



(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 106536635 B

(45)授权公告日 2020.02.28

(21)申请号 201580039316.4

(22)申请日 2015.07.14

(65)同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 106536635 A

(43)申请公布日 2017.03.22

(30)优先权数据
2014-147700 2014.07.18 JP

(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2017.01.18

(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/JP2015/070147 2015.07.14

(87)PCT国际申请的公布数据
W02016/010033 JA 2016.01.21

(73)专利权人 三菱瓦斯化学株式会社
地址 日本东京都

(72)发明人 野水健太郎 太田充 十龟政伸
马渊義則

(74)专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事
务所(普通合伙) 11277

代理人 刘新宇 李茂家

(51)Int.Cl.
C08L 101/00(2006.01)
B32B 15/08(2006.01)
B32B 27/20(2006.01)
C08J 5/24(2006.01)
C08K 3/34(2006.01)
C08K 5/3415(2006.01)
C08K 9/02(2006.01)

(56)对比文件
CN 101054460 A,2007.10.17,
CN 103917596 A,2014.07.09,
CN 101220160 A,2008.07.16,
JP 2006008843 A,2006.01.12,
JP 2008519879 A,2008.06.12,
JP H10265318 A,1998.10.06,

审查员 马俊魁

权利要求书2页 说明书13页

(54)发明名称

树脂组合物、预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板

(57)摘要

一种树脂组合物,其包含无机填充材料(B)和热固性化合物,所述无机填充材料(B)含有硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%、且平均粒径(D50)为0.5~10 μm的硅酸铝(A);所述热固性化合物为选自自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)、酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)和热固性聚酰亚胺树脂(J)组成的组中的1种以上,前述无机填充材料(B)的含量相对于树脂固体成分100质量份为250~800质量份。

1. 一种树脂组合物,其包含无机填充材料(B)和热固性化合物,

所述无机填充材料(B)含有硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%、且平均粒径(D50)为0.5~10 μ m的硅酸铝(A);

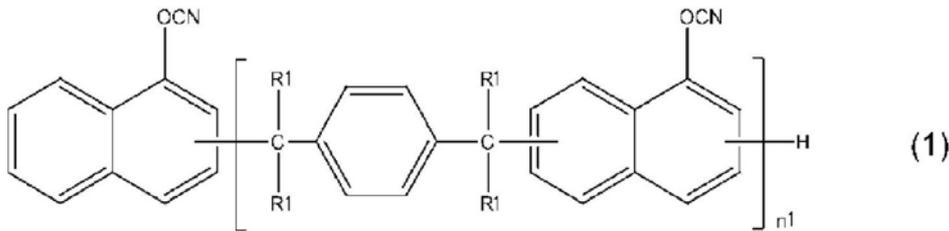
所述热固性化合物为选自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)、酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)和热固性聚酰亚胺树脂(J)组成的组中的1种以上,

所述无机填充材料(B)的含量相对于树脂固体成分100质量份为300~700质量份。

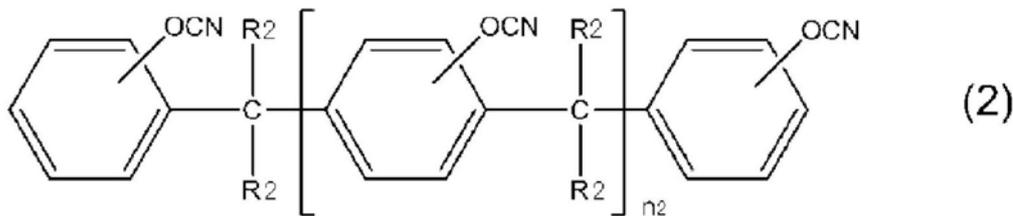
2. 根据权利要求1所述的树脂组合物,其中,所述无机填充材料(B)含有平均粒径(D50)为0.1~0.4 μ m的第二无机填充材料(K)。

3. 根据权利要求2所述的树脂组合物,其中,所述第二无机填充材料(K)为:选自由硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%的硅酸铝、氧化铝、氧化镁、氮化硼和氮化铝组成的组中的1种以上。

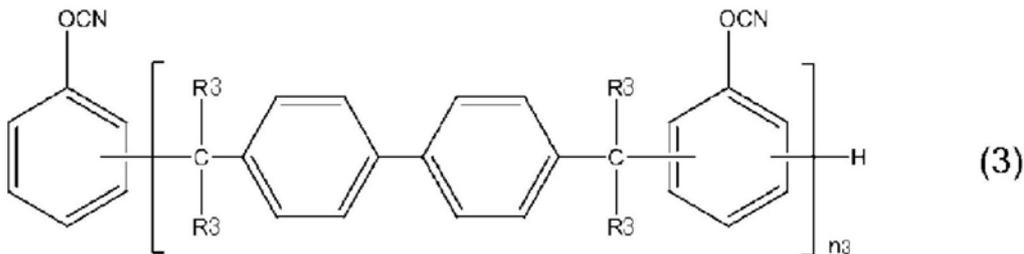
4. 根据权利要求1所述的树脂组合物,其中,所述氰酸酯化合物(D)为选自由通式(1)所示的萘酚芳烷基型氰酸酯化合物、通式(2)所示的酚醛清漆型氰酸酯化合物和通式(3)所示的联苯芳烷基型氰酸酯化合物组成的组中的1种以上,



式(1)中,R1分别独立地表示氢原子或甲基、n1表示1~50的整数,



式(2)中,R2分别独立地表示氢原子或甲基、n2表示1~50以上的整数,



式(3)中,R3分别独立地表示氢原子或甲基、n3表示1~50的整数。

5. 根据权利要求1所述的树脂组合物,其中,所述马来酰亚胺化合物(E)为选自由双(4-马来酰亚胺苯基)甲烷、2,2-双{4-(4-马来酰亚胺苯氧基)-苯基}丙烷和双(3-乙基-5-甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷组成的组中的1种以上。

6. 根据权利要求1所述的树脂组合物,其中,还含有钼化合物(L)。

7. 根据权利要求6所述的树脂组合物,其中,所述钼化合物(L)的含量相对于树脂固体

成分100质量份为0.1~10质量份。

8. 根据权利要求6或7所述的树脂组合物,其中,所述钼化合物(L)的表面用无机氧化物进行了处理。

9. 一种预浸料,其具有:

基材;和,

浸渗或涂布于该基材的权利要求1~8中任一项所述的树脂组合物。

10. 一种覆金属箔层叠板,其具有:

权利要求9所述的预浸料;和,

层叠于该预浸料的单面或两面的金属箔。

11. 一种印刷电路板,其包含:

含有权利要求1~8中任一项所述的树脂组合物的绝缘层;和,

形成于该绝缘层表面的导体层。

树脂组合物、预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板

技术领域

[0001] 本发明涉及树脂组合物、预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板。

背景技术

[0002] 近年,电子设备、通信机、个人电脑等中广泛使用的半导体的高集成化、高功能化、高密度安装化越来越加速,与以前相比也增加且提高了针对印刷电路板的特性的要求。特别是要求对发热的印刷电路板的放热技术。这是由于,伴随着半导体的高功能化,源自半导体产生的热量增大了,并且由于高集成化、高密度安装化的影响,渐渐成为内部容易存留热的构成。

[0003] 印刷电路板的绝缘层中使用的环氧树脂等热固性树脂本身的导热率低。因此,为了提高作为印刷电路板的导热率,已知有:在热固性树脂中高填充导热性优异的无机填充材料的方法(专利文献1)。

[0004] 现有技术文献

[0005] 专利文献

[0006] 专利文献1:日本特开2001-348488号公报

发明内容

[0007] 发明要解决的问题

[0008] 然而,在热固性树脂组合物中高填充无机填充材料时,热固性树脂的体积比率变少而导致成型性恶化,而且在树脂与无机填充材料之间变得容易产生裂纹、空隙。另外,作为导热性优异的无机填充材料,已知有氧化铝、勃姆石,但氧化铝硬,因此使用了含有氧化铝的树脂组合物的印刷电路板有加工性差的缺点,特别是,利用机械钻头的孔加工时,存在钻孔机钻针的磨耗、折损显著的问题。另一方面,勃姆石与氧化铝相比具有低的莫氏硬度,因此对使用了含有勃姆石的树脂组合物的印刷电路板赋予优异的加工性,但存在使介质损耗角正切恶化的问题。

[0009] 本发明是鉴于上述问题而作出的,课题在于,提供:能够得到保持优异的成型性、且提供放热特性、机械钻头加工性和介电特性优异、具有高的玻璃化转变温度的固化物的树脂组合物;使用其的预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板。

[0010] 用于解决问题的方案

[0011] 本发明人等发现:如果为包含规定量的含有规定的硅酸铝(A)的无机填充材料(B)和热固性化合物的树脂组合物,则可以解决上述课题,从而完成了本发明。

[0012] 即,本发明如以下所述。

[0013] [1]

[0014] 一种树脂组合物,其包含无机填充材料(B)和热固性化合物,

[0015] 所述无机填充材料(B)含有硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%、且平均粒径(D50)为0.5~10 μ m的硅酸铝(A);

[0016] 所述热固性化合物为选自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)、酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)和热固性聚酰亚胺树脂(J)组成的组中的1种以上,

[0017] 前述无机填充材料(B)的含量相对于树脂固体成分100质量份为250~800质量份。

[0018] [2]

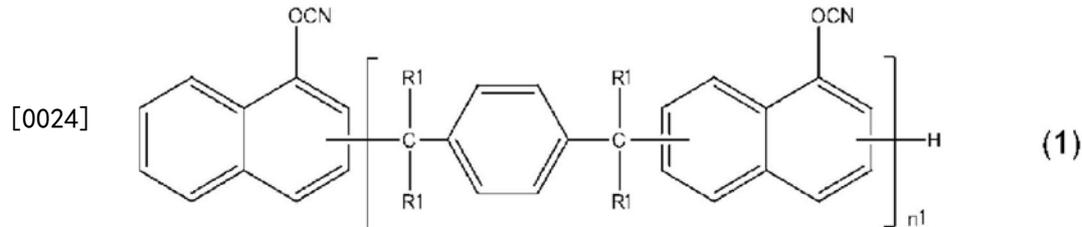
[0019] 根据[1]所述的树脂组合物,其中,前述无机填充材料(B)含有平均粒径(D50)为0.1~0.4 μm 的第二无机填充材料(K)。

[0020] [3]

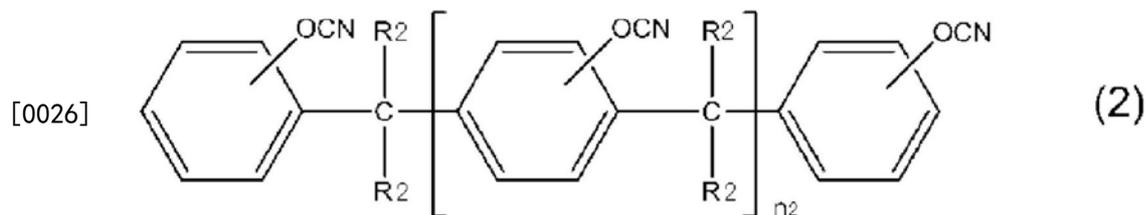
[0021] 根据[2]所述的树脂组合物,其中,前述第二无机填充材料(K)为:选自由硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%的硅酸铝、氧化铝、氧化镁、氮化硼和氮化铝组成的组中的1种以上。

[0022] [4]

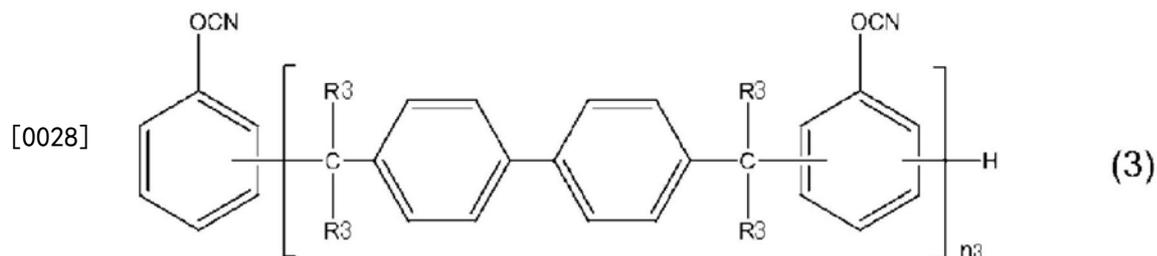
[0023] 根据[1]~[3]中任一项所述的树脂组合物,其中,前述氰酸酯化合物(D)为选自由通式(1)所示的萘酚芳烷基型氰酸酯化合物、通式(2)所示的酚醛清漆型氰酸酯化合物和通式(3)所示的联苯芳烷基型氰酸酯化合物组成的组中的1种以上。



[0025] (式中,R1分别独立地表示氢原子或甲基、n1表示1~50的整数。)



[0027] (式中,R2分别独立地表示氢原子或甲基、n2表示1~50以上的整数。)



[0029] (式中,R3分别独立地表示氢原子或甲基、n3表示1~50的整数。)

[0030] [5]

[0031] 根据[1]~[4]中任一项所述的树脂组合物,其中,前述马来酰亚胺化合物(E)为选自由双(4-马来酰亚胺苯基)甲烷、2,2-双{4-(4-马来酰亚胺苯氧基)-苯基}丙烷和双(3-乙基-5-甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷组成的组中的1种以上。

[0032] [6]

- [0033] 根据[1]~[5]中任一项所述的树脂组合物,其中,还含有钼化合物(L)。
- [0034] [7]
- [0035] 根据[6]所述的树脂组合物,其中,前述钼化合物(L)的含量相对于树脂固体成分100质量份为0.1~10质量份。
- [0036] [8]
- [0037] 根据[6]或[7]所述的树脂组合物,其中,前述钼化合物(L)的表面用无机氧化物进行了处理。
- [0038] [9]
- [0039] 一种预浸料,其具有:
- [0040] 基材;和,
- [0041] 浸渗或涂布于该基材的[1]~[8]中任一项所述的树脂组合物。
- [0042] [10]
- [0043] 一种覆金属箔层叠板,其具有:
- [0044] [9]所述的预浸料;和,
- [0045] 层叠于该预浸料的单面或两面的金属箔。
- [0046] [11]
- [0047] 一种印刷电路板,其包含:
- [0048] 含有[1]~[8]中任一项所述的树脂组合物的绝缘层;和,
- [0049] 形成于该绝缘层表面的导体层。
- [0050] 发明的效果
- [0051] 根据本发明,可以提供:能够得到保持优异的成型性、且提供放热特性、机械钻头加工性和介电特性优异、具有高的玻璃化转变温度的固化物的树脂组合物。特别是,对于使用树脂组合物得到的预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板,玻璃化转变温度高,不仅具有高的导热性,而且电特性、机械钻头加工性也良好,因此,适合于高集成、高密度化所对应的印刷电路板材料,工业上的实用性极其高。

具体实施方式

- [0052] 以下,对用于实施本发明的方式(以下,称为“本实施方式”)进行详细说明,但本发明不限于此,在不脱离其主旨的范围内可以进行各种变形。
- [0053] (树脂组合物)
- [0054] 本实施方式的树脂组合物包含无机填充材料(B)和热固性化合物,
- [0055] 所述无机填充材料(B)含有硅原子含有比率为9~23质量%、铝原子含有比率为21~43质量%、且平均粒径(D50)为0.5~10 μ m的硅酸铝(A);
- [0056] 所述热固性化合物为选自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)、酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)和热固性聚酰亚胺树脂(J)组成的组中的1种以上,
- [0057] 前述无机填充材料(B)的含量相对于树脂固体成分100质量份为250~800质量份。
- [0058] (无机填充材料(B))
- [0059] 无机填充材料(B)含有硅酸铝(A),根据需要可以含有其他成分。作为其他成分,优

选含有平均粒径 (D50) 为 $0.1 \sim 0.4 \mu\text{m}$ 的第二无机填充材料 (K)。

[0060] (硅酸铝 (A))

[0061] 硅酸铝一般用组成式： $m\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{SiO}_2$ 表示，是位于二氧化硅 (SiO_2) 中的硅原子的一部分被铝原子置换而得到的无机填充材料。本实施方式中，使用硅原子含有比率为 $9 \sim 23$ 质量%、铝原子含有比率为 $21 \sim 43$ 质量%、且平均粒径 (D50) 为 $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ 的硅酸铝 (A)。

[0062] 硅原子含有比率相对于硅酸铝 (A) 100 质量% 为 $9 \sim 23$ 质量%，优选为 $14 \sim 23$ 质量%，更优选为 $16 \sim 21$ 质量%。通过硅原子含有比率为上述范围内，所得固化物的机械钻头加工性进一步提高。

[0063] 硅酸铝 (A) 的二氧化硅 (SiO_2) 含有比率优选为 $20 \sim 49$ 质量%，更优选为 $30 \sim 49$ 质量%，进一步优选为 $35 \sim 45$ 质量%。通过二氧化硅含有比率为上述范围内，有所得固化物的机械钻头加工性进一步提高的倾向。

[0064] 铝原子含有比率相对于硅酸铝 (A) 100 质量% 为 $21 \sim 43$ 质量%，优选为 $23 \sim 40$ 质量%，更优选为 $26 \sim 38$ 质量%。通过铝原子含有比率为上述范围内，所得固化物的导热性、电特性进一步提高。

[0065] 硅酸铝 (A) 的氧化铝 (Al_2O_3) 含有比率优选为 $41 \sim 80$ 质量%，更优选为 $45 \sim 75$ 质量%，进一步优选为 $50 \sim 70$ 质量%。通过氧化铝含有比率为上述范围内，有所得固化物的导热性、电特性进一步提高的倾向。

[0066] 另外，氧化铝含有比率与二氧化硅含有比率的总计优选为 $90 \sim 100$ 质量% 的含有比率。

[0067] 硅原子含有比率和铝原子含有比率可以通过实施例记载的方法测定。

[0068] 硅酸铝 (A) 也可以包含除了硅原子、铝原子和氧原子以外的其他原子。作为其他原子，没有特别限定，例如可以举出：钛、铁等。需要说明的是，其他原子也可以在硅酸铝 (A) 中以氧化钛 (TiO_2)、氧化铁 (III) (Fe_2O_3) 等形态而包含。包含其他原子时，硅原子、铝原子和氧原子的总计含有比率相对于硅酸铝 (A) 100 质量% 优选为 $90 \sim 100$ 质量%，更优选为 $95 \sim 100$ 质量%，进一步优选为 100 质量%。通过硅原子、铝原子和氧原子的总计含有比率为上述范围内，有所得固化物的机械钻头加工性、导热性和电特性进一步提高的倾向。

[0069] 硅酸铝 (A) 的平均粒径 (D50) 为 $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ ，优选为 $2 \sim 8 \mu\text{m}$ ，更优选为 $3 \sim 7 \mu\text{m}$ 。通过平均粒径 (D50) 为上述范围，所得固化物的绝缘可靠性、开孔加工性和导热性进一步提高。需要说明的是，平均粒径 (D50) 是指中值粒径，是将测定的粉体的粒度分布分成 2 部分时的较大一侧和较小一侧变为等量的直径。平均粒径 (D50) 一般可以通过湿式激光衍射·散射法测定。

[0070] 硅酸铝 (A) 的形状没有特别限定，优选更接近于圆球状形状。通过硅酸铝 (A) 的形状接近于圆球状，比表面积变小，有树脂组合物的流动性提高的倾向。因此，有在高填充有无机填充材料的组成中也可以降低成型时的空隙等成型不良的倾向。

[0071] 硅酸铝 (A) 的含量相对于树脂固体成分 100 质量份优选为 $200 \sim 600$ 质量份，更优选为 $250 \sim 500$ 质量份，进一步优选为 $300 \sim 450$ 质量份。通过硅酸铝 (A) 的含量为上述范围内，有所得固化物的导热率和成型性进一步提高的倾向。

[0072] 另外，硅酸铝 (A) 的含量相对于无机填充材料 (B) 100 质量% 优选为 $60 \sim 100$ 质量%，更优选为 $70 \sim 100$ 质量%，进一步优选为 100 质量%。通过硅酸铝 (A) 的含量为上述范

围内,有所得固化物的导热率和机械钻头加工性进一步提高的倾向。

[0073] (其他成分)

[0074] 作为本实施方式的无机填充材料(B)中使用的除了硅酸铝(A)以外的其他成分,只要是印刷电路板用的绝缘性树脂中使用的就没有特别限定,例如可以举出:天然二氧化硅、熔融二氧化硅、无定形二氧化硅、中空二氧化硅等二氧化硅类;除了硅酸铝(A)以外的硅酸铝、氧化铝、氧化镁等氧化物;氢氧化铝、勃姆石、氢氧化镁、氢氧化铝加热处理品(对氢氧化铝进行加热处理而使结晶水的一部分减少而得到的物质)等金属水合物;氮化硼、聚集氮化硼、氮化硅、氮化铝等氮化物;硼酸锌、锡酸锌、粘土、高岭土、滑石、焙烧粘土、焙烧高岭土、焙烧滑石、云母、玻璃短纤维(E玻璃、D玻璃等玻璃微粉末类)、中空玻璃等。它们可以使用1种或适当组合2种以上使用。

[0075] 除了硅酸铝(A)以外的其他成分的平均粒径(D50)优选为 $0.1\sim 10\mu\text{m}$,更优选为 $0.1\sim 0.4\mu\text{m}$ 。通过平均粒径(D50)为上述范围内,有分散性进一步提高的倾向。另外,其他成分的形状没有特别限定,优选更接近于圆球状。通过形状接近于圆球状,有比表面积变小的倾向。

[0076] (第二无机填充材料(K))

[0077] 前述的无机填充材料(B)中的除了硅酸铝(A)以外的其他成分中,优选使用平均粒径(D50)为 $0.1\sim 0.4\mu\text{m}$ 的第二无机填充材料(K)。作为第二无机填充材料(K),没有特别限定,例如可以举出:选自由硅原子含有比率为 $9\sim 23$ 质量%、铝原子含有比率为 $21\sim 43$ 质量%的硅酸铝、氧化铝、氧化镁、氮化硼和氮化铝组成的组中的1种以上。通过使用这样的第二无机填充材料(K),有所得固化物的导热性进一步提高的倾向。

[0078] 第二无机填充材料(K)的平均粒径(D50)优选为 $0.1\sim 0.4\mu\text{m}$,更优选为 $0.2\sim 0.4\mu\text{m}$ 。通过平均粒径(D50)为上述范围内,第二无机填充材料(K)可以进入到平均粒径较大的硅酸铝(A)等的间隙。由此,可以提高树脂组合物中的无机填充材料的体积含有率,进而有导热率进一步提高的倾向。另外,第二无机填充材料(K)的形状没有特别限定,优选更接近于圆球形的形状。通过形状接近于圆球状,树脂组合物的流动性提高,因此有高填充无机填充材料(B)时也可以降低成型时的空隙等成型不良的倾向。

[0079] 第二无机填充材料(K)的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为 $50\sim 200$ 质量份,更优选为 $75\sim 150$ 质量份,进一步优选为 $100\sim 125$ 质量份。通过第二无机填充材料(K)的含量为上述范围内,有所得固化物的导热率和成型性进一步提高的倾向。

[0080] 硅酸铝(A)的质量与第二无机填充材料(K)的质量的比优选为 $1:0.03\sim 1:0.5$,更优选为 $1:0.1\sim 1:0.45$,进一步优选为 $1:0.2\sim 1:0.4$ 。平均粒径(D50)较小的第二无机填充材料(K)的颗粒可以进入到平均粒径(D50)大的其他无机填充剂的颗粒的间隙。因此,通过质量比率为上述范围内,有可以进一步提高树脂组合物中的无机填充剂的填充密度的倾向。其结果,作为树脂组合物的流动性提高,有可以降低加压成型时的空隙等成型不良的倾向。

[0081] 无机填充材料(B)的含量相对于树脂固体成分100质量份为 $250\sim 800$ 质量份,优选为 $300\sim 700$ 质量份,更优选为 $400\sim 500$ 质量份。通过无机填充材料(B)的含量为上述范围内,导热率和成型性进一步提高。其中特别是“树脂固体成分”,只要没有特别限定就是指,树脂组合物中的排除了溶剂和无机填充材料(B)的成分,“树脂固体成分100质量份”是指,

将树脂组合物中的排除了溶剂和无机填充材料的成分的总计设为100质量份。

[0082] 另外,无机填充材料(B)的体积相对于树脂组合物的总体积100体积%优选为40~70体积%,更优选为50~70体积%。通过无机填充材料(B)的体积比率为上述范围内,有所得固化物的导热率进一步提高的倾向。

[0083] (热固性化合物)

[0084] 热固性化合物含有选自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)、酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)和热固性聚酰亚胺树脂(J)组成的组中的任意1种以上。

[0085] 其中,作为热固性化合物,优选选自由环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)和马来酰亚胺化合物(E)组成的组中的1种以上。通过使用环氧树脂(C),有所得固化物的耐热性、导热性和吸水率等特性进一步提高的倾向。另外,通过使用氰酸酯化合物(D),对溶剂的溶解性变良好,所得固化物的耐热性、耐化学药品性进一步提高,另外,有树脂组合物的固化性进一步提高的倾向。进而,通过使用马来酰亚胺化合物(E),所得固化物的耐热性、耐化学药品性进一步提高,另外,有树脂组合物的固化性等进一步提高的倾向。进而,通过同时使用环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)和马来酰亚胺化合物(E),有所得固化物的阻燃性、耐热性、耐化学药品性、导热性、吸水率、固化性和弹性模量进一步提高的倾向。需要说明的是,热固性化合物可以使用1种或适当组合2种以上使用。以下,对各化合物进行说明。

[0086] (环氧树脂(C))

[0087] 作为环氧树脂(C),只要为1分子中具有2个以上环氧基的化合物就没有特别限定,可以使用公知的物质。例如可以举出:联苯芳烷基型环氧树脂、聚氧化亚萘基型环氧树脂、三酚甲烷型环氧树脂、双酚A型环氧树脂、双酚F型环氧树脂、苯酚酚醛清漆型环氧树脂、甲酚酚醛清漆型环氧树脂、双酚A酚醛清漆型环氧树脂、溴化双酚A型环氧树脂、溴化苯酚酚醛清漆型环氧树脂、3官能苯酚型环氧树脂、4官能苯酚型环氧树脂、萘型环氧树脂、联苯型环氧树脂、苯酚芳烷基型环氧树脂、萘酚芳烷基型环氧树脂、脂环式环氧树脂、多元醇型环氧树脂、含磷环氧树脂、缩水甘油胺、缩水甘油酯、使丁二烯等的双键环氧化而成的化合物、通过含羟基有机硅树脂类与环氧氯丙烷的反应而得到的化合物等。

[0088] 其中,优选联苯芳烷基型环氧树脂、聚氧化亚萘基型环氧树脂、三酚甲烷型环氧树脂、双酚A型环氧树脂、双酚F型环氧树脂、苯酚酚醛清漆型环氧树脂、甲酚酚醛清漆型环氧树脂、双酚A酚醛清漆型环氧树脂、溴化双酚A型环氧树脂、溴化苯酚酚醛清漆型环氧树脂、联苯型环氧树脂、苯酚芳烷基型环氧树脂、萘酚芳烷基型环氧树脂。通过使用这些环氧树脂(C),有维持所得固化物的耐热性,且吸水性和吸湿耐热性等特性进一步提高的倾向。这些环氧树脂(C)可以使用1种或适当组合2种以上使用。

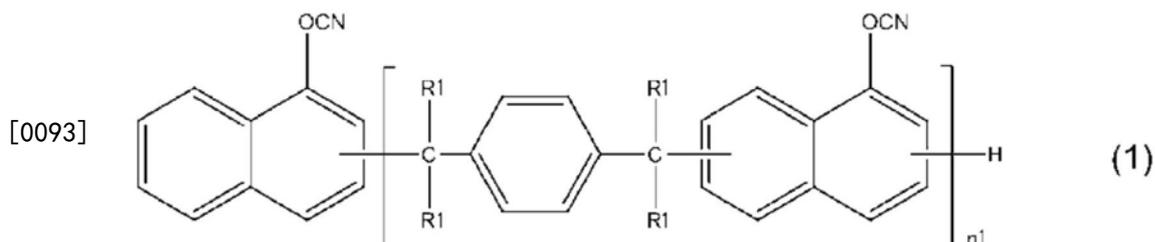
[0089] 环氧树脂(C)的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为10~90质量份,更优选为30~70质量份,进一步优选为30~50质量份。通过环氧树脂(C)的含量为上述范围内,有所得固化物的耐热性、导热性和吸水性进一步提高的倾向。

[0090] (氰酸酯化合物(D))

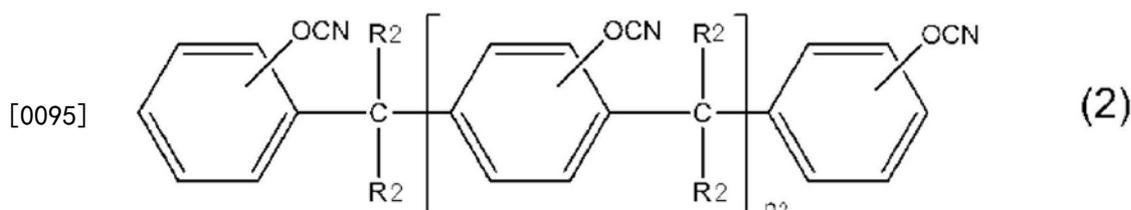
[0091] 作为氰酸酯化合物(D),没有特别限定,可以使用一般公知的氰酸酯化合物。例如可以举出:下述通式(1)所示的萘酚芳烷基型氰酸酯化合物、下述通式(2)所示的酚醛清漆型氰酸酯化合物、下述通式(3)所示的联苯芳烷基型氰酸酯化合物、1,3-二氰酸酯基苯、1,

4-二氰酸酯基苯、1,3,5-三氰酸酯基苯、双(3,5-二甲基4-氰酸酯基苯基)甲烷、1,3-二氰酸酯基萘、1,4-二氰酸酯基萘、1,6-二氰酸酯基萘、1,8-二氰酸酯基萘、2,6-二氰酸酯基萘、2,7-二氰酸酯基萘、1,3,6-三氰酸酯基萘、4,4'-二氰酸酯基联苯、双(4-氰酸酯基苯基)甲烷、双(4-氰酸酯基苯基)丙烷、双(4-氰酸酯基苯基)醚、双(4-氰酸酯基苯基)硫醚、双(4-氰酸酯基苯基)砜、2,2'-双(4-氰酸酯基苯基)丙烷、双(3,5-二甲基-4-氰酸酯基苯基)甲烷等。

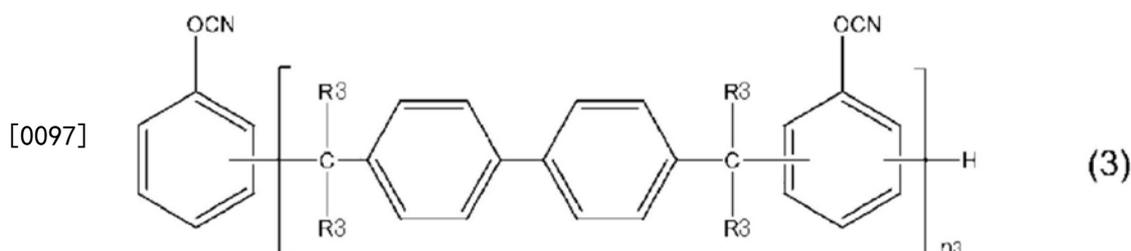
[0092] 其中,优选选自由下述通式(1)所示的萘酚芳烷基型氰酸酯化合物、下述通式(2)所示的酚醛清漆型氰酸酯化合物和下述通式(3)所示的联苯芳烷基型氰酸酯化合物组成的组中的1种以上。通过使用这样的氰酸酯化合物(D),有所得固化物的阻燃性进一步提高,树脂组合物的固化性进一步提高,且固化物的热膨胀系数进一步降低的倾向。



[0094] (式中,R1分别独立地表示氢原子或甲基,n1表示1~50的整数。)



[0096] (式中,R2分别独立地表示氢原子或甲基,n2表示1~50的整数。)



[0098] (式中,R3分别独立地表示氢原子或甲基,n3表示1~50的整数。)

[0099] 上述通式(1)中,取代基R1分别独立地表示氢原子或甲基。其中,优选取代基R1为氢的 α -萘酚芳烷基型的氰酸酯化合物。通过使用这样的氰酸酯化合物(D),有维持所得固化物的耐热性,且吸水性和吸湿耐热性等进一步提高的倾向。另外,上述通式(1)中,n1~n3分别表示1~50的整数,n不同的多种氰酸酯化合物(D)可以使用1种或也可以适当混合2种以上来使用。

[0100] 氰酸酯化合物(D)的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为10~90质量份,更优选为15~70质量份,进一步优选为20~50质量份,特别优选为20~40质量份。通过氰酸酯化合物(D)的含量为上述范围内,有所得固化物的耐热性、树脂组合物的溶剂溶解性和固化性进一步提高的倾向。

[0101] (马来酰亚胺化合物(E))

[0102] 作为马来酰亚胺化合物(E),只要为1分子中具有1个以上马来酰亚胺基的化合物

就没有特别限定。例如可以举出：双(4-马来酰亚胺苯基)甲烷、2,2-双{4-(4-马来酰亚胺苯氧基)-苯基}丙烷、双(3,5-二甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷、双(3-乙基-5-甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷、双(3,5-二乙基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷、三(4-马来酰亚胺苯基)甲烷。这些马来酰亚胺化合物可以单独使用或适当组合2种以上使用。另外,不仅可以为单体的形态也可以为预聚物的形态,另外,也可以为双马来酰亚胺化合物与胺化合物的预聚物的形态。其中,从耐热性的观点出发,可以适合使用选自由双(4-马来酰亚胺苯基)甲烷、2,2-双{4-(4-马来酰亚胺苯氧基)-苯基}丙烷和双(3-乙基-5-甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷组成的组中的1种以上。

[0103] 马来酰亚胺化合物(E)的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为10~90质量份,更优选为15~70质量份,进一步优选为20~50质量份,特别优选为20~40质量份。通过马来酰亚胺化合物(E)的含量为上述范围内,有所得固化物的耐热性、树脂组合物的固化性进一步提高的倾向。

[0104] (其他树脂)

[0105] 进而,酚醛树脂(F)、丙烯酸类树脂(G)、聚酰胺树脂(H)、聚酰胺酰亚胺树脂(I)、热固性聚酰亚胺树脂(J)等热固性化合物只要为一般公知的树脂就没有特别限定。另外,这些树脂优选与选自环氧树脂(C)、氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)中的任意1种以上的成分适当组合使用。

[0106] (钼化合物(L))

[0107] 本实施方式的树脂组合物可以还含有钼化合物(L)。通过含有钼化合物(L),有所得固化物的机械钻头加工性进一步提高的倾向。需要说明的是,本实施方式的无机填充剂中不含钼化合物。

[0108] 作为钼化合物(L),只要分子内包含钼就没有特别限定,例如可以举出:钼酸、钼酸锌、钼酸铵、钼酸钠、钼酸钙、钼酸钾、三氧化钼、二硫化钼等。其中,从不作为有机金属催化剂发挥作用的方面出发,优选钼酸、钼酸锌、钼酸铵、三氧化钼。

[0109] 优选钼化合物(L)的表面用无机氧化物进行了处理。作为表面处理方法,没有特别限定,例如可以举出:能够对从商业上获得的钼化合物的表面通过溶胶凝胶法、液相析出法等方法利用无机氧化物进行处理的方法。表面用无机氧化物处理过的钼化合物(L)对于放热特性该无机氧化物发挥作用,对于机械钻头加工性钼化合物(L)发挥作用,因此可以兼顾机械钻头加工性与耐热性这二个相反的特性,故特别优选。

[0110] 作为对钼化合物(L)进行表面处理的无机氧化物,没有特别限定,例如可以举出:二氧化硅、二氧化钛、氧化铝、硅氧化物(siloxide)等。其中,从放热特性、绝缘特性的方面出发,优选二氧化硅。

[0111] 另外,对钼化合物(L)进行表面处理的表面无机氧化物的厚度没有特别限定,优选为15~50nm。通过表面无机氧化物的厚度为15nm以上,有耐热性进一步提高的倾向。另外,通过表面无机氧化物的厚度为50nm以下,有可以减少对钼化合物(L)用无机氧化物进行处理时产生的裂纹的倾向。

[0112] 作为表面用无机氧化物进行了处理的钼化合物(L)的制造方法,例如,使钼化合物粉体分散于溶解有硅醇盐、铝醇盐等金属醇盐的醇溶液中,边搅拌边滴加水与醇和催化剂的混合溶液,使醇盐水解,从而在粉体表面形成作为覆膜的氧化硅或氧化铝等覆膜。之后,

将粉体固液分离并真空干燥后,与前述同样地实施热处理。通过该操作,可以得到在粉体的表面具有覆膜的钼化合物(L)。

[0113] 钼化合物(L)的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为0.1~10质量份,更优选为0.3~5质量份,进一步优选为0.5~3质量份。通过钼化合物(L)的含量为上述范围内,有机械钻头加工性进一步提高的倾向。

[0114] (其他成分)

[0115] 本实施方式的树脂组合物可以根据需要除了上述成分以外包含其他成分。例如,本实施方式的树脂组合物也可以包含硅烷偶联剂。硅烷偶联剂的硅烷醇基与表面具有羟基的原材料特别显示出亲和性和反应性,因此对有机物-无机物的结合提高有效果,无机填充材料的表面与硅烷偶联剂反应时,热固性树脂与无机填充材料的密合性得到改善。即,这是由于,可以期待提高剥离强度、弹性模量、吸湿耐热性和固化物的外观的效果。

[0116] 作为所使用的硅烷偶联剂,只要为一般无机物的表面处理中使用的硅烷偶联剂就没有特别限定。作为具体例,可以举出: γ -氨基丙基三乙氧基硅烷、N- β -(氨基乙基)- γ -氨基丙基三甲氧基硅烷等氨基硅烷系硅烷偶联剂; γ -环氧丙氧基丙基三甲氧基硅烷等环氧硅烷系硅烷偶联剂; γ -甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷等乙烯基硅烷系硅烷偶联剂;N- β -(N-乙烯基苄基氨基乙基)- γ -氨基丙基三甲氧基硅烷盐酸盐等阳离子性硅烷系硅烷偶联剂;苯基硅烷系硅烷偶联剂等。硅烷偶联剂可以使用1种或适当组合2种以上使用。

[0117] 硅烷偶联剂的含量相对于树脂固体成分100质量份优选为3~30质量份。通过硅烷偶联剂的含量为上述范围,有进一步提高树脂与无机填充材料的密合性而不降低所得固化物的玻璃化转变温度的倾向。

[0118] 另外,本实施方式的树脂组合物根据需要也可以包含湿润分散剂。通过使用湿润分散剂,可以进一步提高无机填充材料的分散性。作为这些湿润分散剂,只要为涂料用中使用的分散稳定剂就没有特别限定,例如可以举出:BYK Japan株式会社制造的Disperbyk-110、111、161、180、W903等。湿润分散剂可以使用1种或适当组合2种以上使用。

[0119] 另外,为了适当调节固化速度,本实施方式的树脂组合物也可以包含固化促进剂。作为固化促进剂,只要为作为上述热固性化合物的固化促进剂一般使用的物质就没有特别限定。例如可以举出:铜、锌、钴、镍、锰等的有机金属盐类、咪唑类和其衍生物,叔胺等。另外,上述固化促进剂可以使用1种或适当组合2种以上使用。固化促进剂的含量从树脂的固化度、树脂组合物的粘度等观点出发可以适当调整,通常相对于树脂固体成分100质量份为0.01~15质量份左右。

[0120] 另外,也可以添加其他热固性化合物、热塑性化合物和其低聚物、弹性体类等各种高分子化合物、其他阻燃性的化合物、添加剂等。它们只要为一般使用的物质就没有特别限定。例如,作为阻燃性的化合物,可以举出:磷酸酯、磷酸三聚氰胺等磷化合物;三聚氰胺、苯并胍胺等含氮化合物;含噁嗪环化合物;硅酮系化合物等。作为添加剂,可以举出:紫外线吸收剂、抗氧化剂、光聚合引发剂、荧光增白剂、光敏化剂、染料、颜料、增稠剂、润滑剂、消泡剂、分散剂、流平剂、光泽剂、阻聚剂等,根据需要,可以使用1种或适当组合2种以上使用。

[0121] 本实施方式的树脂组合物可以根据需要包含有机溶剂。有机溶剂是为了降低树脂组合物的粘度,提高操作性且提高与玻璃布的浸渗性而使用的。作为有机溶剂,只要上述热固性化合物的混合物相容就没有特别限定。例如可以举出:丙酮、甲乙酮、甲基异丁基酮、环

己酮等酮类;苯、甲苯、二甲苯等芳香族烃类;二甲基甲酰胺、二甲基乙酰胺等酰胺类等,不限于这些。另外,这些有机溶剂可以单独使用或适当组合2种以上使用。

[0122] (树脂组合物的制作方法)

[0123] 本实施方式的树脂组合物的制作方法只要为将含有硅酸铝(A)的无机填充材料(B)以及热固性化合物组合来制作树脂组合物的方法就没有特别限定。例如可以举出:使含有硅酸铝(A)的无机填充材料(B)用均质混合器等分散于环氧树脂(C)中,向其中配混氰酸酯化合物(D)、马来酰亚胺化合物(E)的方法等。进而,为了降低粘度、提高操作性且提高对玻璃布的浸渗性,期望添加有机溶剂。

[0124] (用途)

[0125] 上述树脂组合物可以作为预浸料、覆金属箔层叠板和印刷电路板等的构成材料使用。

[0126] 本实施方式的预浸料具有:基材;和,浸渗或涂布于该基材的上述树脂组合物。本实施方式的预浸料的制造方法只要为将上述树脂组合物与基材组合来制造预浸料的方法就没有特别限定。例如可以举出:通过使上述树脂组合物浸渗或涂布于基材后,在100~200℃的干燥机中,加热1~60分钟的方法等,从而使其半固化来制造预浸料的方法等。树脂组合物(包含无机填充材料)对基材的附着量相对于预浸料的总量优选为40~95质量%。

[0127] 制造本实施方式的预浸料时使用的基材可以使用各种印刷电路板材料中使用的公知的物质。例如可以举出:E玻璃、T玻璃、L玻璃、D玻璃、S玻璃、NE玻璃、石英等无机纤维、聚酰亚胺、聚酰胺、聚酯等有机纤维,可以根据目标用途、性能而适当选择。

[0128] 作为基材的形状,可以举出:织布、无纺布、粗纱、短切毡、气垫等。对于基材的厚度,没有特别限定,通常为0.01~0.3mm,例如如果为层叠板用途则0.01~0.2mm的范围是适合的。

[0129] 上述基材从与树脂的密合性、吸湿耐热性的观点出发,可以实施表面处理,例如,可以对基材的表面用硅烷偶联剂等进行表面处理。另外,作为基材使用织布时,可以对织布以物理的方式进行开纤。作为基材使用薄膜时,从与树脂的密合性的观点出发,优选事先对基材用等离子体处理等进行表面处理。

[0130] 本实施方式的层叠板具有:上述预浸料;和,层叠于该预浸料的单面或两面的金属箔。具体而言,可以如下制造:将上述预浸料1张或多张重叠,根据期望以在其单面或两面配置有铜、铝等的金属箔的构成进行层叠成型,从而制造。使用的金属箔只要用于印刷电路板材料就没有特别限定。作为成型条件,可以应用通常的印刷电路板用层叠板和多层板的方法。例如,使用多级加压、多级真空加压、连续成型、高压釜成型机等,温度为100~300℃,压力为2~100kgf/cm²,加热时间为0.05~5小时的范围是一般的。另外,也可以将本发明的预浸料与另行制作好的内层用的线路板组合并进行层叠成型,从而也可以形成多层板。

[0131] 上述本实施方式的覆金属箔层叠板可以通过形成规定的布线图案而作为印刷电路板适合使用。而且,本发明的覆金属箔层叠板具有低的热膨胀率、良好的成型性和耐化学药品性,作为要求这样的性能的半导体封装体用印刷电路板,可以尤其有效地使用。

[0132] 本实施方式的印刷电路板包含:含有上述树脂组合物的绝缘层;和,形成于该绝缘层表面的导体层。印刷电路板例如可以通过以下方法制造。首先,准备覆铜层叠板等上述覆金属箔层叠板。对覆金属箔层叠板的表面实施蚀刻处理而进行内层电路的形成,制作内装

基板。对该内层基板的内层电路表面根据需要进行用于提高粘接强度的表面处理,接着,在该内层电路表面重叠规定张数的本发明的预浸料,进而在其外侧层叠外层电路用的金属箔,加热加压而进行一体形成。如此,制造在内层电路与外层电路用的金属箔之间形成有基材和由热固性树脂组合物的固化物形成的绝缘层的多层层叠板。接着,对该多层层叠板实施通孔、导通孔用的开孔加工后,进行表面沾污去除处理来去除作为固化物层中所含的源自树脂成分的树脂残渣的表面沾污。之后,在该孔的壁面形成使内层电路与外层电路用的金属箔导通的镀金属覆膜,进而对外层电路用的金属箔实施蚀刻处理而形成外层电路,制造印刷电路板。

[0133] 本发明的预浸料(基材和其中添加的本发明的树脂组合物)、覆金属箔层叠板的树脂组合物层(由本发明的树脂组合物形成的层)构成包含本发明的树脂组合物的绝缘层。

[0134] 实施例

[0135] 以下,利用合成例、实施例和比较例具体地说明本实施方式,但本实施方式不限于这些。

[0136] (合成例1)

[0137] 使 α -萘酚芳烷基树脂(SN495V,OH基当量:236g/eq.,新日铁住金化学株式会社制造:包含n为1~5的物质)0.47mol(OH基换算)溶解于氯仿500mL,在该溶液中添加三乙胺0.7mol,在-10℃下用1.5小时向其中滴加0.93mol的氯化氰的氯仿溶液300g,搅拌30分钟后,进而滴加0.1mol的三乙胺与氯仿30g的混合溶液,搅拌30分钟结束反应。滤除生成的三乙胺的盐酸盐后,将所得滤液用0.1N盐酸500mL清洗后,重复用水500mL的清洗4次。将其通过硫酸钠干燥后,在75℃下蒸发,进而在90℃下进行减压脱气,从而得到褐色固体的上述式(I)所示的 α -萘酚芳烷基型的氰酸酯化合物。通过红外吸收光谱分析所得氰酸酯化合物,结果在2264 cm^{-1} 附近确认到氰酸酯基的吸收。

[0138] (实施例1)

[0139] 将合成例1中得到的 α -萘酚芳烷基型氰酸酯化合物30质量份与双(3-乙基-5-甲基-4-马来酰亚胺苯基)甲烷(BMI-70,K·I Chemical Industry Co.,LTD.制造)15质量份、马来酰亚胺化合物(BMI-2300,大和化成工业株式会社制造)15质量份、联苯芳烷基型环氧树脂(NC-3000-FH,日本化药株式会社制造)20质量份、聚氧化亚萘基型环氧树脂(HP6000,DIC株式会社制造)20质量份、硅烷偶联剂(OFS6040,Dow Corning Toray Co.,Ltd.制造)20质量份、湿润分散剂(BYK-W903,BYK Japan株式会社制造)5质量份用甲乙酮进行溶解混合,将平均粒径5 μm 的硅酸铝(Sibelco Japan株式会社[The Mineral Engineers]制造的SILATHERM1360-400,硅原子含有比率为20质量%,铝原子含有比率为29质量%)420质量份、对钼酸锌(日本无机化学工业株式会社制造)用二氧化硅进行了表面处理而得到的涂有二氧化硅的钼酸锌1质量份、Nikka Octhix Manganese(Mn含量8质量%,日本合成化学工业株式会社制造)0.01质量份、2,4,5-三苯基咪唑(东京化成工业株式会社制造)0.5质量份混合,得到清漆。

[0140] 需要说明的是,平均粒径是使无机填充材料用甲乙酮分散,之后利用超声波均化器进行3分钟分散处置,利用激光衍射式粒度分布测定装置(株式会社岛津制作所制造)而进行测定的。

[0141] 另外,硅原子含有比率和铝原子含有比率利用荧光X射线分析装置(XRF)(Rigaku

Corporation制造)来测定。

[0142] 将该清漆用甲乙酮稀释,浸渗涂覆于质量 $47.2\text{g}/\text{m}^2$ 的E玻璃布(ASAHI KASEI E-materials Corp.制造),在 150°C 下进行3分钟加热干燥,得到无机填充材料含量77质量%、54体积%的预浸料。接着,将该预浸料分别重叠2张或8张,将 $12\mu\text{m}$ 的电解铜箔配置于上下,以压力 $30\text{kgf}/\text{cm}^2$ 、温度 220°C 进行120分钟加压,得到厚度 0.2mm 和 0.8mm 的覆铜箔层叠板。

[0143] 使用所得覆铜箔层叠板,进行导热率、玻璃化转变温度、介质损耗角正切和机械钻头加工性的评价。将结果示于表1。

[0144] (评价方法)

[0145] (导热率)

[0146] 测定厚度 0.8mm 的覆铜箔层叠板的密度,另外,利用DSC(TA Instrumen Q100型)测定比热,进而,利用疝闪光分析仪(Xenon flash analyzer)(Bruker:LFA447Nanoflash)测定热扩散率。然后,根据以下式算出导热率。

[0147] 导热率($\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$) = 密度(kg/m^3) \times 比热($\text{kJ}/\text{kg}\cdot\text{K}$) \times 热扩散率(m^2/S) \times 1000

[0148] (玻璃化转变温度(T_g))

[0149] 将厚度 0.8mm 的覆铜箔层叠板作为试验片,依据JIS C6481,利用动态粘弹性分析装置(TA Instruments.制造)测定玻璃化转变温度。

[0150] (介质损耗角正切(D_f))

[0151] 使用去除了厚度 0.8mm 的覆铜箔层叠板的铜箔的试验片,利用空洞共振器摄动法(Agilent 8722ES,Agilent Technologies制造),实施 1GHz 的介质损耗角正切的测定3次,算出其平均值。

[0152] (机械钻头加工性)

[0153] 使用厚度 0.2mm 的覆铜箔层叠板,在下述的孔加工(Numerical Control (NC) 钻头加工)条件下评价机械钻头加工性。

[0154] 加工机:Hitachi Via Mechanics株式会社制造的ND-1V212

[0155] 重叠数:层叠有重叠2张的覆铜层叠板3组而成

[0156] 记录片:三菱瓦斯化学株式会社制造的LE900

[0157] 备份板:NIHON DECOLUXE CO.,LTD.制造的SPB-W

[0158] 钻孔机钻针:Uniontool株式会社制造的KMC L518A 0.105×1.8

[0159] 进行3000孔加工后,对重叠的覆铜箔层叠板的最下板的背面用Hole Analyzer(Hitachi Via Mechanics制造)进行孔数测定,对于加工2次的试行,将钻孔机钻针没有折损而能够进行3000孔的孔加工的情况记作(O),加工中由于钻孔机钻针的磨耗、折损而无法达成3000孔的孔加工的情况记作(X)。

[0160] (实施例2)

[0161] 实施例1中,使用硅酸铝(SILATHERM1360-400)337.5质量份、平均粒径 $0.3\mu\text{m}$ 的氧化铝(ASFP-20,电气化学工业株式会社制造)112.5质量份,得到无机填充材料含量78质量%、55体积%的预浸料,除此之外,与实施例1同样地进行,得到厚度 0.2mm 和 0.8mm 的覆铜箔层叠板。将所得覆铜箔层叠板的物性测定结果示于表1。

[0162] (比较例1)

[0163] 实施例1中,使用平均粒径 $2.8\mu\text{m}$ 的勃姆石(MM011,河合石灰工业株式会社制造)

300质量份、平均粒径0.3 μm 的氧化铝(ASFP-20)100质量份代替硅酸铝(SILATHERM1360-400),得到无机填充材料含量76质量%、56体积%的预浸料,除此之外,与实施例1同样地进行,得到厚度0.2mm和0.8mm的覆铜箔层叠板。将所得覆铜箔层叠板的物性测定结果示于表1。

[0164] (比较例2)

[0165] 实施例1中,使用平均粒径3.4 μm 的氧化铝(AA-3,住友化学株式会社制造)460质量份代替硅酸铝(SILATHERM1360-400),得到无机填充材料含量78质量%、54体积%的预浸料,除此之外,与实施例1同样地进行,得到厚度0.2mm和0.8mm的覆铜箔层叠板。将所得覆铜箔层叠板的物性测定结果示于表1。

[0166] (比较例3)

[0167] 实施例1中,使用平均粒径3.4 μm 的氧化铝(AA-3,住友化学株式会社制造)380质量份、比较例1中使用的平均粒径0.3 μm 的氧化铝(ASFP-20)100质量份代替硅酸铝(SILATHERM1360-400),得到无机填充材料含量79质量%、55体积%的预浸料,除此之外,与实施例1同样地进行,得到厚度0.2mm和0.8mm的覆铜箔层叠板。将所得覆铜箔层叠板的物性测定结果示于表1。

[0168] (比较例4)

[0169] 实施例1中,使用平均粒径3.4 μm 的二氧化硅(FB-3SDC,电气化学工业株式会社制造)300质量份代替硅酸铝(SILATHERM1360-400),得到无机填充材料含量74质量%、58体积%的预浸料,除此之外,与实施例1同样地进行,得到厚度0.2mm和0.8mm的覆铜箔层叠板。将所得覆铜箔层叠板的物性测定结果示于表1。

[0170] [表1]

[0171]	实施例1	实施例2	比较例1	比较例2	比较例3	比较例4
导热率(W/m·k)	2.0	2.0	2.0	1.9	2.0	0.6
玻璃化转变温度(°C)	286	287	285	288	288	285
介质损耗角正切/1GHz	0.007	0.007	0.017	0.007	0.007	0.006
NC钻头加工(能否进行3000孔的加工)	○	○	○	×	×	○

[0172] 本申请基于2014年7月18日向日本专利局申请的日本专利申请(日本特愿2014-147700),其内容作为参照引入至此。

[0173] 产业上的可利用性

[0174] 本发明作为印刷电路板用、预浸料和形成覆金属箔层叠板的绝缘层时使用的树脂组合物具有产业上的可利用性。