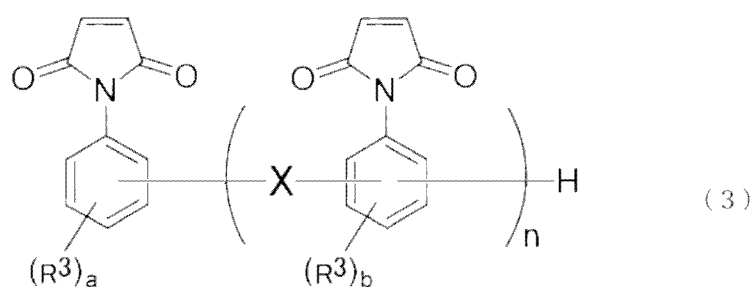
【0028】 反應時，根據需要而亦可使用苯、甲苯、二甲苯等芳香族烴類，或氯苯、二氯苯等鹵化烴類，或乙二醇二甲醚、二乙二醇二甲醚等醚類等的溶媒。

【0029】 藉由使用此種芳香族多元羥基化合物，可獲得本發明的熱硬化性樹脂組成物。

【0030】 本發明的熱硬化性樹脂組成物中所含有的雙馬來醯亞胺化合物並無特別限定，例如可列舉：N-苯基馬來醯亞胺、N-羥基苯基馬來醯亞胺、4,4'-二苯基甲烷雙馬來醯亞胺、聚苯基甲烷馬來醯亞胺、間伸苯基雙馬來醯亞胺、對伸苯基雙馬來醯亞胺、2,2'-[4-(4-馬來醯亞胺苯氧基)苯基]丙烷、3,3'-二甲基-5,5'-二乙基-4,4'-二苯基甲烷雙馬來醯亞胺、雙(3,5-二甲基-4-馬來醯亞胺苯基)甲烷、雙-(3-乙基-5-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、4-甲基-1,3-伸苯基雙馬來醯亞胺、4,4'-二苯基醚雙馬來醯亞胺、4,4'-二苯基砜雙馬來醯亞胺、1,3-雙(3-馬來醯亞胺苯氧基)苯、1,3-雙(4-馬來醯亞胺苯氧基)苯、N,N'-伸乙基二馬來醯亞胺、N,N'-六亞甲基二馬來醯亞胺、下述通式(3)所表示的馬來醯亞胺化合物等、或該些馬來醯亞胺化合物的預聚物、或者馬來醯亞胺化合物與胺化合物的預聚物等。

【0031】 [化 4]



此處，

X 為式(3a)、式(3b)、式(3c)的任一個，

R<sup>3</sup> 獨立地表示碳數 1~5 的烷基或芳香族基。

$R^4$  獨立地表示氫原子或甲基。

a 表示 0~4，較佳為 0 或 1。

b 表示 0~3，較佳為 0 或 1。

n 為重覆數，平均值為 1~10，較佳為 1~5。

**【0032】** 本發明的熱硬化性樹脂組成物將馬來醯亞胺化合物及酚樹脂作為必需成分。酚樹脂相對於樹脂混合物中的馬來醯亞胺化合物 100 質量份的含量較佳為 5 質量份~150 質量份，更佳為 10 質量份~130 質量份，進而佳為 20 質量份~50 質量份。作為用以獲得本發明的熱硬化性樹脂組成物的酚樹脂，除本發明的芳香族多元羥基化合物以外，根據需要而亦可併用一種或兩種以上的各種酚樹脂。較佳為酚樹脂中至少 30 質量%為所述通式(1)所表示的芳香族多元羥基化合物，更佳為含有 50 質量%以上。於較其更少的情況下，有介電特性惡化之虞。

**【0033】** 作為本發明的熱硬化性樹脂組成物中可使用的酚樹脂系硬化劑，具體例可列舉：雙酚 A、雙酚 F、雙酚 C、雙酚 K、雙酚 Z、雙酚 S、四甲基雙酚 A、四甲基雙酚 F、四甲基雙酚 S、四甲基雙酚 Z、二羥基二苯基硫醚、4,4'-硫代雙(3-甲基-6-第三丁基苯酚)等雙酚類，或兒茶酚、雷瑣辛、甲基雷瑣辛、對苯二酚、單甲基對苯二酚、二甲基對苯二酚、三甲基對苯二酚、單-第三丁基對苯二酚、二-第三丁基對苯二酚等二羥基苯類，或二羥基萘、二羥基甲基萘、三羥基萘等羥基萘類，或 LC-950PM60 (新安 (Shin-AT&C) 公司製造) 等含磷的酚硬化劑，或昭能

(Shonol) BRG-555 (愛克工業 (Aica Kogyo) 股份有限公司製造) 等苯酚酚醛清漆樹脂、DC-5 (日鐵化學&材料股份有限公司製造) 等甲酚酚醛清漆樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆樹脂、雙酚 A 酚醛清漆樹脂、樂吉拓 (Resitop) TPM-100 (群榮化學工業股份有限公司製造) 等三羥基苯基甲烷型酚醛清漆樹脂、萘酚酚醛清漆樹脂等酚類、萘酚類及/或雙酚類與醛類的縮合物，SN-160、SN-395、SN-485 (日鐵化學&材料股份有限公司製造) 等酚類、萘酚類及/或雙酚類與仲二甲苯基二醇的縮合物，酚類及/或萘酚類與異丙烯基苯乙酮的縮合物，酚類、萘酚類及/或雙酚類與二環戊二烯的反應產物，酚類、萘酚類及/或雙酚類與聯苯系交聯劑的縮合物等所謂的被稱為酚醛清漆樹脂的酚化合物等。就獲取容易度的觀點而言，較佳為苯酚酚醛清漆樹脂、二環戊二烯型酚樹脂、三羥基苯基甲烷型酚醛清漆樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆樹脂等。

【0034】 於酚醛清漆樹脂的情況下，作為酚類，可列舉苯酚、甲酚、二甲酚、丁基苯酚、戊基苯酚、壬基苯酚、丁基甲基苯酚、三甲基苯酚、苯基苯酚等，作為萘酚類，可列舉 1-萘酚、2-萘酚等，此外可列舉所述雙酚類。作為醛類，可例示：甲醛、乙醛、丙醛、丁醛、戊醛、己醛、苯甲醛、氯醛、溴醛、乙二醛、丙二醛、丁二醛、戊二醛、己二醛、庚二醛、癸二醛、丙烯醛、巴豆醛、柳醛、鄰苯二甲醛、羥基苯甲醛等。作為聯苯系交聯劑，可列舉：雙(羥甲基)聯苯、雙(甲氧基甲基)聯苯、雙(乙氧基甲基)聯

苯、雙(氯甲基)聯苯等。

【0035】 本發明的熱硬化性樹脂組成物除馬來醯亞胺化合物及酚樹脂以外，亦可含有環氧樹脂。於熱硬化性樹脂組成物中，環氧樹脂的含量較佳為 10 質量%~80 質量%，更佳為 20 質量%~70 質量%。另外，相對於馬來醯亞胺化合物 100 質量份，環氧樹脂的含量較佳為 10 質量份~300 質量份，更佳為 20 質量份~280 質量份。

【0036】 作為環氧樹脂，分子中具有 2 個以上的環氧基的通常的環氧樹脂皆可使用。若舉例，則可列舉雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、四甲基雙酚 F 型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、雙酚芴型環氧樹脂、雙酚 S 型環氧樹脂、雙硫醚型環氧樹脂、雙萘基芴型環氧樹脂、氫醌型環氧樹脂、間苯二酚型環氧樹脂、萘二酚型環氧樹脂、苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、苯乙烯化苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚酚醛清漆型環氧樹脂、烷基酚醛清漆型環氧樹脂、雙酚酚醛清漆型環氧樹脂、萘酚酚醛清漆型環氧樹脂、聯苯基芳烷基酚型環氧樹脂、 $\beta$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、二萘酚芳烷基型環氧樹脂、 $\alpha$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、萘二酚芳烷基型環氧樹脂、三苯基甲烷型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、將結構式(1)所表示的芳香族多元羥基化合物環氧化而得的二環戊二烯型環氧樹脂、烷二醇型環氧樹脂、脂肪族環狀環氧樹脂、二胺基二苯基甲烷四縮水甘油胺、胺基酚型環氧樹脂、含磷的環氧樹脂、胺基甲酸酯改質環氧樹脂、含噁唑啉酮環的環氧樹脂，但並

不限定於該些。另外，該些環氧樹脂可單獨使用，亦可併用兩種以上。就獲取容易度的觀點而言，進而佳為使用萘二酚型環氧樹脂、苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚酚醛清漆型環氧樹脂、 $\alpha$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、含磷的環氧樹脂、含噁唑啉酮環的環氧樹脂。

【0037】 進而，本發明的樹脂組成物中可根據需要而調配硬化促進劑。若使用硬化促進劑，則能夠與醯亞胺基進行交聯反應的化合物及含羥基的醯亞胺化合物中所含的羥基和醯亞胺基產生加成反應而交聯，因此硬化物顯示出良好的物性。

【0038】 若列舉硬化促進劑的例子，則有胺類、咪唑類、有機磷類、路易斯酸等，具體而言有 1,8-二氮雜雙環(5,4,0)十一烯-7、三乙二胺、苄基二甲基胺、三乙醇胺、二甲基胺基乙醇、三(二甲基胺基甲基)苯酚等三級胺，2-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-十七烷基咪唑等咪唑類，三丁基磷、甲基二苯基磷、三苯基磷、二苯基磷、苯基磷等有機磷類，有機磷類與醯化合物的加成反應產物，四苯基磷-四苯基硼酸鹽、四苯基磷-乙基三苯基硼酸鹽、四丁基磷-四丁基硼酸鹽等四取代磷-四取代硼酸鹽，2-乙基-4-甲基咪唑-四苯基硼酸鹽、N-甲基嗎啉-四苯基硼酸鹽等四苯基硼酸鹽等。相對於樹脂組成物 100 質量份，添加量為 0.2 質量份～5 質量份的範圍。

【0039】 本發明的樹脂組成物可根據需要而含有填充材、矽烷偶

合劑、抗氧化劑、脫模劑、消泡劑、乳化劑、觸變性賦予劑、平滑劑、阻燃劑、顏料等其他添加劑等。

【0040】 作為填充材，具體而言可列舉：熔融二氧化矽、結晶二氧化矽、氧化鋁、氮化矽、氫氧化鋁、水鋁石（boehmite）、氫氧化鎂、滑石、雲母、碳酸鈣、矽酸鈣、氫氧化鈣、碳酸鎂、碳酸鋇、硫酸鋇、氮化硼、碳、碳纖維、玻璃纖維、氧化鋁纖維、二氧化矽氧化鋁纖維、碳化矽纖維、聚酯纖維、纖維素纖維、聚芳醯胺纖維、陶瓷纖維、微粒子橡膠、熱塑性彈性體、顏料等。作為使用填充材的理由，可列舉耐衝擊性的提高效果。另外，於使用氫氧化鋁、水鋁石、氫氧化鎂等金屬氫氧化物的情況下，具有作為阻燃助劑起作用而阻燃性提高的效果。

【0041】 於將樹脂組成物製成板狀基板等的情況下，就其尺寸穩定性、彎曲強度等方面而言，可列舉纖維狀者作為較佳的填充材。更佳為可列舉將玻璃纖維編織成網狀的纖維狀基材且使用填充材的玻璃纖維基板。

【0042】 相對於樹脂組成物（固體成分）100 質量份，填充材的調配量較佳為 1 質量份～150 質量份，更佳為 10 質量份～70 質量份。若調配量多，則有硬化物變脆而無法獲得充分的機械物性之虞。另外，若調配量少，則有無法發揮硬化物的耐衝擊性提高等調配填充劑的效果之虞。

相對於樹脂組成物（固體成分）100 質量份，其他添加劑的調配量較佳為 0.01 質量份～20 質量份的範圍。

【0043】 藉由對本發明的樹脂組成物進行加熱硬化而可獲得硬化物。作為用以獲得硬化物的方法，可較佳地使用注塑、壓縮成形、轉移成形等或藉由製成樹脂片材、帶樹脂的銅箔、預浸體等形態進行積層並加熱加壓硬化而製成積層板等的方法。此時的溫度通常為 150°C ~ 300°C 的範圍，硬化時間通常為 10 分鐘 ~ 5 小時左右。

【0044】 本發明的樹脂組成物可藉由將所述各成分均勻地混合來獲得。樹脂組成物可利用與先前已知的方法相同的方法來容易地製成硬化物。作為硬化物，可列舉：積層物、注塑物、成型物、接著層、絕緣層、膜等成形硬化物。

【0045】 作為使用樹脂組成物的用途，可列舉：印刷配線基板材料、撓性配線基板用樹脂組成物、增層基板用層間絕緣材料等電路基板用絕緣材料、半導體密封材料、導電糊、導電膜、增層用接著膜、樹脂注塑材料、接著劑等。該些各種用途中，於印刷配線基板材料、電路基板用絕緣材料、增層用接著膜用途中，可用作將電容器（condenser）等被動零件或積體電路（Integrated circuit, IC）晶片等主動零件埋入至基板內的所謂電子零件內藏用基板用的絕緣材料。該些用途中，就高阻燃性、高耐熱性、低介電特性及溶劑溶解性等特性而言，較佳為用於印刷配線板材料、撓性配線基板用樹脂組成物、增層基板用層間絕緣材料等電路基板（積層板）用材料及半導體密封材料中。

【0046】 作為使用本發明的樹脂組成物所獲得的密封材，有膠帶

狀半導體晶片用、灌注型液狀密封用、底部填充用、半導體層間絕緣膜用等，可較佳地用於該些用途中。為了將樹脂組成物製備為半導體密封材料用，可列舉如下方法：於樹脂組成物中預先混合根據需要而調配的無機填充材或偶合劑、脫模劑等添加劑，然後使用擠出機、捏合機、輥等充分熔融混合，直至變得均勻。此時，作為無機填充材，通常使用二氧化矽，較佳為於樹脂組成物中調配 70 質量%~95 質量%的無機填充材。

【0047】 於將以所述方式獲得的樹脂組成物用作半導體封裝的情況下，可列舉如下方法：對樹脂組成物進行注塑或者使用轉移成形機、射出成形機等對樹脂組成物進行成形，進而於 180°C ~ 250°C 下加熱硬化 0.5 小時~5 小時，藉此獲得成形物。於用作膠帶狀密封材的情況下，可列舉如下方法：對其進行加熱而製作半硬化片材，製成密封材膠帶後，將該密封材膠帶放置於半導體晶片上，加熱至 100°C ~ 150°C 使其軟化而進行成形，於 180°C ~ 250°C 下使其完全硬化。另外，於用作灌注型液狀密封材的情況下，只要將所獲得的樹脂組成物根據需要而溶解於溶劑中，然後塗佈於半導體晶片或電子零件上，直接使其硬化即可。

【0048】 本發明的樹脂組成物可溶解於有機溶劑中而製備成清漆狀態。作為可使用的有機溶劑，可列舉甲醇、乙醇等醇系溶媒，丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁基酮、環己酮等酮系溶媒，四氫呋喃等醚系溶媒，二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、N-甲基吡咯啉酮等含氮原子的溶媒，二甲基亞砷等含硫原子的溶媒等，可混合使

用一種或兩種以上。若為可工業性獲取的有機溶劑，則並無特別限定，就溶解性、操作性的方面而言，較佳為甲基乙基酮、二甲基甲醯胺。

【0049】 本發明的樹脂組成物可於製成溶解於有機溶劑中而得的組成物清漆後，含浸於玻璃布、聚芳醯胺不織布、液晶聚合物等聚酯不織布等纖維狀物中，然後進行溶劑除去，從而製成預浸體。另外，將組成物清漆塗佈於銅箔、不鏽鋼箔、聚醯亞胺膜、聚酯膜等片材狀物上，然後進行乾燥，藉此可製成接著片材。

【0050】 於使用所述預浸體來形成積層板的情況下，可將一片或多片預浸體積層，於單側或兩側配置金屬箔而構成積層物，對該積層物進行加壓加熱，藉此使預浸體硬化、一體化而獲得積層板。此處，作為金屬箔，可使用銅、鋁、黃銅、鎳等的單獨、合金、複合的金屬箔。作為對積層物進行加熱加壓的條件，只要於樹脂組成物硬化的條件下適宜調整而進行加熱加壓即可，但若加壓過低，則有於所獲得的積層板的內部殘留氣泡，電氣特性降低的情況，因此理想為於滿足成型性的條件下進行加壓。加熱溫度較佳為  $160^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ ，更佳為  $170^{\circ}\text{C} \sim 220^{\circ}\text{C}$ 。加壓壓力較佳為  $0.5 \text{ MPa} \sim 10 \text{ MPa}$ ，更佳為  $1 \text{ MPa} \sim 5 \text{ MPa}$ 。加熱加壓時間較佳為 10 分鐘  $\sim$  4 小時，更佳為 40 分鐘  $\sim$  3 小時。進而，可將以所述方式獲得的單層的積層板作為內層材而製成多層板。於所述情況下，首先利用加成法或減成法等對積層板實施電路形成，並對所形成的電路表面實施黑化處理，獲得內層材。於該內層材的單面或兩側的

電路形成面上，利用預浸體或接著片材形成絕緣層，並且於絕緣層的表面形成導體層，從而形成多層板。

[實施例]

【0051】 列舉實施例及比較例來對本發明進行具體說明，但本發明並不限定於該些。只要並無特別說明，則「份」表示質量份，「%」表示質量%，「ppm」表示質量 ppm。另外，測定方法是分別藉由以下的方法進行測定。

【0052】 • 羥基當量：

依據日本工業標準( Japanese Industrial Standards, JIS )K 0070 標準進行測定，單位以「g/eq.」來表示。再者，只要並無特別說明，則芳香族多元羥基化合物的羥基當量是指酚性羥基當量。

【0053】 • 軟化點：

依據 JIS K 7234 標準、環球法進行測定。具體而言，使用自動軟化點裝置(明達科(Meitec)股份有限公司製造，ASP-MG4)。

【0054】 • 銅箔剝離強度及層間接著力：

依據 JIS C 6481 進行測定，層間接著力是在第 7 層與第 8 層之間進行剝離測定。

【0055】 • 相對介電常數及介電損耗正切：

依據印刷電路協會( Institute of Printed Circuits, IPC )-TM-650 2.5.5.9，使用材料分析儀( material analyzer )(安捷倫科技(AGILENT Technologies)公司製造)，藉由電容法來求出頻率 1 GHz 下的相對介電常數及介電損耗正切，藉此進行評價。

**【0056】** •玻璃轉移溫度 (T<sub>g</sub>):

依據 JIS C 6481 標準進行測定。由利用動態黏彈性測定裝置 (日立高新技術科學 (High-Tech Science) 股份有限公司製造, 愛色塔 (EXSTAR) DMS6100) 於 5°C/分鐘的升溫條件下進行測定時的 tanδ 峰頂來表示。

**【0057】** •GPC (凝膠滲透層析法) 測定:

使用在本體 (東曹 (Tosoh) 股份有限公司製造, HLC-8220GPC) 中串列地包含管柱 (東曹股份有限公司製造, TSKgelG4000HXL、TSKgelG3000HXL、TSKgelG2000HXL) 的裝置, 管柱溫度設為 40°C。另外, 溶離液使用四氫呋喃 (THF), 流速設為 1 mL/分鐘, 檢測器使用示差折射率檢測器。測定試樣是使用 50 μL 的將樣品 0.1 g 溶解於 10 mL 的 THF 中並利用微濾器 (microfilter) 進行過濾而得者。資料處理是使用東曹股份有限公司製造的 GPC-8020 型號 II 版本 6.00。

**【0058】** •IR:

使用傅立葉轉換型紅外分光光度計 (珀金埃爾默精確 (Perkin Elmer Precisely) 製造, Spectrum One FT-IR Spectrometer 1760X), 單元使用 KRS-5, 將溶解於 THF 中的樣品塗佈於單元上, 使其乾燥後, 測定波數 650 cm<sup>-1</sup>~4000 cm<sup>-1</sup> 的吸光度。

**【0059】** •ESI-MS:

使用質量分析計 (島津製作所製造, LCMS-2020), 使用乙腈與水作為流動相, 測定溶解於乙腈中的樣品, 藉此進行質量分析。

【0060】 實施例、比較例中使用的簡稱如下所述。

【0061】 [馬來醯亞胺化合物]

M1：苯基甲烷馬來醯亞胺（大和化成工業公司製造，BMI-2300）

M2：合成例 5 中獲得的馬來醯亞胺樹脂

【0062】 [芳香族多元羥基化合物]

P1：合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P2：合成例 2 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P3：合成例 3 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P4：二環戊二烯型酚樹脂（群榮化學工業股份有限公司製造，GDP-6140，羥基當量 196，軟化點 130℃）

P5：聯苯基芳烷基型酚樹脂（明和化成股份有限公司製造，MEH-7851，羥基當量 223）

【0063】 [環氧樹脂]

E1：合成例 4 中獲得的環氧樹脂

E2：聯苯基芳烷基型環氧樹脂（日本化藥股份有限公司製造，NC-3000，環氧當量 274，軟化點 60℃）

【0064】 [硬化促進劑]

C1：2-乙基-4-甲基咪唑（四國化成工業股份有限公司製造，固唑（Curezol）2E4MZ）

【0065】 合成例 1

向包括具備攪拌機、溫度計、氮氣吹入管、滴液漏斗及冷卻

管的玻璃製可分離式燒瓶的反應裝置中，裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1 倍莫耳），一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時，然後在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 68 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.44 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10% 的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入甲基異丁基酮（methyl isobutyl ketone，MIBK）700 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 274 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P1）。為羥基當量為 299、軟化點 97°C 的樹脂，吸收比（A<sub>3040</sub>/A<sub>1210</sub>）為 0.17。測定基於 ESI-MS（負（negative））所得的質譜，結果確認到 M<sup>-</sup>=253、375、507、629。將所獲得的芳香族多元羥基化合物（P1）的 GPC 示於圖 1 中，將 FT-IR 示於圖 2 中。基於 GPC 所得的 M<sub>w</sub> 為 690，M<sub>n</sub> 為 510，n=0 體含量為 6.5 面積%，n=1 體含量為 61.5 面積%，n=2 體以上的含量為 32.0 面積%。圖 1 的 a 表示通式（1）的 n=1 體與通式（1）的不存在 R<sup>2</sup> 加成體的 n=1 體的混合體，b 表示通式（1）的 n=0 體。圖 2 的 c 表示由二環戊二烯骨架的烯烴部位的 C-H 伸縮振動引起的波峰，d 表示由苯酚核的 C-O

伸縮振動引起的吸收。

### 【0066】 合成例 2

向與合成例 1 相同的反應裝置中裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1 倍莫耳），一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時後，在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 90.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.60 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10%的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入 MIBK 740 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 310 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P2）。為羥基當量為 341、軟化點為 104°C 的樹脂，吸收比（A<sub>3040</sub>/A<sub>1210</sub>）為 0.27。測定基於 ESI-MS（負）所得的質譜，結果確認到 M-=253、375、507、629。基於 GPC 所得的 Mw 為 830，Mn 為 530，n=0 體含量為 5.9 面積%，n=1 體含量為 60.1 面積%，n=2 體以上的含量為 34.0 面積%。

### 【0067】 合成例 3

向與合成例 1 相同的反應裝置中裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1

倍莫耳)，一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時後，在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 34.0 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.22 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10% 的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入 MIBK 608 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 253 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P3）。為羥基當量為 243、軟化點為 92°C 的樹脂，吸收比（ $A_{3040}/A_{1210}$ ）為 0.11。測定基於 ESI-MS（負）所得的質譜，結果確認到  $M^-$ =253、375、507、629。基於 GPC 所得的  $M_w$  為 460， $M_n$  為 380， $n=0$  體含量為 5.6 面積%， $n=1$  體含量為 66.4 面積%， $n=2$  體以上的含量為 28.0 面積%。

#### 【0068】 合成例 4

向與合成例 1 相同的反應裝置中，加入合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物（P1）100 份、表氯醇 155 份及二乙二醇二甲醚 46 份，加溫至 65°C。於 125 mmHg 的減壓下，在保持為 63°C ~ 67°C 的溫度的同時，用 4 小時滴加 49% 氫氧化鈉水溶液 30.9 份。在此期間，使表氯醇與水共沸，將流出來的水依次除去至系統外。反應結束後，於 5 mmHg、180°C 的條件下回收表氯醇，加入 MIBK

277 份來溶解生成物。其後，加入 80 份的水來溶解副生成的食鹽，靜置而將下層的食鹽水分離除去。利用磷酸水溶液中中和後，對樹脂溶液進行水洗、過濾，直至水洗液成為中性。於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 180°C，蒸餾除去 MIBK，獲得 113 份的紅褐色透明的 2,6-二甲酚-二環戊二烯型環氧樹脂。為環氧當量為 358、總氮含量為 520 ppm、軟化點為 80°C 的樹脂。基於 GPC 所得的 Mw 為 870，Mn 為 570。將所獲得的環氧樹脂 (E1) 的 GPC 示於圖 3 中。

#### 【0069】 合成例 5

向安裝有溫度計、冷卻管、迪安-斯塔克 (Dean-Stark) 共沸蒸餾分離器、攪拌機的燒瓶中，裝入苯胺 100 份與甲苯 50 份，於室溫下用 1 小時滴加 35% 鹽酸 39.2 份。滴加結束後，進行加熱，將共沸的水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內而進行脫水。繼而，將 4,4'-雙(氯甲基)聯苯 33.6 份一邊保持為 60°C ~ 70°C 一邊用 1 小時進行添加，進而於相同溫度下進行 2 小時反應。反應結束後，一邊進行升溫一邊將甲苯蒸餾除去，將系統內設為 195°C ~ 200°C，於該溫度下進行 15 小時反應。其後，一邊冷卻一邊將 30% 氫氧化鈉水溶液 86 份以於系統內不激烈回流的方式緩慢滴加，將於 80°C 以下進行升溫時所蒸餾除去的甲苯送回系統內，於 70°C ~ 80°C 下進行靜置。將分離的下層的水層除去，重覆進行反應液的水洗，直至清洗液成為中性。繼而，利用旋轉蒸發器，於加熱減壓下 (200°C、0.6 KPa) 自油層蒸餾除去過量的苯胺與甲苯，藉此獲得 47 份的芳香族胺樹脂。

其次，向所述燒瓶中裝入馬來酸酐 75 份與甲苯 150 份，進行加熱，將共沸的水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內而進行脫水。其次，一邊將系統內保持為 80°C ~ 85°C，一邊用 1 小時滴加使所述芳香族胺樹脂 100 份溶解於 N-甲基-2-吡咯啉酮 100 份中而成的樹脂溶液。滴加結束後，於相同溫度下進行 2 小時反應，加入對甲苯磺酸 1.5 份，將於回流條件下共沸的縮合水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內，進行脫水，同時進行 20 小時反應。反應結束後，追加 100 份的甲苯，重覆進行水洗而將對甲苯磺酸及過剩的馬來酸酐除去，進行加熱而藉由共沸將水自系統內除去。繼而，將反應溶液濃縮而獲得 133 份的馬來醯亞胺樹脂。

#### 【0070】 實施例 1

調配 100 份的馬來醯亞胺 M1、40 份的合成例 1 中獲得的樹脂、1.5 份的 2E4MZ，溶解於甲基乙基酮（Methyl Ethyl Ketone，MEK）中而獲得樹脂濃度 50%的樹脂組成物清漆。

【0071】 將所獲得的樹脂組成物清漆含浸於玻璃布（日東紡績股份有限公司製造，WEA 7628 XS13，厚度 0.18 mm）中。將已進行含浸的玻璃布於 150°C 的熱風循環烘箱中乾燥 10 分鐘，獲得預浸體。將所獲得的預浸體 8 片與銅箔（三井金屬礦業股份有限公司製造，3EC-III，厚度 35  $\mu\text{m}$ ）上下重疊，於 130°C × 15 分鐘 + 220°C × 120 分鐘的溫度條件下進行 2 MPa 的真空壓製，獲得厚度 1.6 mm 的積層板。將積層板的銅箔剝離強度、T<sub>g</sub> 的測定結果示於表 1 中。

【0072】 另外，將所獲得的預浸體拆開，製成通過 100 目的篩的粉狀的預浸體粉末。將所獲得的預浸體粉末放入氟樹脂製的模具中，於  $130^{\circ}\text{C} \times 15$  分鐘+ $220^{\circ}\text{C} \times 120$  分鐘的溫度條件下進行 2 MPa 的真空壓製，獲得 50 mm 見方 $\times$ 2 mm 厚的硬化樹脂試驗片。將試驗片的相對介電常數及介電損耗正切的測定結果示於表 1 中。

【0073】 實施例 2~實施例 7、比較例 1~比較例 5

以表 1 的配方的調配量（份）調配，使用與實施例 1 相同的裝置並藉由相同的操作而獲得樹脂組成物清漆，進而獲得積層板與硬化樹脂試驗片。進行與實施例 1 相同的試驗，將其結果示於表 1 中。

【0074】 [表 1]

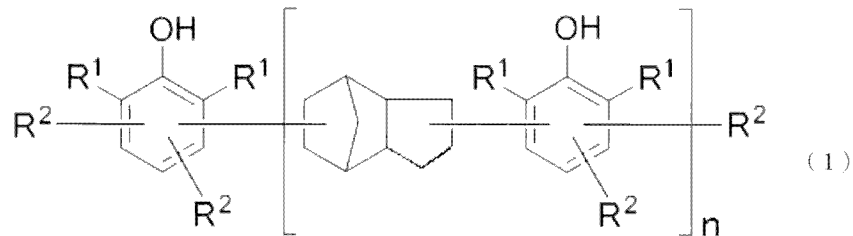
	實施例							比較例				
	1	2	3	4	5	6	7	1	2	3	4	5
M1	100	100	100	100	100	100		100	100	100	100	
M2							100					100
E1					68							
E2						52					52	
P1	40	108			38	38	28					
P2			46									
P3				33								
P4								26	71			18
P5										31	28	
C1	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
銅箔剝離強度 (kN/m)	1.2	1.2	1.1	1.3	1.4	1.3	1.3	1.0	1.0	1.0	1.1	1.1
層間接著力 (kN/m)	0.9	0.9	0.8	1.0	1.0	0.9	1.0	0.5	0.5	0.6	0.7	0.7
相對介電常數	2.84	2.88	2.80	2.87	2.93	2.97	2.80	2.99	3.02	3.01	3.04	2.92
介電損耗正切	0.0039	0.0068	0.0035	0.0045	0.0060	0.0065	0.0055	0.0042	0.0073	0.0046	0.0072	0.0060
Tg (°C)	267	221	260	272	235	230	253	265	218	263	214	252

[產業上之可利用性]

**【0075】** 本發明的樹脂組成物的介電性、耐熱性、接著性優異，可用於積層、成型、接著等各種用途中，尤其是有效用作高速通信設備的電子材料。

## 【發明申請專利範圍】

【請求項 1】一種熱硬化性樹脂組成物，其特徵在於含有：下述通式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物；



此處，

$R^1$  獨立地表示碳數 1~8 的烴基，

$R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基；

$n$  表示重覆數，其平均值為 1~5 的數。

【請求項 2】如請求項 1 所述的熱硬化性樹脂組成物，其更含有環氧樹脂。

【請求項 3】一種硬化物，其是將如請求項 1 或請求項 2 所述的熱硬化性樹脂組成物硬化而成。

【請求項 4】一種密封材，其特徵在於：使用如請求項 1 或請求項 2 所述的熱硬化性樹脂組成物。

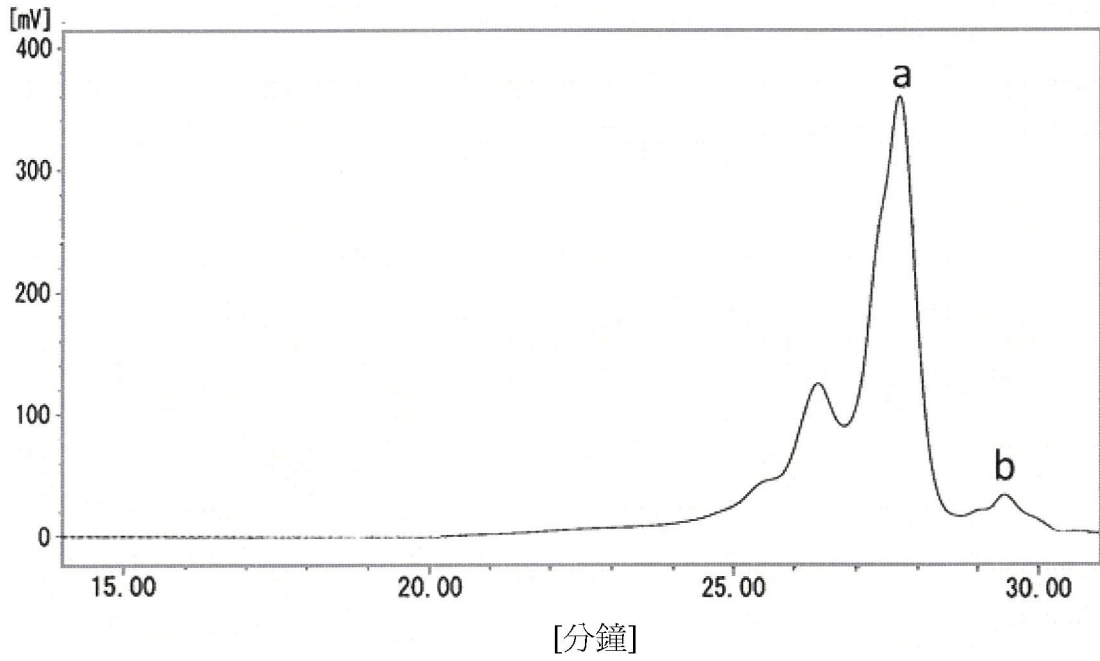
【請求項 5】一種電路基板用材料，其特徵在於：使用如請求項 1 或請求項 2 所述的熱硬化性樹脂組成物。

【請求項 6】一種預浸體，其特徵在於：使用如請求項 1 或請求項

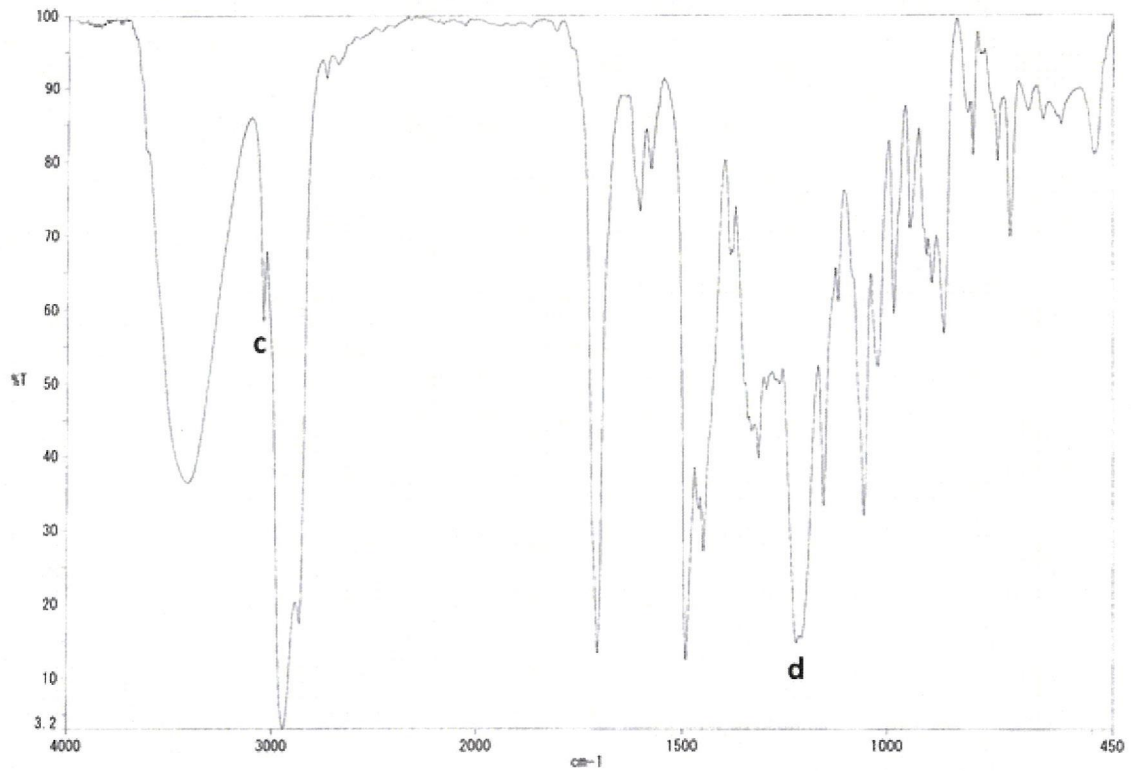
2 所述的熱硬化性樹脂組成物。

【請求項 7】一種積層板，其特徵在於：使用如請求項 1 或請求項 2 所述的熱硬化性樹脂組成物。

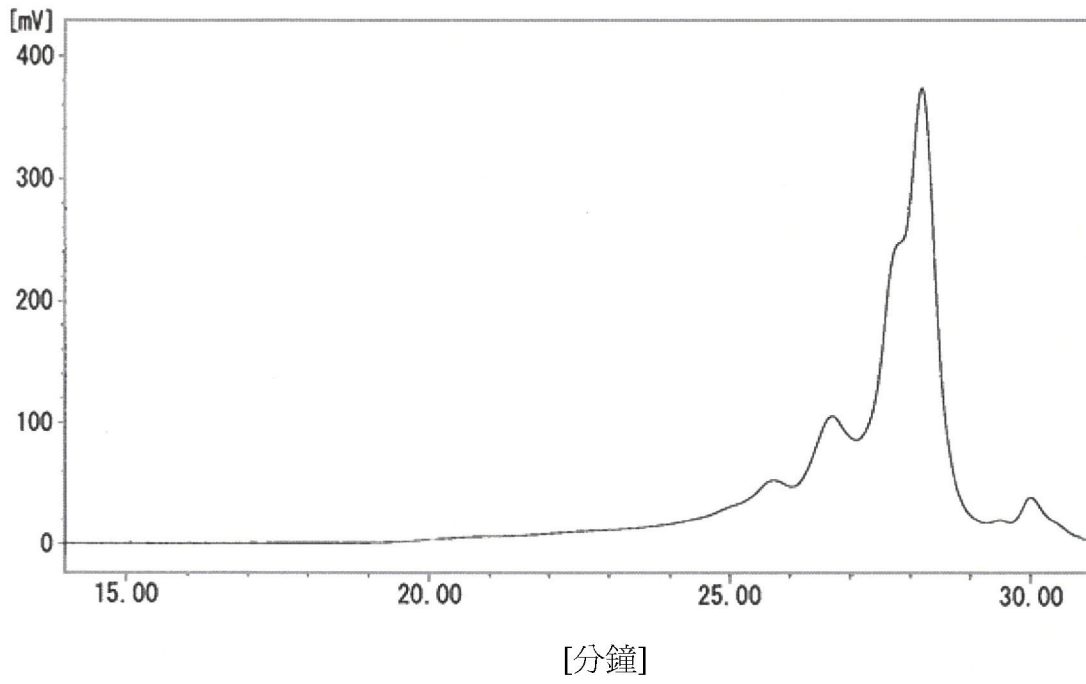
【發明圖式】



【圖 1】



【圖 2】



【圖 3】

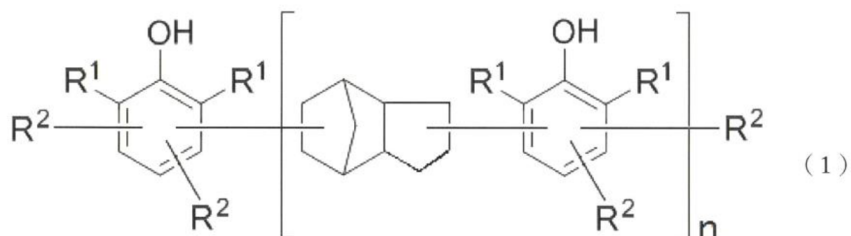
## 【發明摘要】

【中文發明名稱】熱硬化性樹脂組成物及其硬化物、密封材、電路基板用材料、預浸體、積層板

### 【中文】

本發明提供一種低介電特性、高耐熱性及高接著性等優異且提供硬化物的熱硬化性樹脂組成物。一種熱硬化性樹脂組成物，含有下述通式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物。

[化 1]



此處，

R<sup>1</sup> 獨立地表示碳數 1~8 的烴基，

R<sup>2</sup> 獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。

n 表示重覆數，其平均值為 1~5 的數。

【指定代表圖】圖 1。

【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】熱硬化性樹脂組成物及其硬化物、密封材、電路基板用材料、預浸體、積層板

### 【技術領域】

【0001】 本發明是有關於一種低介電特性、高耐熱性、高接著性等優異且提供硬化物的以熱硬化性樹脂為必需成分的熱硬化性樹脂組成物、及自該熱硬化性樹脂組成物獲得的硬化物、密封材、電路基板用材料、預浸體或積層板。

### 【先前技術】

【0002】 環氧樹脂或酚樹脂等熱硬化性樹脂由於接著性、可撓性、耐熱性、耐化學品性、絕緣性、硬化反應性優異，因此於塗料、土木接著、注塑、電氣電子材料、膜材料等多方面中使用。尤其於作為電氣電子材料之一的印刷配線基板用途中，藉由對環氧樹脂賦予阻燃性而得到廣泛使用。

【0003】 作為印刷配線基板的用途之一的可攜式設備或維持其的基站等基礎設施設備隨著近年來飛躍性的資訊量增大，一直需要高功能化的要求。尤其是，藉由通信標準自 4G 變化為 5G，資訊量進一步增加，預想需要利用高頻進行信號的發送。因此，於印刷配線基板中，為了抑制由高頻引起的信號的衰減，需要介電損耗正切更低的材料。另外，為了應對印刷配線基板的細線化或高多層化，對基質樹脂要求高接著性及高耐熱等特性。為了滿足該些要求，使用先前的環氧樹脂的基質樹脂並不充分，需要功能

更高的熱硬化性樹脂。

【0004】 關於印刷配線基板的基質樹脂中所使用的環氧樹脂的低介電常數化，作為原料環氧樹脂，有如下例示：對雙酚 A 等二元酚類進行縮水甘油基化而得的化合物，對三(縮水甘油氧基苯基)烷烴類或胺基苯酚等進行縮水甘油基化而得的化合物等，或者對苯酚酚醛清漆等酚醛清漆類進行縮水甘油基化而得的化合物（專利文獻 1）。

於專利文獻 2、專利文獻 3 中揭示有為了較環氧樹脂而言進一步改善耐熱性或機械特性而使用含醯亞胺基的酚樹脂的方法，藉由含有醯亞胺基而改善了耐熱性。另外，作為適合於改善與基材的接著性的基質樹脂的樹脂，例示有對含醯亞胺基的酚樹脂進行環氧化而得的化合物（專利文獻 4）。另外，於專利文獻 5 中例示有藉由使用馬來醯亞胺化合物、環氧樹脂及特定結構的酚硬化劑而可提供改善了基板的耐熱性或阻燃性的組成物，於專利文獻 6 及專利文獻 7 中例示有藉由使用具有特定的結構的馬來醯亞胺化合物而可提供接著力或介電特性優異的組成物。

但是，於任一文獻中所揭示的環氧樹脂均並不充分滿足基於近年來的高功能化的介電特性的要求，且均並不同時滿足各物性。

[現有技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1]日本專利特開平 5-43655 號公報

[專利文獻 2]日本專利特開平 7-33858 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開平 7-10970 號公報

[專利文獻 4]日本專利特開 2010-235823 號公報

[專利文獻 5]國際公開第 2011/126070 號

[專利文獻 6]國際公開第 2016/208667 號

[專利文獻 7]國際公開第 2020/054526 號

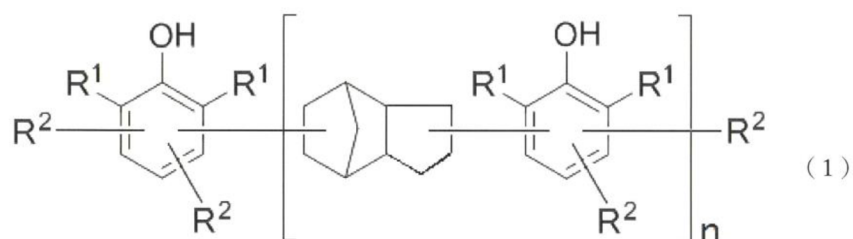
### 【發明內容】

【0006】 因此，本發明所欲解決的課題在於提供一種具有同時滿足低介電性、高耐熱性、高接著性的優異的性能並有效用於積層、成型、接著等用途中的樹脂組成物及其硬化物。

【0007】 為解決所述課題，本發明者進行了努力研究，結果發現含有下述式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物的熱硬化性樹脂組成物同時滿足前所未有的低介電特性、高玻璃轉移溫度（ $T_g$ ）及良好的接著強度，從而完成了本發明。

【0008】 即，本發明是一種熱硬化性樹脂組成物，其特徵在於含有：下述通式（1）所表示的芳香族多元羥基化合物及馬來醯亞胺化合物。

[化 1]



此處，

$R^1$  獨立地表示碳數 1~8 的烴基，

$R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。

$n$  表示重覆數，其平均值為 1~5 的數。

【0009】 所述熱硬化性樹脂組成物較佳為更含有環氧樹脂。

【0010】 另外，本發明是一種使所述樹脂組成物硬化而成的硬化物，且為一種以使用所述樹脂組成物為特徵的電路基板用材料、密封材、預浸體或積層板。

【0011】 關於本發明的樹脂組成物，其硬化物維持良好的接著力，並且可獲得玻璃轉移溫度高的硬化物。另外，介電特性亦優異，且於要求低介電常數、低介電損耗正切的積層板及電子電路基板中發揮良好的特性。

#### 【圖式簡單說明】

#### 【0012】

圖 1 是合成例 1 中獲得的芳香族多元烴基化合物的凝膠滲透層析（Gel Permeation Chromatography，GPC）圖。

圖 2 是合成例 1 中獲得的芳香族多元烴基化合物的紅外光譜（infrared spectroscopy，IR）圖。

圖 3 是合成例 4 中獲得的環氧樹脂的 GPC 圖。

#### 【實施方式】

【0013】 以下，對本發明進行詳細說明。

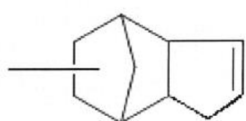
本發明中所使用的芳香族多元羥基化合物（以下，亦稱為酚樹脂）由所述通式（1）表示。

於通式（1）中， $R^1$  獨立地表示碳數 1~8 的烴基，較佳為碳數 1~8 的烷基、碳數 6~8 的芳基、碳數 7~8 的芳烷基或烯丙基。作為碳數 1~8 的烷基，可為直鏈狀、分支狀、環狀的任一種，例如可列舉甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第三丁基、己基、環己基、甲基環己基等，但並不限定於該些。作為碳數 6~8 的芳基，可列舉苯基、甲苯基、二甲苯基、乙基苯基等，但並不限定於該些。作為碳數 7~8 的芳烷基，可列舉苺基、 $\alpha$ -甲基苺基等，但並不限定於該些。於該些取代基中，就獲取的容易性及製成硬化物時的反應性的觀點而言，較佳為苯基、碳數 1~3 的烷基，特佳為甲基。

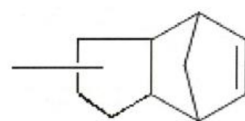
**【0014】**  $R^2$  獨立地表示氫原子、二環戊烯基，一個以上為二環戊烯基。較佳為一分子中的  $R^2$  每一個苯酚環平均具有 0.1 個~1 個二環戊烯基。

二環戊烯基是源自二環戊二烯的基，且由下述式（1a）或式（1b）表示。

[化 2]



(1 a)



(1 b)

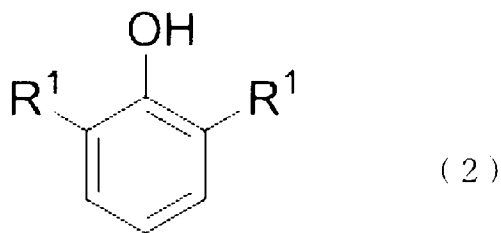
【0015】  $n$  為重覆數，且表示 0 或 1 以上的數，其平均值（數量平均）為 1~5，較佳為 1.1~3，更佳為 1.5~2.5，進而佳為 1.6~2。作為基於 GPC 所得的含量，較佳為  $n=0$  體處於 10 面積%以下的範圍內， $n=1$  體處於 50 面積%~70 面積%的範圍內， $n=2$  體以上處於 20 面積%~40 面積%的範圍內。

【0016】 酚樹脂的分子量較佳為重量平均分子量（ $M_w$ ）為 400~1000 的範圍，數量平均分子量（ $M_n$ ）為 350~800 的範圍。

酚樹脂中，羥基當量較佳為 230 以上，更佳為 240 以上，軟化點較佳為 120°C 以下，更佳為 110°C 以下。

【0017】 所述酚樹脂例如可藉由使下述通式（2）所表示的 2,6-二取代苯酚類與二環戊二烯於三氟化硼-醚觸媒等路易斯酸存在下反應而獲得。

【0018】 [化 3]



此處，

$R^1$  與所述通式（1）中的定義為相同含義。

【0019】 作為所述 2,6-二取代苯酚類，可列舉 2,6-二甲基苯酚、

2,6-二乙基苯酚、2,6-二丙基苯酚、2,6-二異丙基苯酚、2,6-二(正丁基)苯酚、2,6-二(第三丁基)苯酚、2,6-二己基苯酚、2,6-二環己基苯酚、2,6-二苯基苯酚、2,6-二甲苯基苯酚、2,6-二苄基苯酚、2,6-雙( $\alpha$ -甲基苄基)苯酚、2-乙基-6-甲基苯酚、2-烯丙基-6-甲基苯酚、2-甲苯基-6-苯基苯酚等，就獲取的容易性及製成硬化物時的反應性的觀點而言，較佳為 2,6-二苯基苯酚、2,6-二甲基苯酚，特佳為 2,6-二甲基苯酚。

【0020】 所述反應中使用的觸媒為路易斯酸，具體而言為三氟化硼、三氟化硼-酚錯合物、三氟化硼-醚錯合物、氯化鋁、氯化錫、氯化鋅、氯化鐵等，其中，就操作的容易度而言，較佳為三氟化硼-醚錯合物。於三氟化硼-醚錯合物的情況下，相對於二環戊二烯 100 質量份，觸媒的使用量為 0.001 質量份～20 質量份，較佳為 0.5 質量份～10 質量份。

【0021】 作為用以向 2,6-二取代苯酚類中導入所述二環戊烯基的反應方法，是使二環戊二烯以規定的比率與 2,6-二取代苯酚類反應的方法，可連續添加或數階段添加二環戊二烯（分批逐次添加兩次以上），間歇地進行反應。關於比率，相對於 2,6-二取代苯酚類 1 莫耳，二環戊二烯為 0.25 倍莫耳～2 倍莫耳。

關於連續添加二環戊二烯使其反應時的比率，相對於 2,6-二取代苯酚類，二環戊二烯為 0.25 倍莫耳～1 倍莫耳，較佳為 0.28 倍莫耳～1 倍莫耳，更佳為 0.3 倍莫耳～0.5 倍莫耳。於分批逐次添加二環戊二烯使其反應的情況下，整體較佳為 0.8 倍莫耳～2 倍

莫耳，更佳為 0.9 倍莫耳～1.7 倍莫耳。再者，各階段中的二環戊二烯的使用比率較佳為 0.28 倍莫耳～1 倍莫耳。

【0022】 作為確認於所述通式（1）所表示的酚樹脂中導入有二環戊烯基的方法，可使用質量分析法與傅立葉轉換紅外光譜（Fourier transform infrared spectroscopy，FT-IR）測定。

【0023】 於使用質量分析方法的情況下，可使用電灑質量分析法（電灑游離質譜法（electrospray ionization mass spectrometry，ESI-MS））或場脫附法（場脫附質譜（field desorption mass spectrometry，FD-MS））等。藉由對利用 GPC 等將核體數不同的成分分離所得的樣品實施質量分析法，可確認導入有二環戊烯基。

【0024】 於使用 FT-IR 測定法的情況下，將溶解於四氫呋喃（tetrahydrofuran，THF）等有機溶媒中的樣品塗佈於 KRS-5 單元上，利用 FT-IR 來測定使有機溶媒乾燥而獲得的帶樣品薄膜的單元時，由苯酚核的 C-O 伸縮振動引起的波峰出現在  $1210\text{ cm}^{-1}$  附近，僅於導入有二環戊烯基的情況下，在  $3040\text{ cm}^{-1}$  附近出現由二環戊二烯骨架的烯烴部位的 C-H 伸縮振動引起的波峰。當將以直線形式連接目標波峰的起點與終點而得者設為基線、將自波峰的頂點至基線的長度設為峰高時，根據  $3040\text{ cm}^{-1}$  附近的波峰（ $A_{3040}$ ）與  $1210\text{ cm}^{-1}$  附近的波峰（ $A_{1210}$ ）的比率（ $A_{3040}/A_{1210}$ ），可確定二環戊烯基的導入量。可確認到其比率越大物性值越良好，用以滿足目標物性的較佳比率（ $A_{3040}/A_{1210}$ ）為 0.05 以上，更佳為 0.10 以上，尤其是 0.10～0.30。

【0025】 本反應適宜為將 2,6-二取代苯酚類與觸媒裝入至反應器中，用 1 小時～10 小時滴加二環戊二烯的方式。

【0026】 反應溫度較佳為 50℃～200℃，更佳為 100℃～180℃，進而佳為 120℃～160℃。反應時間較佳為 1 小時～10 小時，更佳為 3 小時～10 小時，進而佳為 4 小時～8 小時。

【0027】 反應結束後，加入氫氧化鈉、氫氧化鉀、氫氧化鈣等鹼而使觸媒失活。其後，加入甲苯、二甲苯等芳香族烴類或甲基乙基酮、甲基異丁基酮等酮類等的溶媒加以溶解，水洗後，於減壓下回收溶媒，藉此可獲得目標酚樹脂。再者，較佳為使二環戊二烯儘可能全部反應，使 2,6-二取代苯酚類的一部分未反應、較佳為 10%以下未反應，並將其減壓回收。

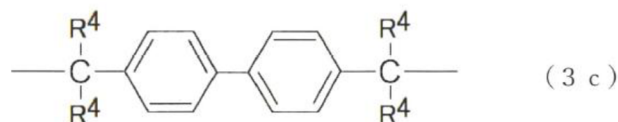
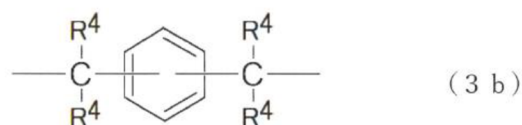
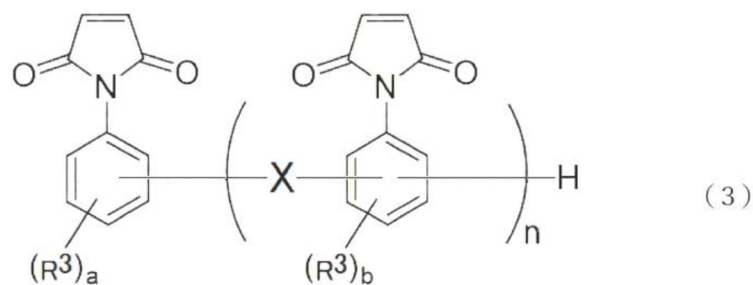
【0028】 反應時，根據需要而亦可使用苯、甲苯、二甲苯等芳香族烴類，或氯苯、二氯苯等鹵化烴類，或乙二醇二甲醚、二乙二醇二甲醚等醚類等的溶媒。

【0029】 藉由使用此種芳香族多元羥基化合物，可獲得本發明的熱硬化性樹脂組成物。

【0030】 本發明的熱硬化性樹脂組成物中所含有的雙馬來醯亞胺化合物並無特別限定，例如可列舉：N-苯基馬來醯亞胺、N-羥基苯基馬來醯亞胺、4,4'-二苯基甲烷雙馬來醯亞胺、聚苯基甲烷馬來醯亞胺、間伸苯基雙馬來醯亞胺、對伸苯基雙馬來醯亞胺、2,2'-[4-(4-馬來醯亞胺苯氧基)苯基]丙烷、3,3'-二甲基-5,5'-二乙基-4,4'-二苯基甲烷雙馬來醯亞胺、雙(3,5-二甲基-4-馬來醯亞胺苯基)

甲烷、雙-(3-乙基-5-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、4-甲基-1,3-伸苯基雙馬來醯亞胺、4,4'-二苯基醚雙馬來醯亞胺、4,4'-二苯基砜雙馬來醯亞胺、1,3-雙(3-馬來醯亞胺苯氧基)苯、1,3-雙(4-馬來醯亞胺苯氧基)苯、N,N'-伸乙基二馬來醯亞胺、N,N'-六亞甲基二馬來醯亞胺、下述通式(3)所表示的馬來醯亞胺化合物等、或該些馬來醯亞胺化合物的預聚物、或者馬來醯亞胺化合物與胺化合物的預聚物等。

【0031】 [化 4]



此處，

X 為式(3a)、式(3b)、式(3c)的任一個，

$R^3$  獨立地表示碳數 1~5 的烷基或芳香族基。

$R^4$  獨立地表示氫原子或甲基。

a 表示 0~4，較佳為 0 或 1。

b 表示 0~3，較佳為 0 或 1。

n 為重覆數，平均值為 1~10，較佳為 1~5。

**【0032】** 本發明的熱硬化性樹脂組成物將馬來醯亞胺化合物及酚樹脂作為必需成分。酚樹脂相對於樹脂混合物中的馬來醯亞胺化合物 100 質量份的含量較佳為 5 質量份~150 質量份，更佳為 10 質量份~130 質量份，進而佳為 20 質量份~50 質量份。作為用以獲得本發明的熱硬化性樹脂組成物的酚樹脂，除本發明的芳香族多元羥基化合物以外，根據需要而亦可併用一種或兩種以上的各種酚樹脂。較佳為酚樹脂中至少 30 質量%為所述通式(1)所表示的芳香族多元羥基化合物，更佳為含有 50 質量%以上。於較其更少的情況下，有介電特性惡化之虞。

**【0033】** 作為本發明的熱硬化性樹脂組成物中可使用的酚樹脂系硬化劑，具體例可列舉：雙酚 A、雙酚 F、雙酚 C、雙酚 K、雙酚 Z、雙酚 S、四甲基雙酚 A、四甲基雙酚 F、四甲基雙酚 S、四甲基雙酚 Z、二羥基二苯基硫醚、4,4'-硫代雙(3-甲基-6-第三丁基苯酚)等雙酚類，或兒茶酚、雷瑣辛、甲基雷瑣辛、對苯二酚、單甲基對苯二酚、二甲基對苯二酚、三甲基對苯二酚、單-第三丁基對苯二酚、二-第三丁基對苯二酚等二羥基苯類，或二羥基萘、二羥基甲基萘、三羥基萘等羥基萘類，或 LC-950PM60 (新安

(Shin-AT&C) 公司製造) 等含磷的酚硬化劑, 或昭能 (Shonol) BRG-555 (愛克工業 (Aica Kogyo) 股份有限公司製造) 等苯酚酚醛清漆樹脂、DC-5 (日鐵化學&材料股份有限公司製造) 等甲酚酚醛清漆樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆樹脂、雙酚 A 酚醛清漆樹脂、樂吉拓 (Resitop) TPM-100 (群榮化學工業股份有限公司製造) 等三羥基苯基甲烷型酚醛清漆樹脂、萘酚酚醛清漆樹脂等酚類、萘酚類及/或雙酚類與醛類的縮合物, SN-160、SN-395、SN-485 (日鐵化學&材料股份有限公司製造) 等酚類、萘酚類及/或雙酚類與仲二甲苯基二醇的縮合物, 酚類及/或萘酚類與異丙基苯乙酮的縮合物, 酚類、萘酚類及/或雙酚類與二環戊二烯的反應產物, 酚類、萘酚類及/或雙酚類與聯苯系交聯劑的縮合物等所謂的被稱為酚醛清漆樹脂的酚化合物等。就獲取容易度的觀點而言, 較佳為苯酚酚醛清漆樹脂、二環戊二烯型酚樹脂、三羥基苯基甲烷型酚醛清漆樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆樹脂等。

【0034】 於酚醛清漆樹脂的情況下, 作為酚類, 可列舉苯酚、甲酚、二甲酚、丁基苯酚、戊基苯酚、壬基苯酚、丁基甲基苯酚、三甲基苯酚、苯基苯酚等, 作為萘酚類, 可列舉 1-萘酚、2-萘酚等, 此外可列舉所述雙酚類。作為醛類, 可例示: 甲醛、乙醛、丙醛、丁醛、戊醛、己醛、苯甲醛、氯醛、溴醛、乙二醛、丙二醛、丁二醛、戊二醛、己二醛、庚二醛、癸二醛、丙烯醛、巴豆醛、柳醛、鄰苯二甲醛、羥基苯甲醛等。作為聯苯系交聯劑, 可列舉: 雙(羥甲基)聯苯、雙(甲氧基甲基)聯苯、雙(乙氧基甲基)聯

苯、雙(氯甲基)聯苯等。

【0035】 本發明的熱硬化性樹脂組成物除馬來醯亞胺化合物及酚樹脂以外，亦可含有環氧樹脂。於熱硬化性樹脂組成物中，環氧樹脂的含量較佳為 10 質量%~80 質量%，更佳為 20 質量%~70 質量%。另外，相對於馬來醯亞胺化合物 100 質量份，環氧樹脂的含量較佳為 10 質量份~300 質量份，更佳為 20 質量份~280 質量份。

【0036】 作為環氧樹脂，分子中具有 2 個以上的環氧基的通常的環氧樹脂皆可使用。若舉例，則可列舉雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、四甲基雙酚 F 型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、雙酚芴型環氧樹脂、雙酚 S 型環氧樹脂、雙硫醚型環氧樹脂、雙萘基芴型環氧樹脂、氫醌型環氧樹脂、間苯二酚型環氧樹脂、萘二酚型環氧樹脂、苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、苯乙烯化苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚酚醛清漆型環氧樹脂、烷基酚醛清漆型環氧樹脂、雙酚酚醛清漆型環氧樹脂、萘酚酚醛清漆型環氧樹脂、聯苯基芳烷基酚型環氧樹脂、 $\beta$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、二萘酚芳烷基型環氧樹脂、 $\alpha$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、萘二酚芳烷基型環氧樹脂、三苯基甲烷型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、將結構式(1)所表示的芳香族多元羥基化合物環氧化而得的二環戊二烯型環氧樹脂、烷二醇型環氧樹脂、脂肪族環狀環氧樹脂、二胺基二苯基甲烷四縮水甘油胺、胺基酚型環氧樹脂、含磷的環氧樹脂、胺基甲酸酯改質環氧樹脂、含噁唑啉酮環的環氧樹脂，但並

不限定於該些。另外，該些環氧樹脂可單獨使用，亦可併用兩種以上。就獲取容易度的觀點而言，進而佳為使用萘二酚型環氧樹脂、苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、芳香族改質苯酚酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚酚醛清漆型環氧樹脂、 $\alpha$ -萘酚芳烷基型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、含磷的環氧樹脂、含噁唑啉酮環的環氧樹脂。

【0037】 進而，本發明的樹脂組成物中可根據需要而調配硬化促進劑。若使用硬化促進劑，則能夠與醯亞胺基進行交聯反應的化合物及含羥基的醯亞胺化合物中所含的羥基和醯亞胺基產生加成反應而交聯，因此硬化物顯示出良好的物性。

【0038】 若列舉硬化促進劑的例子，則有胺類、咪唑類、有機磷類、路易斯酸等，具體而言有 1,8-二氮雜雙環(5,4,0)十一烯-7、三乙二胺、苄基二甲基胺、三乙醇胺、二甲基胺基乙醇、三(二甲基胺基甲基)苯酚等三級胺，2-甲基咪唑、2-苯基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-十七烷基咪唑等咪唑類，三丁基磷、甲基二苯基磷、三苯基磷、二苯基磷、苯基磷等有機磷類，有機磷類與醯化合物的加成反應產物，四苯基磷-四苯基硼酸鹽、四苯基磷-乙基三苯基硼酸鹽、四丁基磷-四丁基硼酸鹽等四取代磷-四取代硼酸鹽，2-乙基-4-甲基咪唑-四苯基硼酸鹽、N-甲基嗎啉-四苯基硼酸鹽等四苯基硼酸鹽等。相對於樹脂組成物 100 質量份，添加量為 0.2 質量份～5 質量份的範圍。

【0039】 本發明的樹脂組成物可根據需要而含有填充材、矽烷偶

合劑、抗氧化劑、脫模劑、消泡劑、乳化劑、觸變性賦予劑、平滑劑、阻燃劑、顏料等其他添加劑等。

【0040】 作為填充材，具體而言可列舉：熔融二氧化矽、結晶二氧化矽、氧化鋁、氮化矽、氫氧化鋁、水鋁石（boehmite）、氫氧化鎂、滑石、雲母、碳酸鈣、矽酸鈣、氫氧化鈣、碳酸鎂、碳酸鋇、硫酸鋇、氮化硼、碳、碳纖維、玻璃纖維、氧化鋁纖維、二氧化矽氧化鋁纖維、碳化矽纖維、聚酯纖維、纖維素纖維、聚芳醯胺纖維、陶瓷纖維、微粒子橡膠、熱塑性彈性體、顏料等。作為使用填充材的理由，可列舉耐衝擊性的提高效果。另外，於使用氫氧化鋁、水鋁石、氫氧化鎂等金屬氫氧化物的情況下，具有作為阻燃助劑起作用而阻燃性提高的效果。

【0041】 於將樹脂組成物製成板狀基板等的情況下，就其尺寸穩定性、彎曲強度等方面而言，可列舉纖維狀者作為較佳的填充材。更佳為可列舉將玻璃纖維編織成網狀的纖維狀基材且使用填充材的玻璃纖維基板。

【0042】 相對於樹脂組成物（固體成分）100 質量份，填充材的調配量較佳為 1 質量份～150 質量份，更佳為 10 質量份～70 質量份。若調配量多，則有硬化物變脆而無法獲得充分的機械物性之虞。另外，若調配量少，則有無法發揮硬化物的耐衝擊性提高等調配填充劑的效果之虞。

相對於樹脂組成物（固體成分）100 質量份，其他添加劑的調配量較佳為 0.01 質量份～20 質量份的範圍。

【0043】 藉由對本發明的樹脂組成物進行加熱硬化而可獲得硬化物。作為用以獲得硬化物的方法，可較佳地使用注塑、壓縮成形、轉移成形等或藉由製成樹脂片材、帶樹脂的銅箔、預浸體等形態進行積層並加熱加壓硬化而製成積層板等的方法。此時的溫度通常為 150°C ~ 300°C 的範圍，硬化時間通常為 10 分鐘 ~ 5 小時左右。

【0044】 本發明的樹脂組成物可藉由將所述各成分均勻地混合來獲得。樹脂組成物可利用與先前已知的方法相同的方法來容易地製成硬化物。作為硬化物，可列舉：積層物、注塑物、成型物、接著層、絕緣層、膜等成形硬化物。

【0045】 作為使用樹脂組成物的用途，可列舉：印刷配線基板材料、撓性配線基板用樹脂組成物、增層基板用層間絕緣材料等電路基板用絕緣材料、半導體密封材料、導電糊、導電膜、增層用接著膜、樹脂注塑材料、接著劑等。該些各種用途中，於印刷配線基板材料、電路基板用絕緣材料、增層用接著膜用途中，可用作將電容器（condenser）等被動零件或積體電路（Integrated circuit, IC）晶片等主動零件埋入至基板內的所謂電子零件內藏用基板用的絕緣材料。該些用途中，就高阻燃性、高耐熱性、低介電特性及溶劑溶解性等特性而言，較佳為用於印刷配線板材料、撓性配線基板用樹脂組成物、增層基板用層間絕緣材料等電路基板（積層板）用材料及半導體密封材料中。

【0046】 作為使用本發明的樹脂組成物所獲得的密封材，有膠帶

狀半導體晶片用、灌注型液狀密封用、底部填充用、半導體層間絕緣膜用等，可較佳地用於該些用途中。為了將樹脂組成物製備為半導體密封材料用，可列舉如下方法：於樹脂組成物中預先混合根據需要而調配的無機填充材或偶合劑、脫模劑等添加劑，然後使用擠出機、捏合機、輥等充分熔融混合，直至變得均勻。此時，作為無機填充材，通常使用二氧化矽，較佳為於樹脂組成物中調配 70 質量%~95 質量%的無機填充材。

【0047】 於將以所述方式獲得的樹脂組成物用作半導體封裝的情況下，可列舉如下方法：對樹脂組成物進行注塑或者使用轉移成形機、射出成形機等對樹脂組成物進行成形，進而於 180°C ~ 250°C 下加熱硬化 0.5 小時~5 小時，藉此獲得成形物。於用作膠帶狀密封材的情況下，可列舉如下方法：對其進行加熱而製作半硬化片材，製成密封材膠帶後，將該密封材膠帶放置於半導體晶片上，加熱至 100°C ~ 150°C 使其軟化而進行成形，於 180°C ~ 250°C 下使其完全硬化。另外，於用作灌注型液狀密封材的情況下，只要將所獲得的樹脂組成物根據需要而溶解於溶劑中，然後塗佈於半導體晶片或電子零件上，直接使其硬化即可。

【0048】 本發明的樹脂組成物可溶解於有機溶劑中而製備成清漆狀態。作為可使用的有機溶劑，可列舉甲醇、乙醇等醇系溶媒，丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁基酮、環己酮等酮系溶媒，四氫呋喃等醚系溶媒，二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、N-甲基吡咯啉酮等含氮原子的溶媒，二甲基亞砷等含硫原子的溶媒等，可混合使

用一種或兩種以上。若為可工業性獲取的有機溶劑，則並無特別限定，就溶解性、操作性的方面而言，較佳為甲基乙基酮、二甲基甲醯胺。

【0049】 本發明的樹脂組成物可於製成溶解於有機溶劑中而得的組成物清漆後，含浸於玻璃布、聚芳醯胺不織布、液晶聚合物等聚酯不織布等纖維狀物中，然後進行溶劑除去，從而製成預浸體。另外，將組成物清漆塗佈於銅箔、不鏽鋼箔、聚醯亞胺膜、聚酯膜等片材狀物上，然後進行乾燥，藉此可製成接著片材。

【0050】 於使用所述預浸體來形成積層板的情況下，可將一片或多片預浸體積層，於單側或兩側配置金屬箔而構成積層物，對該積層物進行加壓加熱，藉此使預浸體硬化、一體化而獲得積層板。此處，作為金屬箔，可使用銅、鋁、黃銅、鎳等的單獨、合金、複合的金屬箔。作為對積層物進行加熱加壓的條件，只要於樹脂組成物硬化的條件下適宜調整而進行加熱加壓即可，但若加壓過低，則有於所獲得的積層板的內部殘留氣泡，電氣特性降低的情況，因此理想為於滿足成型性的條件下進行加壓。加熱溫度較佳為  $160^{\circ}\text{C} \sim 250^{\circ}\text{C}$ ，更佳為  $170^{\circ}\text{C} \sim 220^{\circ}\text{C}$ 。加壓壓力較佳為  $0.5 \text{ MPa} \sim 10 \text{ MPa}$ ，更佳為  $1 \text{ MPa} \sim 5 \text{ MPa}$ 。加熱加壓時間較佳為 10 分鐘  $\sim$  4 小時，更佳為 40 分鐘  $\sim$  3 小時。進而，可將以所述方式獲得的單層的積層板作為內層材而製成多層板。於所述情況下，首先利用加成法或減成法等對積層板實施電路形成，並對所形成的電路表面實施黑化處理，獲得內層材。於該內層材的單面或兩側的

電路形成面上，利用預浸體或接著片材形成絕緣層，並且於絕緣層的表面形成導體層，從而形成多層板。

[實施例]

【0051】 列舉實施例及比較例來對本發明進行具體說明，但本發明並不限定於該些。只要並無特別說明，則「份」表示質量份，「%」表示質量%，「ppm」表示質量 ppm。另外，測定方法是分別藉由以下的方法進行測定。

【0052】 • 羥基當量：

依據日本工業標準( Japanese Industrial Standards, JIS )K 0070 標準進行測定，單位以「g/eq.」來表示。再者，只要並無特別說明，則芳香族多元羥基化合物的羥基當量是指酚性羥基當量。

【0053】 • 軟化點：

依據 JIS K 7234 標準、環球法進行測定。具體而言，使用自動軟化點裝置(明達科(Meitec)股份有限公司製造，ASP-MG4)。

【0054】 • 銅箔剝離強度及層間接著力：

依據 JIS C 6481 進行測定，層間接著力是在第 7 層與第 8 層之間進行剝離測定。

【0055】 • 相對介電常數及介電損耗正切：

依據印刷電路協會( Institute of Printed Circuits, IPC )-TM-650 2.5.5.9，使用材料分析儀( material analyzer )(安捷倫科技( AGILENT Technologies )公司製造)，藉由電容法來求出頻率 1 GHz 下的相對介電常數及介電損耗正切，藉此進行評價。

**【0056】** •玻璃轉移溫度 (T<sub>g</sub>):

依據 JIS C 6481 標準進行測定。由利用動態黏彈性測定裝置 (日立高新技術科學 (High-Tech Science) 股份有限公司製造, 愛色塔 (EXSTAR) DMS6100) 於 5°C/分鐘的升溫條件下進行測定時的 tanδ 峰頂來表示。

**【0057】** •GPC (凝膠滲透層析法) 測定:

使用在本體 (東曹 (Tosoh) 股份有限公司製造, HLC-8220GPC) 中串列地包含管柱 (東曹股份有限公司製造, TSKgelG4000HXL、TSKgelG3000HXL、TSKgelG2000HXL) 的裝置, 管柱溫度設為 40°C。另外, 溶離液使用四氫呋喃 (THF), 流速設為 1 mL/分鐘, 檢測器使用示差折射率檢測器。測定試樣是使用 50 μL 的將樣品 0.1 g 溶解於 10 mL 的 THF 中並利用微濾器 (microfilter) 進行過濾而得者。資料處理是使用東曹股份有限公司製造的 GPC-8020 型號 II 版本 6.00。

**【0058】** •IR:

使用傅立葉轉換型紅外分光光度計 (珀金埃爾默精確 (Perkin Elmer Precisely) 製造, Spectrum One FT-IR Spectrometer 1760X), 單元使用 KRS-5, 將溶解於 THF 中的樣品塗佈於單元上, 使其乾燥後, 測定波數 650 cm<sup>-1</sup> ~ 4000 cm<sup>-1</sup> 的吸光度。

**【0059】** •ESI-MS:

使用質量分析計 (島津製作所製造, LCMS-2020), 使用乙腈與水作為流動相, 測定溶解於乙腈中的樣品, 藉此進行質量分析。

【0060】 實施例、比較例中使用的簡稱如下所述。

【0061】 [馬來醯亞胺化合物]

M1：苯基甲烷馬來醯亞胺（大和化成工業公司製造，BMI-2300）

M2：合成例 5 中獲得的馬來醯亞胺樹脂

【0062】 [芳香族多元羥基化合物]

P1：合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P2：合成例 2 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P3：合成例 3 中獲得的芳香族多元羥基化合物

P4：二環戊二烯型酚樹脂（群榮化學工業股份有限公司製造，GDP-6140，羥基當量 196，軟化點 130℃）

P5：聯苯基芳烷基型酚樹脂（明和化成股份有限公司製造，MEH-7851，羥基當量 223）

【0063】 [環氧樹脂]

E1：合成例 4 中獲得的環氧樹脂

E2：聯苯基芳烷基型環氧樹脂（日本化藥股份有限公司製造，NC-3000，環氧當量 274，軟化點 60℃）

【0064】 [硬化促進劑]

C1：2-乙基-4-甲基咪唑（四國化成工業股份有限公司製造，固唑（Curezol）2E4MZ）

【0065】 合成例 1

向包括具備攪拌機、溫度計、氮氣吹入管、滴液漏斗及冷卻

管的玻璃製可分離式燒瓶的反應裝置中，裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1 倍莫耳），一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時，然後在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 68 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.44 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10% 的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入甲基異丁基酮（methyl isobutyl ketone，MIBK）700 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 274 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P1）。為羥基當量為 299、軟化點 97°C 的樹脂，吸收比（A<sub>3040</sub>/A<sub>1210</sub>）為 0.17。測定基於 ESI-MS（負（negative））所得的質譜，結果確認到 M- = 253、375、507、629。將所獲得的芳香族多元羥基化合物（P1）的 GPC 示於圖 1 中，將 FT-IR 示於圖 2 中。基於 GPC 所得的 M<sub>w</sub> 為 690，M<sub>n</sub> 為 510，n=0 體含量為 6.5 面積%，n=1 體含量為 61.5 面積%，n=2 體以上的含量為 32.0 面積%。圖 1 的 a 表示通式（1）的 n=1 體與通式（1）的不存在 R<sup>2</sup> 加成體的 n=1 體的混合體，b 表示通式（1）的 n=0 體。圖 2 的 c 表示由二環戊二烯骨架的烯烴部位的 C-H 伸縮振動引起的波峰，d 表示由苯酚核的 C-O

伸縮振動引起的吸收。

### 【0066】 合成例 2

向與合成例 1 相同的反應裝置中裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1 倍莫耳），一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時後，在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 90.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.60 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10% 的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入 MIBK 740 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 310 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P2）。為羥基當量為 341、軟化點為 104°C 的樹脂，吸收比（A<sub>3040</sub>/A<sub>1210</sub>）為 0.27。測定基於 ESI-MS（負）所得的質譜，結果確認到 M- = 253、375、507、629。基於 GPC 所得的 Mw 為 830，Mn 為 530，n=0 體含量為 5.9 面積%，n=1 體含量為 60.1 面積%，n=2 體以上的含量為 34.0 面積%。

### 【0067】 合成例 3

向與合成例 1 相同的反應裝置中裝入 2,6-二甲酚 140 份、47%BF<sub>3</sub> 醚錯合物 9.3 份（相對於最初添加的二環戊二烯而為 0.1

倍莫耳)，一邊攪拌一邊加溫至 110°C。在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 86.6 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.57 倍莫耳）。進而於 110°C 的溫度下反應 3 小時後，在保持為相同溫度的同時，用 1 小時滴加二環戊二烯 34.0 份（相對於 2,6-二甲酚而為 0.22 倍莫耳）。進而於 120°C 下反應 2 小時。加入氫氧化鈣 14.6 份。進而添加 10% 的草酸水溶液 45 份。其後，加溫至 160°C 進行脫水後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 200°C 而將未反應的原料蒸發除去。加入 MIBK 608 份來溶解生成物，加入 80°C 的溫水 200 份來進行水洗，分離除去下層的水層。其後，於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 160°C 而將 MIBK 蒸發除去，獲得 253 份的紅褐色的芳香族多元羥基化合物（P3）。為羥基當量為 243、軟化點為 92°C 的樹脂，吸收比（ $A_{3040}/A_{1210}$ ）為 0.11。測定基於 ESI-MS（負）所得的質譜，結果確認到  $M=253$ 、375、507、629。基於 GPC 所得的  $M_w$  為 460， $M_n$  為 380， $n=0$  體含量為 5.6 面積%， $n=1$  體含量為 66.4 面積%， $n=2$  體以上的含量為 28.0 面積%。

#### 【0068】 合成例 4

向與合成例 1 相同的反應裝置中，加入合成例 1 中獲得的芳香族多元羥基化合物（P1）100 份、表氯醇 155 份及二乙二醇二甲醚 46 份，加溫至 65°C。於 125 mmHg 的減壓下，在保持為 63°C ~ 67°C 的溫度的同時，用 4 小時滴加 49% 氫氧化鈉水溶液 30.9 份。在此期間，使表氯醇與水共沸，將流出來的水依次除去至系統外。反應結束後，於 5 mmHg、180°C 的條件下回收表氯醇，加入 MIBK

277 份來溶解生成物。其後，加入 80 份的水來溶解副生成的食鹽，靜置而將下層的食鹽水分離除去。利用磷酸水溶液中中和後，對樹脂溶液進行水洗、過濾，直至水洗液成為中性。於 5 mmHg 的減壓下，加溫至 180°C，蒸餾除去 MIBK，獲得 113 份的紅褐色透明的 2,6-二甲酚-二環戊二烯型環氧樹脂。為環氧當量為 358、總氮含量為 520 ppm、軟化點為 80°C 的樹脂。基於 GPC 所得的 Mw 為 870，Mn 為 570。將所獲得的環氧樹脂 (E1) 的 GPC 示於圖 3 中。

#### 【0069】 合成例 5

向安裝有溫度計、冷卻管、迪安-斯塔克 (Dean-Stark) 共沸蒸餾分離器、攪拌機的燒瓶中，裝入苯胺 100 份與甲苯 50 份，於室溫下用 1 小時滴加 35% 鹽酸 39.2 份。滴加結束後，進行加熱，將共沸的水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內而進行脫水。繼而，將 4,4'-雙(氯甲基)聯苯 33.6 份一邊保持為 60°C ~ 70°C 一邊用 1 小時進行添加，進而於相同溫度下進行 2 小時反應。反應結束後，一邊進行升溫一邊將甲苯蒸餾除去，將系統內設為 195°C ~ 200°C，於該溫度下進行 15 小時反應。其後，一邊冷卻一邊將 30% 氫氧化鈉水溶液 86 份以於系統內不激烈回流的方式緩慢滴加，將於 80°C 以下進行升溫時所蒸餾除去的甲苯送回系統內，於 70°C ~ 80°C 下進行靜置。將分離的下層的水層除去，重覆進行反應液的水洗，直至清洗液成為中性。繼而，利用旋轉蒸發器，於加熱減壓下 (200°C、0.6 KPa) 自油層蒸餾除去過量的苯胺與甲苯，藉此獲得 47 份的芳香族胺樹脂。

其次，向所述燒瓶中裝入馬來酸酐 75 份與甲苯 150 份，進行加熱，將共沸的水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內而進行脫水。其次，一邊將系統內保持為 80°C ~ 85°C，一邊用 1 小時滴加使所述芳香族胺樹脂 100 份溶解於 N-甲基-2-吡咯啉酮 100 份中而成的樹脂溶液。滴加結束後，於相同溫度下進行 2 小時反應，加入對甲苯磺酸 1.5 份，將於回流條件下共沸的縮合水與甲苯冷卻、分液後，僅將作為有機層的甲苯送回系統內，進行脫水，同時進行 20 小時反應。反應結束後，追加 100 份的甲苯，重覆進行水洗而將對甲苯磺酸及過剩的馬來酸酐除去，進行加熱而藉由共沸將水自系統內除去。繼而，將反應溶液濃縮而獲得 133 份的馬來醯亞胺樹脂。

#### 【0070】 實施例 1

調配 100 份的馬來醯亞胺 M1、40 份的合成例 1 中獲得的樹脂、1.5 份的 2E4MZ，溶解於甲基乙基酮（Methyl Ethyl Ketone，MEK）中而獲得樹脂濃度 50%的樹脂組成物清漆。

【0071】 將所獲得的樹脂組成物清漆含浸於玻璃布（日東紡績股份有限公司製造，WEA 7628 XS13，厚度 0.18 mm）中。將已進行含浸的玻璃布於 150°C 的熱風循環烘箱中乾燥 10 分鐘，獲得預浸體。將所獲得的預浸體 8 片與銅箔（三井金屬礦業股份有限公司製造，3EC-III，厚度 35  $\mu\text{m}$ ）上下重疊，於 130°C  $\times$  15 分鐘 + 220°C  $\times$  120 分鐘的溫度條件下進行 2 MPa 的真空壓製，獲得厚度 1.6 mm 的積層板。將積層板的銅箔剝離強度、T<sub>g</sub> 的測定結果示於表 1 中。

【0072】 另外，將所獲得的預浸體拆開，製成通過 100 目的篩的粉狀的預浸體粉末。將所獲得的預浸體粉末放入氟樹脂製的模具中，於  $130^{\circ}\text{C} \times 15$  分鐘+ $220^{\circ}\text{C} \times 120$  分鐘的溫度條件下進行 2 MPa 的真空壓製，獲得 50 mm 見方 $\times$ 2 mm 厚的硬化樹脂試驗片。將試驗片的相對介電常數及介電損耗正切的測定結果示於表 1 中。

【0073】 實施例 2~實施例 7、比較例 1~比較例 5

以表 1 的配方的調配量（份）調配，使用與實施例 1 相同的裝置並藉由相同的操作而獲得樹脂組成物清漆，進而獲得積層板與硬化樹脂試驗片。進行與實施例 1 相同的試驗，將其結果示於表 1 中。

【0074】 [表 1]

	實施例							比較例				
	1	2	3	4	5	6	7	1	2	3	4	5
M1	100	100	100	100	100	100		100	100	100	100	
M2							100					100
E1					68							
E2						52					52	
P1	40	108			38	38	28					
P2			46									
P3				33								
P4								26	71			18
P5										31	28	
C1	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
銅箔剝離強度 (kN/m)	1.2	1.2	1.1	1.3	1.4	1.3	1.3	1.0	1.0	1.0	1.1	1.1
層間接著力 (kN/m)	0.9	0.9	0.8	1.0	1.0	0.9	1.0	0.5	0.5	0.6	0.7	0.7
相對介電常數	2.84	2.88	2.80	2.87	2.93	2.97	2.80	2.99	3.02	3.01	3.04	2.92
介電損耗正切	0.0039	0.0068	0.0035	0.0045	0.0060	0.0065	0.0055	0.0042	0.0073	0.0046	0.0072	0.0060
Tg (°C)	267	221	260	272	235	230	253	265	218	263	214	252

[產業上之可利用性]

【0075】 本發明的樹脂組成物的介電性、耐熱性、接著性優異，可用於積層、成型、接著等各種用途中，尤其是有效用作高速通信設備的電子材料。