

明 細 書

発明の名称：樹脂組成物、プリプレグ及び金属箔張積層板

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、並びに、これを用いたプリプレグ、金属箔張積層板及びプリント配線板に関し、特に、プリント配線板材料、とりわけに発光ダイオード（ＬＥＤ）実装用プリント配線板等において好適に用いることができる樹脂組成物、プリプレグ及び金属箔張積層板に関する。

背景技術

[0002] 従来、ＬＥＤ実装用プリント配線板としては、二酸化チタンを含有したエポキシ樹脂をガラス織布に含浸させた後、これを加熱硬化させることにより得られる積層板（例えば特許文献１参照。）等が知られている。しかしながら、この種のエポキシ樹脂を用いた積層板は、通常、耐熱性が低いため、プリント配線板の製造工程やＬＥＤ実装工程における加熱処理やＬＥＤ実装後の使用時における加熱或いは光照射によって基板面が変色し、そのため、反射率が著しく低下するという問題が生じ得る。

[0003] とりわけ近年、青色や白色などの短波長光を発するＬＥＤが一般化してきたことなどから、ＬＥＤ実装用プリント配線板に用いられる積層板には、特に耐熱性及び耐光性に優れる積層板が要求されるようになってきている。より具体的には、耐熱性に優れ、紫外光領域並びに可視光領域において光反射率が高いのみならず、加熱処理や光照射処理による光反射率の低下が少ないものが求められている。このような短波長光照射時の反射率の低下を改善した積層板として、ビスフェノールＡノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂及び二酸化チタンを含有する樹脂組成物と基材からなるプリプレグ等が提案されている（例えば特許文献２参照。）。

[0004] 一方、特定の樹脂構造のオルガノポリシロキサン及びオルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金族金属系触媒と充填剤とを含有する付加硬化型シリコーン樹脂組成物をガラスクロスに含浸させて加熱硬化させてなるシリコ

ーン積層基板が、機械的特性、耐熱性及び耐変色性に優れ、表面のタックが少ないこと、並びに、加熱時及び光照射時における光反射率の低下が少ないことが知られている（例えば特許文献3参照。）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平10-202789号公報

特許文献2：特開2008-001880号公報

特許文献3：特開2010-089493号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、LEDのさらなる高輝度化及び高出力化が進展し、その上さらに、LEDの応用分野がこれまでの携帯電話やカーナビゲーションなどの小型表示用途から、テレビなどの大型表示用途、さらには住宅用照明用途にまで広がってきている。そのため、従来のものよりも、より一層、熱や光による変色・劣化に対する性能を向上させた積層板が要求されている。

[0007] とりわけ、プリント配線板用の積層板においては、金属箔張積層板として用いる際に積層される金属箔との高い密着性（ピール強度）が要求され、さらに無鉛はんだによるリフローを行う際には高い耐熱性が要求される。しかしながら、これらの特性すべてに優れるプリント配線板を実現し得る樹脂組成物は未だ開発されておらず、実装工程における実装性及び実装後の使用時の信頼性に問題がある。

[0008] 本発明は、上記課題を鑑みてなされたものであり、その目的は、紫外光領域及び可視光領域において高い光反射率を有し、加熱処理及び光照射処理による光反射率の低下が少なく、金属箔とのピール強度が良好で、吸湿時の耐熱性にも優れ、さらには外観が良好で保存安定性にも優れるプリプレグや金属箔張積層板等を実現可能な樹脂組成物、並びに、これを用いたプリプレグ、金属箔張積層板及びプリント配線板を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、かかる問題点の解決のため鋭意検討した結果、エポキシ変性シリコン化合物、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂、リン系硬化促進剤、二酸化チタン及び分散剤を少なくとも含有する樹脂組成物を用いることにより、紫外光領域及び可視光領域において光反射率が高く、加熱処理及び光照射処理による光反射率の低下が少なく、金属箔とのピール強度が良好で、吸湿時の耐熱性にも優れ、さらには外観が良好で保存安定性にも優れるプリプレグや金属箔張積層板等が得られることを見出し、本発明に到達した。

[0010] すなわち、本発明は、以下<1>～<29>を提供する。

<1> エポキシ変性シリコン化合物（A）、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）、二酸化チタン（D）及び分散剤（E）を含有する、樹脂組成物。

<2> 前記分岐型イミド樹脂（B）が、エポキシ変性分岐型イミド樹脂、アルコール変性分岐型イミド樹脂及びアミン変性分岐型イミド樹脂よりなる群から選択される少なくとも1種である、上記<1>に記載の樹脂組成物。

<3> 前記分岐型イミド樹脂（B）は、10～200mg KOH/gの酸価を有する、上記<1>又は<2>に記載の樹脂組成物。

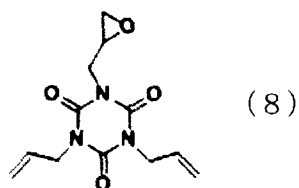
<4> 前記分岐型イミド樹脂（B）は、10～100mg KOH/gの酸化を有する、上記<1>～<3>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[0011] <5> エポキシ環を一以上有する、上記（A）以外の単量体エポキシ化合物（F）をさらに含有する、上記<1>～<4>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

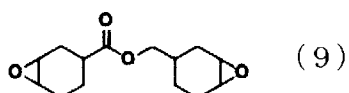
<6> 前記単量体エポキシ化合物（F）のエポキシ当量が、前記分岐型イミド樹脂（B）のカルボキシル残基に対して、0.1～0.8当量である、上記<5>に記載の樹脂組成物。

<7> 前記単量体エポキシ化合物（F）が、下記式（8）～（10）：

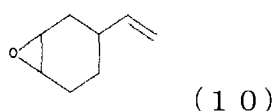
[化1]



[化2]



[化3]

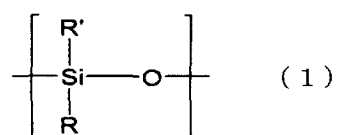


で表される化合物からなる群より選択される少なくとも1種である、上記<5>又は<6>に記載の樹脂組成物。

[0012] <8> 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、脂肪族エポキシ変性シリコン化合物である、上記<1>~<7>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<9> 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、下記式(1)で表される繰り返し単位を有し、1分子中に少なくとも3個のR'を有し、且つ、アルコキシ基を含有しないシリコン化合物である、

[化4]



(式(1)中、Rは、水素原子又は置換もしくは非置換の1価の炭化水素基であり、R'は、エポキシ基を有する有機基である。)

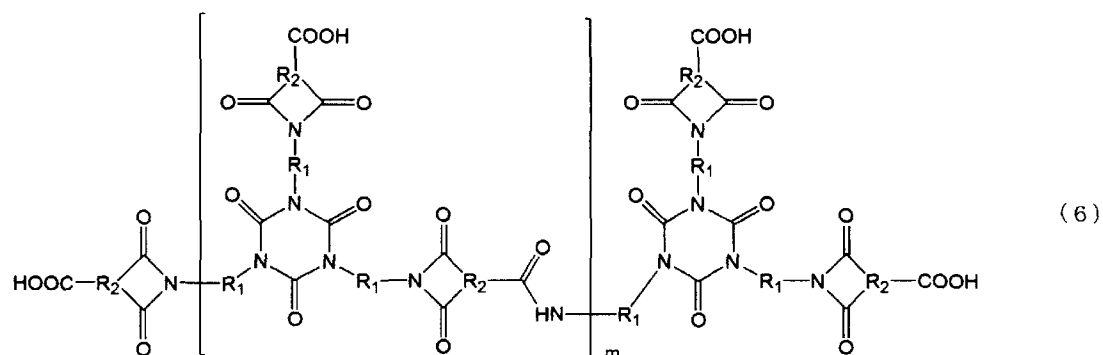
上記<1>~<8>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<10> 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、前記成分(A)及び(B)の合計100質量部に対して、20~80質量部含まれる、上記<

1>～<9>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[0013] <11> 前記分枝型イミド樹脂（B）が、下記式（6）で表されるものである、

[化5]



（式（6）中、 R_1 は、それぞれ独立して、2価の脂環族基であり、 R_2 は、それぞれ独立して、3価の脂環族基であり、 m は、1～10の整数である。

）

上記<1>～<10>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[0014] <12> シランカップリング剤（H）をさらに含有する、上記<1>～<11>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<13> 前記リン系硬化促進剤（C）が、前記成分（A）及び（B）の合計100質量部に対して、0.1～10質量部含まれる、上記<1>～<12>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<14> 前記二酸化チタン（D）が、前記成分（A）及び（B）の合計100質量部に対して、10～300質量部含まれる、上記<1>～<13>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<15> 前記二酸化チタン（D）は、5 μm 以下の平均粒径を有する、上記<1>～<14>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<16> 前記二酸化チタン（D）は、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 、及び／又は、 ZnO で表面処理されたものであり、前記二酸化チタン（D）の総量100質量部に対して、 SiO_2 が0.5～15質量部、 Al_2O_3 が0.5～15質量部、 ZrO_2 が0.5～15質量部、及び／又は、 ZnO が0.5

～15質量部含まれる、上記<1>～<15>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[0015] <17> 前記分散剤(E)が、前記成分(A)及び(B)の合計100質量部に対して、0.05～10質量部含まれる、上記<1>～<16>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<18> 前記分散剤(E)は、酸価が20～200mg KOH/gの高分子湿潤分散剤である、上記<1>～<17>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[0016] <19> 脂環式エポキシ樹脂(G)をさらに含有する、上記<1>～<18>のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

<20> 前記脂環式エポキシ樹脂(G)が、ビニルシクロヘキサジエポキシドのアルコール付加物、3,4-エポキシシクロヘキサカルボン酸-3',4'-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコール付加物、アジピン酸ビス(3,4-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコール付加物、ジシクロペンタジエンジエポキシドのアルコール付加物、ε-カプロラクトン変性ビス(3,4-エポキシシクロヘキシルメチル)-4,5-エポキシシクロヘキサ-1,2-ジカルボン酸のアルコール付加物、ε-カプロラクトン変性テトラ(3,4-エポキシシクロヘキシルメチル)ブタン-テトラカルボン酸のアルコール付加物、ジペンテンジオキシドのアルコール付加物、1,4-シクロオクタジエンジエポキシドのアルコール付加物及びビス(2,3-エポキシシクロペンチル)エーテルのアルコール付加物よりなる群から選択される少なくとも1種である、上記<19>に記載の樹脂組成物。

[0017] <21> 前記分岐型イミド樹脂(B)、前記リン系硬化促進剤(C)及び前記単量体エポキシ化合物(F)を溶媒の存在下で還流する前処理を行なった後に、エポキシ変性シリコン化合物(A)、二酸化チタン(D)及び分散剤(E)を配合することで作製される、上記<5>に記載の樹脂組成物。

[0018] <22> エポキシ変性シリコン化合物(A)、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂(B)、リン系硬化促進剤(C)

、二酸化チタン（D）、分散剤（E）、エポキシ環を一以上有する上記（A）以外の単量体エポキシ化合物（F）、及び脂環式エポキシ樹脂（G）を含有し、前記分枝型イミド樹脂（B）が、前記エポキシ変性シリコン化合物（A）、前記分枝型イミド樹脂（B）、前記単量体エポキシ化合物（C）、及び前記脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、１０～８０質量部含まれる、樹脂組成物。

< 2 3 > 前記二酸化チタン（D）が、前記エポキシ変性シリコン化合物（A）、前記分枝型イミド樹脂（B）、前記単量体エポキシ化合物（F）、及び前記脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、１０～４００質量部含まれる、上記< 2 2 >に記載の樹脂組成物。

< 2 4 > 前記分散剤（E）が、前記エポキシ変性シリコン化合物（A）、前記分枝型イミド樹脂（B）、前記単量体エポキシ化合物（F）、及び前記脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、０．０５～５質量部含まれる、上記< 2 2 >又は< 2 3 >に記載の樹脂組成物。

< 2 5 > エポキシ変性シリコン化合物（A）、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂（B）、二酸化チタン（D）、分散剤（E）及びエポキシ環を一以上有する、前記（A）以外の単量体エポキシ化合物（F）を含有する、樹脂組成物。この樹脂組成物においても、上記< 2 >～< 2 0 >で述べた具体的態様であることが好ましい。

[0019] < 2 6 > 上記< 1 >～< 2 5 >のいずれか一項に記載の樹脂組成物からなる、LED実装用プリント配線板用の樹脂組成物。

< 2 7 > 上記< 1 >～< 2 5 >のいずれか一項に記載の樹脂組成物を基材に含浸又は塗布してなる、プリプレグ。

< 2 8 > 上記< 2 7 >に記載のプリプレグを少なくとも１枚以上重ね、その片面もしくは両面に金属箔を配して積層成形して得られる、金属箔張積層板。

< 2 9 > 絶縁層と、前記絶縁層の表面に形成された導体層とを含むプリント配線板であって、前記絶縁層が上記< 1 >～< 2 5 >のいずれか一項に記

発明の効果

載の樹脂組成物を含む、プリント配線板。

[0020] 本発明によれば、イソシアレート基及びカルボキシル基を有する分岐型

イミド樹脂 (B) とリン系硬化促進剤 (C) との併用によりプリント配線板製

時の反応速度が調整されるので、紫外光領域及び可視光領域において光反射

率が高く、また加熱処理及び光照射処理による光反射率の低下が少なく、金

属箔とのピール強度が良好で、吸湿時の耐熱性にも優れ、さらには外觀が良

好で保存安定性に優れる金属箔張積層板やプリント配線板等を簡易に且つ再

現性よく確実に実現可能な樹脂組成物及びプリント配線板を実現することができ

る。また、リン系硬化促進剤 (C) の使用により、分岐型イミド樹脂 (B)

の活性が抑えられてフニスのゲルタイムの上昇及びプリント配線板の上昇を

防ぎ、フニスの保存安定性の向上及びプリント配線板の作業性の向上を図

ることができる。さらに、本発明の好適態様によれば、単量体エポキシ化合

物の含有により耐熱性及び取扱性が高められるとともに加熱時のプリント配

線板の溶解性も高められるので、金属箔張積層板の成形性がより一層向上する。そ

のため、本発明の樹脂組成物、プリント配線板及び金属箔張積層板等は、LED

実装用プリント配線板等に好適に用いることができ、その工業的な実用性は

極めて高い。

発明を実施するための形態

[0021] 以下、本発明の実施の形態について説明する。なお、以下の実施の形態は

、本発明を説明するための例示であり、本発明はその実施の形態のみに限定

されない。

[0022] 本実施形態の樹脂組成物は、熱により硬化する所謂熱硬化性樹脂組成物で

あり、エポキシ変性シリコン化合物 (A)、イソシアレート基及びカル

ボキシル基を有する分岐型イミド樹脂 (B)、リン系硬化促進剤 (C)、二

酸化チタン (D) 及び分散剤 (E) を少なくとも含有するものである。

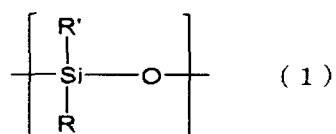
[0023] 本実施形態の樹脂組成物で使用するエポキシ変性シリコン化合物 (A)

は、有機ケイ素化合物にエポキシ基を有するものであれば特に限定されない

が、主骨格にシロキサン結合（ $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 結合）を有するシリコーン化合物にエポキシ基を有する置換もしくは非置換の脂肪族炭化水素基が導入された、脂肪族エポキシ変性シリコーン化合物が好ましい。このエポキシ変性シリコーン化合物（A）を、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）、二酸化チタン（D）及び分散剤（E）とともに用いることで、得られる金属箔張積層板の紫外光領域及び可視光領域の光反射率が高められ、加熱処理及び光照射処理による変色を抑制されて光反射率の低下が抑制されるのみならず、金属箔とのピール強度及び耐熱性が殊に高められる傾向にある。

[0024] 上記のエポキシ変性シリコーン化合物としては、下記式（1）で表される繰り返し単位を有し、1分子中に少なくとも3個の R' を有し、且つ、アルコキシ基を含有しないシリコーン化合物が好ましく、作業性に優れる点から、液状のものがより好ましい。ここで、下記式（1）で表される繰り返し単位を有するとは、 R 及び／又は R' が同一である単位一種のみを複数（好ましくは3以上）有するもののみならず、 R 及び／又は R' が異なる単位を複数（好ましくは3以上）有するものの双方を包含する含意である。

[0025] [化6]



（式（1）中、 R は、水素原子又は置換もしくは非置換の1価の炭化水素基であり、 R' は、エポキシ基を有する有機基である。）

[0026] 上記式（1）中、 R で表される1価の炭化水素基の具体例としては、置換もしくは非置換の脂肪族炭化水素基が挙げられ、その炭素数は1～20が好ましく、より好ましくは1～8である。より具体的には、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基等のアルキル基、これらの1価の炭化水素基の水素原子の一部又は全部がエポキシ基（ただし、エポキシシクロヘキシル基は除く）、メタクリル基、アクリル基、メ

ルカプト基又はアミノ基等で置換された基が挙げられるが、これらに特に限定されない。これらのなかでも、Rは、メチル基、エチル基、水素原子であることが好ましく、より好ましくはメチル基である。

[0027] 上記式(1)中、R'で表されるエポキシ基を有する有機基の具体例としては、エポキシ基を有する置換もしくは非置換の脂肪族炭化水素基が挙げられ、その炭素数は2~20が好ましく、より好ましくは2~12である。より具体的には、例えば、グリシドキシプロピル基、3,4-エポキシシクロヘキシルエチル基等が挙げられるが、これらに特に限定されない。特に、硬化収縮が小さいという観点から、R'は、3,4-エポキシシクロヘキシル基を有する有機基であることが好ましい。

[0028] なお、上記式(1)で表される繰り返し単位を有するシリコン化合物は、1分子中にR'を3~8個有することが好ましい。上記式(1)で表される単位を有するシリコン化合物がこの範囲でR'を有すると、硬度が高く、韌性にも優れた硬化物が得られ易い傾向にある。

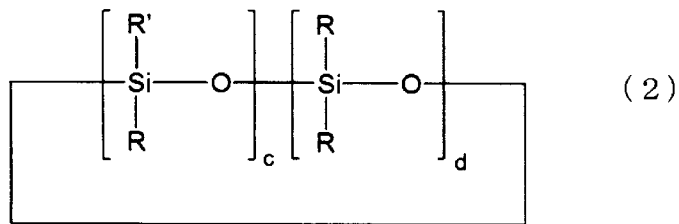
[0029] 上記式(1)で表される繰り返し単位を有するシリコン化合物は、重合度が3~100であることが好ましい。重合度がこの範囲のものは、工業的に合成が容易であるため、入手し易い。これらの特性に加えて、さらに硬化収縮を抑えることができる観点から、重合度は3~50がより好ましく、さらに好ましくは3~10である。

[0030] 上記式(1)で表される繰り返し単位を有するシリコン化合物は、アルコキシ基を含有しない。そのため、脱アルコール反応による硬化収縮がなく、分枝型イミド樹脂(B)と併用した場合に、優れた絶縁破壊特性を得ることができる。

[0031] 上記式(1)で表される繰り返し単位を有するシリコン化合物の具体例としては、例えば、直鎖構造或いは環構造のものが挙げられる。

[0032] 環構造体としては、例えば、下記式(2)で表される環状シリコン化合物が挙げられる。この下記式(2)で表される環状シリコン化合物は、硬化収縮が小さい点から好適である。

[化7]

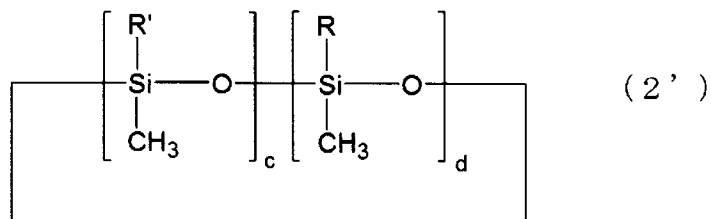


(式(2)中、R及びR'は、上記式(1)で説明したものと同義であり、cは3～5の整数を表し、dは0～2の整数を表し、cとdとの和は3～5の整数であり、また、各繰り返し単位はランダムに結合することができる。)

[0033] 上記式(2)中、好ましくは、cは3～4の整数であり、dは0～1の整数であり、cとdの和は4である。

[0034] 上記式(2)で表される環状シリコン化合物のなかでも、下記式(2')で表される環状シリコン化合物がより好ましい。

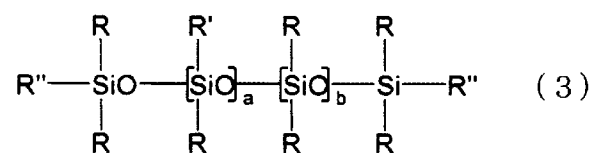
[0035] [化8]



(上記式(2')中、R、R'、c及びdは、上記式(1)及び(2)で説明したものと同義である。)

[0036] 直鎖構造体としては、例えば、下記式(3)で表される直鎖状シリコン化合物が挙げられる。

[化9]



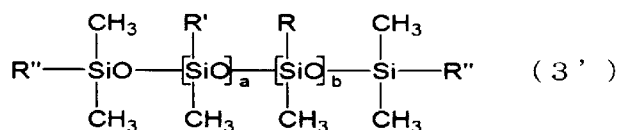
(式(3)中、R及びR'は、上記式(1)で説明したものと同義であり、

R'' はR又はR'を表し、R、R'及びR''は、互いに同一であっても異なってもよく、aは1～10の整数を表し、bは0～8の整数を表し、aとbの和は2～10の整数であり、ここで、a=1の場合は両末端のR''はR'であり、a=2の場合はR''の少なくとも1つはR'であり、また、各重合単位はランダムに結合することができる。)

[0037] 上記式(3)中、好ましくは、aは4～8の整数であり、bは0～4の整数であり、aとbの和は4～8である。

[0038] 上記式(3)で表される直鎖状シリコン化合物のなかでも、下記式(3')で表される直鎖状シリコン化合物がより好ましい。

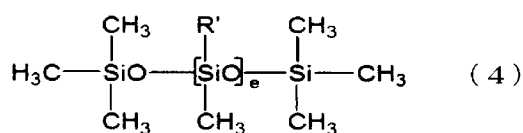
[化10]



(上記式(3')中、R、R'、R''、a及びbは、上記式(1)～(3)で説明したものと同義である。)

[0039] 上記式(3)で表される直鎖状シリコン化合物のなかでも、下記式(4)で表される直鎖状シリコン化合物がさらに好ましい。

[化11]

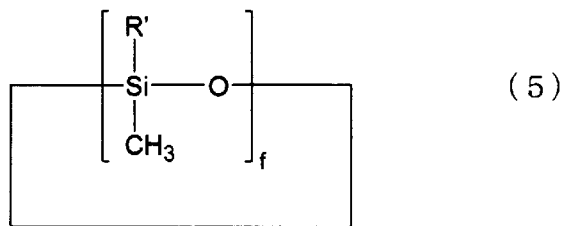


(式(4)中、R'は上記式(1)で説明したものと同義であり、eは3～10の整数を表す。)

[0040] 上記式(4)中、eは、3～8の整数が好ましい。

[0041] 上記式(1)で表される繰り返し単位を有するシリコン化合物は、下記式(5)で表される環状シリコン化合物であることがまたさらに好ましい。

[化12]



(式(5)中、R' は、上記式(1)で説明したものと同義であり、f は3～5の整数を表す)

[0042] 上記式(5)中、f は4が好ましい。

[0043] 上記式(5)中、f が4である化合物を50質量%以上含むものが特に好ましい。

[0044] 上述した脂肪族エポキシ変性シリコン化合物の具体例としては、例えば、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_9\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_{10}\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_4\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_9\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_2((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、

[0045] $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_4$

$((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_4((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_3\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、

[0046] $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_3\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_3\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_4\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8((\text{CH}_3)_2\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8((\text{CH}_3)_2\text{SiO})_3\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、

[0047] $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_4(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_6(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_7(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_8(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $\text{R}'(\text{CH}_3)_2\text{SiO}(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_9(\text{R}^0\text{CH}_3\text{SiO})\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{R}'$ 、 $(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3$ 、 $(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_4$ 、 $(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_5$ 、 $(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3((\text{CH}_3)_2\text{SiO})$ 、 $(\text{R}'\text{CH}_3\text{SiO})_3(\text{C}_3\text{H}_7(\text{CH}_3)\text{SiO})$ 等が挙げられるが、これらに特に限定されない。ここで、 R'

は上記式（１）で説明したものと同義であり、 R^0 はメタクリロキシプロピル基を示す。

[0048] 上述したエポキシ変性シリコン化合物（Ａ）は、公知の方法により製造することができ、また、その市販品を容易に入手可能である。例えば、白金化合物等の触媒を用いて、オルガノハイドロジェンポリシロキサンにアリルエポキシ化合物（例えば、４－ビニルシクロヘキセンオキシド）を付加反応（ヒドロシリル化）させることによって得ることができる。また、例えば、 $X-40-2670$ 、 $X-22-163A$ 、 $X-22-163B$ 、 $X-22-169AS$ 、 $X-22-169B$ 、 $X-41-1053$ 、 $KF-105$ 、 $PRX413$ （信越化学工業（株）製）、 $BY16-752A$ 、 $BY16-799$ 、 $BY16-873$ （東レダウコーニング（株）製）、 $SE-02CM$ （ナガセケムテックス（株）製）等が市販されている。なお、エポキシ変性シリコン化合物は、１種を単独で或いは２種以上を適宜組み合わせて使用することができる。

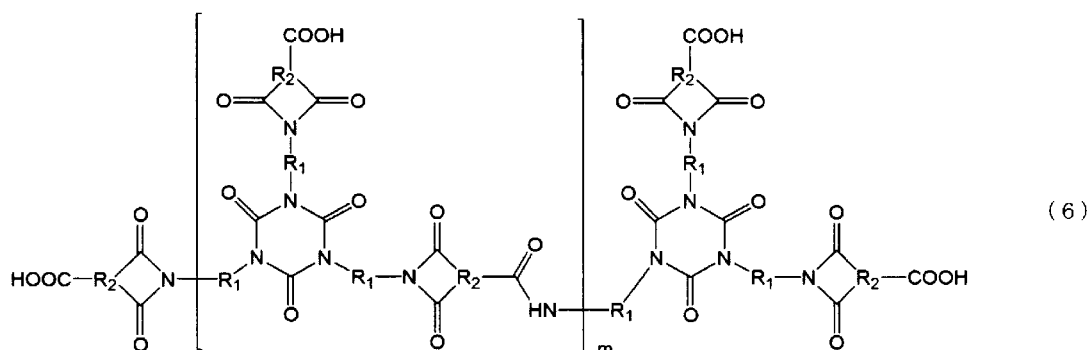
[0049] 本実施形態の樹脂組成物中のエポキシ変性シリコン化合物（Ａ）の含有量は、特に限定されないが、得られる金属箔張積層板の加熱処理及び光照射処理による変色を抑制する観点から、エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）及び分岐型イミド樹脂（Ｂ）の合計１００質量部に対して、２０～８０質量部であることが好ましく、より好ましくは２５～７５質量部である。

[0050] 本実施形態の樹脂組成物で使用する分岐型イミド樹脂（Ｂ）は、イソシアヌレート環、カルボキシル基及びイミド基を有するものであれば特に限定されない。好ましくは、イソシアヌレート環と、カルボキシル基を有する複数の環状イミドとを有し、この環状イミドがイソシアヌレート環に多数結合した、分岐型イミド樹脂（以下、「多分岐型イミド樹脂」ともいう。）である。また、分岐型イミド樹脂（Ｂ）は、脂環構造を有するイミド樹脂、すなわち、脂環式イミド樹脂（芳香環を有さないもの）であることがより好ましい。このような脂環式イミド樹脂としては、イソシアヌレート環と、該イソシアヌレート環の各々の窒素原子に脂肪族環を介して結合された、カルボン酸

基を有する複数の脂肪族環状イミドとを有する、分枝型の脂環式イミド樹脂が例示される。かかるイソシアヌレート環及びカルボキシル基を有する分枝型イミド樹脂（Ｂ）を、エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、リン系硬化促進剤（Ｃ）、二酸化チタン（Ｄ）及び分散剤（Ｅ）とともに用いることで、金属箔とのピール強度及び耐熱性が殊に高められるのみならず、紫外光領域及び可視光領域の光反射率が殊に高められ、加熱処理及び光照射処理による光反射率の低下が著しく抑制される傾向にある。

[0051] 上記の分枝型イミド樹脂（B）としては、例えば、下記式（6）で表されるものが好ましい。

[化,13]



(式(6)中、 R_1 は、それぞれ独立して、2価の脂環族基であり、 R_2 は、それぞれ独立して、3価の脂環族基であり、 m は、1～10の整数である。

[0052] 上記式(6)中、R₁で示される脂環族基は、脂肪族環を含有する炭素数が好ましくは6～20の2価の基であり、原料の脂環式ジアミン又は脂環式ジイソシアネートの残基である。脂環式ジアミンとしては、例えば、4, 4'-ジアミノ-ジシクロヘキシルメタン、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノ-ジシクロヘキシルメタン、3, 3'-ジエチル-4, 4'-ジアミノ-ジシクロヘキシルメタン、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジアミノ-ジシクロヘキシルメタン、3, 3', 5, 5'-テトラエチル-4, 4'-ジアミノ-ジシクロヘキシルメタン、3, 5-ジエチル-3

' , 5' -ジメチル-4, 4' -ジアミノジシクロヘキシルメタン、1, 4-シクロヘキサンジアミン、1, 3-シクロヘキサンジアミン、イソホロンジアミン、2, 2-ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] プロパン、ビス [4 - (3 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] スルホン、ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] スルホン、2, 2-ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] ヘキサフルオロプロパン、ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] メタン、4, 4' -ビス (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) ジシクロヘキシル、ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] エーテル、ビス [4 - (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) シクロヘキシル] ケトン、1, 3-ビス (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) ベンゼン、1, 4-ビス (4 -アミノシクロヘキシルオキシ) ベンゼン、(4, 4' -ジアミノ) ジシクロヘキシルエーテル、(4, 4' -ジアミノ) ジシクロヘキシルスルホン、(4, 4' -ジアミノシクロヘキシル) ケトン、(3, 3' -ジアミノ) ベンゾフェノン、2, 2' -ジメチルビスシクロヘキシル-4, 4' -ジアミン、2, 2' -ビス (トリフルオロメチル) ジシクロヘキシル-4, 4' -ジアミン、5, 5' -ジメチル-2, 2' -スルフォニルジシクロヘキシル-4, 4' -ジアミン、3, 3' -ジヒドロキシジシクロヘキシル-4, 4' -ジアミン、(4, 4' -ジアミノ) ジシクロヘキシルメタン、(4, 4' -ジアミノ) ジシクロヘキシルエーテル、(3, 3' -ジアミノ) ジシクロヘキシルエーテル、2, 2-ビス (4 -アミノシクロヘキシル) プロパン等が挙げられるが、これらに特に限定されない。また、脂環式ジイソシアネートとしては、例えば、これらの脂環式ジアミンのアミノ基をイソシアネート基に置換したもの等が挙げられる。

[0053] 上記式 (6) 中、 R_2 で示される脂環族基は、脂肪族環を含有する炭素数が好ましくは 6 ~ 20 の 3 価の脂肪族基であり、原料の脂環式トリカルボン酸又は無水物の残基である。脂環式トリカルボン酸としては、例えば、シクロ

ヘキサン-1, 2, 3-トリカルボン酸、シクロヘキサン-1, 2, 4-トリカルボン酸、シクロヘキサン-1, 3, 5-トリカルボン酸、5-メチルシクロヘキサン-1, 2, 4-トリカルボン酸、6-メチルシクロヘキサン-1, 2, 4-トリカルボン酸、3-メチルシクロヘキサン-1, 2, 4-トリカルボン酸等が挙げられるが、これらに特に限定されない。

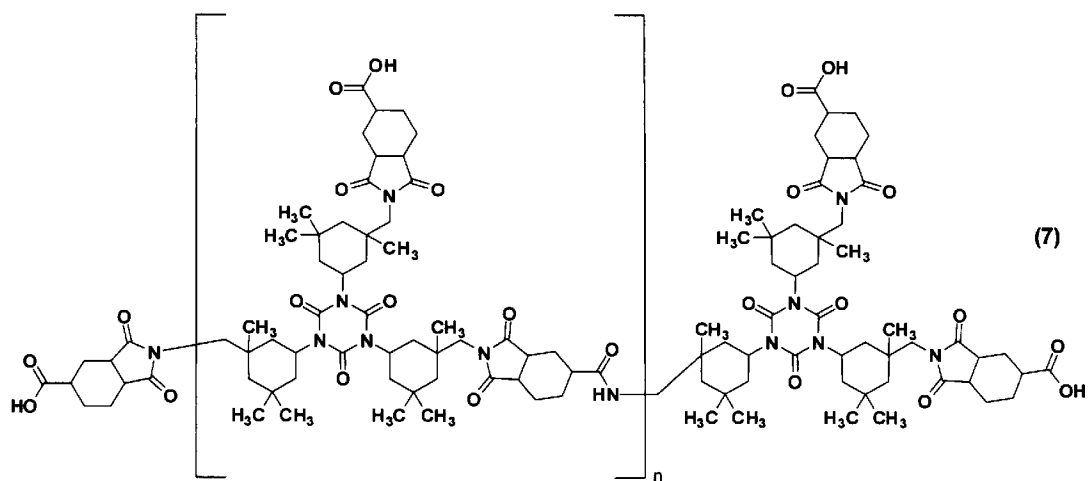
[0054] 上記の分岐型イミド樹脂 (B) が上記式 (6) で表されるものである場合、その質量平均分子量 (Mw) は 2,000~35,000 が好ましく、より好ましくは 2,000~10,000 である。

[0055] 上記の分岐型イミド樹脂 (B) において、分子構造中のカルボキシル基は、硬化反応において硬化促進能を有する。一方、本実施形態の樹脂組成物においては硬化促進能を有するリン系硬化促進剤 (C) を別途併用しているため、組成物全体としての硬化促進能を適度な範囲にコントロールする観点から、上記の分岐型イミド樹脂 (B) は、分子構造中のカルボキシル基の少なぐとも一部が変性されていることが好ましい。より具体的には、分子構造中のカルボキシル基の少なぐとも一部に、エポキシ化合物、アルコール化合物及びアミン化合物よりなる群から選択される少なくとも 1 種を反応させて得られる変性分岐型イミド樹脂 (エポキシ変性分岐型イミド樹脂、アルコール変性分岐型イミド樹脂、アミン変性分岐型イミド樹脂) が好ましい。これらの中でも、エポキシ変性分岐型イミド樹脂及びアルコール変性分岐型イミド樹脂が好ましく、エポキシ変性分岐型イミド樹脂がより好ましい。なお、分岐型イミド樹脂は、1 種を単独で或いは 2 種以上を組み合わせて使用することができ。

[0056] 分岐型イミド樹脂 (B) の分子構造中のカルボキシル基が変性された度合いは、酸価によって測ることができる。ここで、分岐型イミド樹脂 (B) の酸価は、特に限定されないが、有機溶剤への溶解性や得られる樹脂組成物の硬化性等の観点から、固形分換算で 10~200 mg KOH/g が好ましく、より好ましくは 10~100 mg KOH/g であり、さらに好ましくは 20~80 mg KOH/g である。

[0057] 分岐型イミド樹脂（Ｂ）は、公知の方法により製造することができ、また、その市販品を容易に入手可能である。分岐型イミド樹脂（Ｂ）の市販品としては、下記式（７）で表される構造を有する分岐型イミド化合物（商品名：Ｖ－８００２（ＤＩＣ（株）製））、この分岐型イミド化合物をエポキシ変性したもの（商品名：ＥＬＧ－９４１（ＤＩＣ（株）製））、この分岐型イミド化合物をアミン変性したもの（商品名：ＥＬＧ－１３０１（ＤＩＣ（株）製））、この分岐型イミド化合物をアルコール変性したもの（商品名：ＥＬＧ－１３０２（ＤＩＣ（株）製））等が挙げられる。

[0058] [化14]



（式中、 n は1～10の整数を表わす。）

[0059] 本実施形態の樹脂組成物中の分岐型イミド樹脂（Ｂ）の含有量は、特に限定されないが、得られる金属箔張積層板のピール強度を高めるとともに加熱処理及び光照射処理による変色を抑制する観点から、エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）及び分岐型イミド樹脂（Ｂ）の合計100質量部に対して、20～80質量部であることが好ましく、より好ましくは25～75質量部である。

[0060] 本実施形態の樹脂組成物で使用するリン系硬化促進剤（Ｃ）は、分子中にリンを含有する化合物であって硬化促進能を有するものであれば、その種類は特に限定されない。その具体例としては、メチルトリブチルホスホニウムジメチルホスフェート（商品名：ＰＸ－４ＭＰ（日本化学工業（株）製））

、ブチルホスホニウムジエチルホスホジチオネート（商品名：PX-4ET（日本化学工業（株）製））、テトラブチルホスホニウムテトラフルオロボレート（商品名：PX-4FB（日本化学工業（株）製））、トリフェニルホスフィン（東京化成工業（株）製）、リン含有シアン酸エステル（商品名：FR-300（Lonza（株）製））等が挙げられる。リン系硬化促進剤は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。これらの中でも、加熱処理及び光照射処理による光反射率及びガラス転移温度の観点から、メチルトリブチルホスホニウムジメチルホスフェートが好ましい。なお、このリン系硬化促進剤（C）の使用により、分岐型イミド樹脂（B）の活性が抑えられ、その結果、ワニスのゲルタイムの上昇及びプリプレグ粘度の上昇が抑制される傾向にある。そのため、リン系硬化促進剤（C）を分岐型イミド樹脂（B）とともに用いることで、ワニスの保存安定性の向上及びプリプレグ作製時の作業性の向上を図ることもできる。

[0061] 本実施形態の樹脂組成物中のリン系硬化促進剤（C）の含有量は、特に限定されないが、加熱処理及び光照射処理による光反射率及びガラス転移温度の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）及び分岐型イミド樹脂（B）の合計100質量部に対して、0.1～10質量部であることが好ましく、より好ましくは0.5～8質量部である。

[0062] 本実施形態の樹脂組成物は、必須の無機充填材として二酸化チタン（D）を含有する。紫外光領域及び可視光領域における光反射率をより高める観点から、結晶構造がルチル型又はアナターゼ型の二酸化チタンが好ましい。

[0063] 二酸化チタン（D）の平均粒子径（D50）は、特に限定されないが、0.1～5 μ mであることが好ましく、より好ましくは0.2～0.5 μ mである。二酸化チタン（D）は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。また、例えば、粒度分布や平均粒子径が異なるものを適宜組み合わせて使用することも可能である。ここで、本明細書において、平均粒子径（D50）とは、メジアン径を意味し、測定した粉体の粒度分布を2つに分けたときの大きい側と小さい側が等量となる値である。よ

り具体的には、湿式のレーザー回折散乱式の粒度分布測定装置により、粉体の粒度分布を測定し、小さい粒子から体積積算して、全体積の50%に達したときの値を意味する。

[0064] ここで、紫外光領域及び可視光領域における光反射率をより一層高める観点から、二酸化チタン(D)は、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 及び／又は ZnO で表面処理されたもの、換言すれば、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 及び／又は ZnO を含有する被覆層を有するものであることが好ましい。さらに、二酸化チタン(D)は、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 及び／又は ZnO で表面処理された後、ポリオール処理、シランカップリング剤処理及び／又はアミン処理されたもの、換言すれば、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 及び／又は ZnO を含有し、ポリオール処理、シランカップリング剤処理及び／又はアミン処理された被覆層を有するものであることがより好ましい。

[0065] 上記の表面処理された二酸化チタン(D)を用いる場合、二酸化チタン(D)の総量100質量部に対して、 SiO_2 が0.5～15質量部、 Al_2O_3 が0.5～15質量部、 ZrO_2 が0.5～15質量部、及び／又は ZnO が0.5～15質量部含まれることが好ましく、より好ましくは SiO_2 が1～11質量部、 Al_2O_3 が1～11質量部、 ZrO_2 が1～11質量部、及び／又は ZnO が1～11質量部である。表面処理量をかかると好ましい範囲内にすることで、紫外光領域及び可視光領域における光反射率の過度の低下を引き起こすことなく、加熱処理や光照射処理による変色がより抑制されて光反射率の低下がさらに抑制される傾向にある。また、二酸化チタン(D)は、二酸化チタン(D)の総量100質量部に対して、 SiO_2 を3～11質量部、及び、 Al_2O_3 を1～3質量部を含むものがより好ましい。

[0066] 本実施形態の樹脂組成物中の二酸化チタン(D)の含有量は、特に限定されないが、エポキシ変性シリコン化合物(A)及び分岐型イミド樹脂(B)の合計100質量部に対して、10～300質量部であることが好ましく、より好ましくは50～250質量部である。含有量をかかると好ましい範囲内にすることで、紫外光領域及び可視光領域における光反射率の過度の低下

を引き起こすことなく、プリント配線板、チップLEDの製造時の搬送等での割れや欠け等の発生が抑制される傾向にあるとともに、プリント配線板におけるメカニカルドリル加工やチップLEDにおけるダイシング加工において、ドリルビットやダイシングブレードの折損や加工できないという不具合の発生が抑制される傾向にある。

[0067] 本実施形態の樹脂組成物で使用する分散剤（E）としては、特に限定されないが、一般に塗料用に使用されている分散安定剤を好適に用いることができる。好ましくは、共重合体ベースの湿潤分散剤が使用される。その具体例としては、ビックケミー・ジャパン（株）製の高分子湿潤分散剤、例えば、BYK-W903、BYK-W940、BYK-W996、BYK-W9010、Disper-BYK110、Disper-BYK111、Disper-BYK-110、111、161、180等が挙げられるが、これらに特に限定されない。分散剤（E）は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。

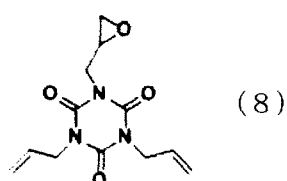
[0068] 本実施形態の樹脂組成物中の分散剤（E）の含有量は、特に限定されないが、エポキシ変性シリコン化合物（A）及び分岐型イミド樹脂（B）の合計100質量部に対して、0.05～10質量部であることが好ましく、より好ましくは0.1～4.0質量部、さらに好ましくは0.5～3.0質量部である。分散剤（E）の含有量をかかるとの好ましい範囲内にすることで、耐熱性がより高められるとともに、樹脂組成物中の樹脂と二酸化チタン（D）との分散性がより高められて、成形ムラが抑制される傾向にある。

[0069] 本実施形態の樹脂組成物は、上述したエポキシ変性シリコン化合物（A）以外のエポキシ化合物として、エポキシ環を一以上有する単量体エポキシ化合物（F）を含有していてもよい。単量体エポキシ化合物（F）は、一以上のエポキシ環を有する単量体である限り、その種類は特に限定されないが、耐熱性及び耐光変色性に優れるとの観点から、一分子中に一個又は二個のエポキシ環を有する単量体エポキシ化合物が好ましい。この単量体エポキシ化合物（F）をエポキシ変性シリコン化合物（A）、分岐型イミド樹脂（

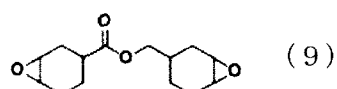
B)、二酸化チタン(D)及び分散剤(E)とともに用いることで、プリプレグの粘度が低減されて加熱時のプリプレグ溶融性が高められ、プリプレグの保存安定性及び金属箔張積層板の成形性がより一層向上されとともに、ガラス転移温度及び金属箔とのピール強度がより一層高められる傾向にある。なお、本実施形態の樹脂組成物において、この単量体エポキシ化合物(F)は、上記のリン系硬化促進剤(C)とともに使用することもできるが、上記のリン系硬化促進剤(C)と同様に作用し得るので、リン系硬化促進剤(C)に代えて使用することもできる。

[0070] 上記の単量体エポキシ化合物(F)としては、下記式(8)～(10)で表される化合物が好ましい。なお、単量体エポキシ化合物(F)は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。

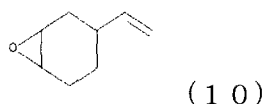
[化15]



[化16]



[化17]



[0071] 単量体エポキシ化合物(F)の分子量は、特に限定されず、適宜設定することができるが、好ましくは80～800であり、より好ましくは120～500である。

[0072] 単量体エポキシ化合物(F)は、公知の方法により製造することができ、また、その市販品を容易に入手可能である。例えば、上記式(8)で表される化合物としては、例えばDA-MGIC(四国化成(株)製)が挙げられ

、上記式(9)で表される化合物としては、セロキサイド2021P(ダイセル化学工業(株)製)等が挙げられ、上記式(10)で表される化合物とセロキサイド2000(ダイセル化学工業(株)製)等が挙げられ

る。

[0073] 本実施形態の樹脂組成物中の単量体エポキシ化合物(F)の含有量は、特に限定されないが、ブリアレクの保存安定性及び金属箔張積層板の成形性並びにガラス転移温度及び金属箔とのピール強度の観点から、エポキシ変性シリコン化合物(A)及び分岐型イミド樹脂(B)の合計100質量部に対して、0.05～25質量部であることが好ましく、より好ましくは0.1～20質量部、さらに好ましくは0.5～15質量部である。

[0074] また、単量体エポキシ化合物(F)のエポキシ当量は、特に限定されないが、製造性の向上や樹脂の粘度上昇抑制の観点から、分岐型イミド樹脂(B)のカルボキシル残基に対して0.1～0.8当量であることが好ましい。

[0075] 本実施形態の樹脂組成物は、上述したエポキシ変性シリコン化合物(A)及び単量体エポキシ化合物(F)以外のエポキシ化合物として、脂環式エポキシ樹脂(G)を含有してもよい。この脂環式エポキシ樹脂(G)を

エポキシ変性シリコン化合物(A)、分岐型イミド樹脂(B)、リン系硬化促進剤(C)、二酸化チタン(D)及び分散剤(E)とともに用いることで、加熱処理及び光照射処理による光反射率の及びガラス転移温度が高められる傾向にある。この脂環式エポキシ樹脂(G)としては、エポキシ化合物のエポキシ環をアルコールで開環重合させたものが好ましい。その具体例としては、ビニルシクロヘキセンジエポキシドのアルコール付加物、3,4-エポキシシクロヘキサノカルボン酸-3',4'-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコール付加物、アジピン酸ビス3,4-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコール付加物、ジシクロペンタジエポキシドのアルコール付加物、ε-カプロラク톤変性ビス(3,4-エポキシシクロヘキシルメチル)-4,5-エポキシシクロヘキサノ-1,2-ジカルボン酸のアルコール付加物、ε-カプロラク톤変性テトラ(3,4-エポキシシクロ

ヘキシルメチル) ブタン-テトラカルボン酸のアルコール付加物、ジペンテンジオキシドのアルコール付加物、1, 4-シクロオクタジエンジエポキシドのアルコール付加物及びビス(2, 3-エポキシシクロペンチル) エーテルのアルコール付加物が挙げられるが、これらに特に限定されない。これらは、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせる用いることができる。これらの中でも、耐熱性及び耐光変色性の観点から、ビニルシクロヘキセンジエポキシドの2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノール付加物が好ましい。

[0076] 脂環式エポキシ樹脂(G)の質量平均分子量は、特に限定されず、適宜設定することができるが、好ましくは1500~10000であり、より好ましくは2000~7000である。

[0077] 脂環式エポキシ樹脂(G)は、公知の方法により製造することができ、また、その市販品を容易に入手可能である。市販品としては、例えば、ビニルシクロヘキセンジエポキシドの2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノール付加物としては、EHPE3150(ダイセル化学工業(株)製)等が挙げられる。

[0078] 本実施形態の樹脂組成物中の脂環式エポキシ樹脂(G)の含有量は、特に限定されないが、耐熱性及び耐光変色性の観点から、エポキシ変性シリコン化合物(A)及び分岐型イミド樹脂(B)の合計100質量部に対して、3~40質量部であることが好ましく、より好ましくは5~30質量部、さらに好ましくは5~25質量部である。

[0079] なお、本実施形態の樹脂組成物が、上述した単量体エポキシ化合物(F)及び/又は脂環式エポキシ樹脂(G)を含有する態様である場合、本実施形態の樹脂組成物中の各成分(A)~(G)の好ましい含有割合は、以下のとおりである。

[0080] 樹脂組成物中のエポキシ変性シリコン化合物(A)の含有量は、得られる金属箔張積層板の加熱処理及び光照射処理による変色を抑制する観点から、エポキシ変性シリコン化合物(A)、分岐型イミド樹脂(B)、単量体

エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、２０～９０質量部であることが好ましく、より好ましくは３０～８０質量部である。

[0081] 樹脂組成物中の分枝型イミド樹脂（B）の含有量は、得られる金属箔張積層板のピール強度及び耐熱性を高めるとともに加熱処理及び光照射処理による変色を抑制する観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分枝型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、１０～８０質量部であることが好ましく、より好ましくは１５～７０質量部であり、さらに好ましくは２０～６０質量部である。

[0082] 樹脂組成物中のリン系硬化促進剤（C）の含有量は、加熱処理及び光照射処理による光反射率及びガラス転移温度の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分枝型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、０．１～１０質量部であることが好ましく、より好ましくは０．５～８質量部である。

[0083] 樹脂組成物中における二酸化チタン（D）の含有量は、紫外光領域及び可視光領域における光反射率や成形性及び加工性の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分枝型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、１０～４００質量部であることが好ましく、より好ましくは２５～３００質量部であり、さらに好ましくは１００～２５０質量部である。

[0084] 樹脂組成物中における分散剤（E）の含有量は、耐熱性及び分散性の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分枝型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計１００質量部に対して、０．０５～５質量部であることが好ましく、より好ましくは０．１～４．０質量部、さらに好ましくは０．５～３．０質量部である。

[0085] 樹脂組成物中における単量体エポキシ化合物（F）の含有量は、プリプレグの保存安定性及び金属箔張積層板の成形性並びにガラス転移温度及び金属

箔とのピール強度の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分枝型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計100質量部に対して、1～50質量部であることが好ましく、より好ましくは0.5～20質量部であり、さらに好ましくは1.0～10質量部である。

[0086] また、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、さらにシリコンカップリング剤（H）を含有してもよい。シリコンカップリング剤が有するシリノール基は、表面に水酸基を持つ素材と、特に親和性及び反応性に優れるため、有機物－無機物の結合に効果があり、無機充填材の粒子表面がシリコンカップリング剤と反応する場合には、熱硬化性樹脂と無機充填材の密着性が高められる。そのため、シリコンカップリング剤（H）を併用することにより、得られる金属箔貼り積層板やプリント配線板等のピール強度、弾性率、吸湿耐熱性、及び硬化物の外観が向上される傾向にある。ここで使用されるシリコンカップリング剤（H）としては、一般に無機物の表面処理に使用されているものを好適に用いることができ、その種類は特に限定されない。その具体例としては、γ－アミノプロピルトリエトキシラン、N－β－（アミノエチル）－γ－アミノプロピルトリメトキシランなどのアミノシリコン系、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシランなどのエポキシシリコン系、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシランなどのビニルシリコン系、N－β－（N－ビニルベンジルアミノエチル）－γ－アミノプロピルトリメトキシシリコン塩酸塩などのカチオニックシリコン系、フェニルシリコン系などが挙げられる。これらは、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。

[0087] 本実施形態の樹脂組成物中のシリコンカップリング剤（H）の含有量は、適宜設定することができる。特に限定されないが、樹脂と無機充填材との密着性及びガラス転移温度の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）及び分枝型イミド樹脂（B）の合計100質量部に対して、0.5～8質量部であることが好ましく、より好ましくは、1～5質量部である。

[0088] なお、本実施形態の樹脂組成物は、上述したエポキシ変性シリコン化合物（A）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）以外のエポキシ化合物として、エポキシ樹脂（以下、単に「他のエポキシ樹脂」とも記す。）を含有していてもよい。この他のエポキシ樹脂としては、1分子中に2個以上のエポキシ基を有する化合物であれば、公知のものを使用することができ、その種類は特に限定されない。例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールE型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、3官能フェノール型エポキシ樹脂、4官能フェノール型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ポリオール型エポキシ樹脂、イソシアヌレート環含有エポキシ或いはこれらのハロゲン化物等が挙げられる。他のエポキシ樹脂は、1種を単独で或いは2種類以上を適宜組み合わせ使用することができる。

[0089] また、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、上述した二酸化チタン（D）以外に、他の無機充填材を含有していてもよい。他の無機充填材としては、積層板用途において一般に使用されているものを好適に用いることができ、例えば、天然シリカ、合成シリカ、溶融シリカ、アモルファスシリカ、中空シリカ、アエロジル等のシリカ類、ホワイトカーボン、ベーマイト、酸化モリブデンやモリブデン酸亜鉛等のモリブデン化合物、ホウ酸亜鉛、錫酸亜鉛、窒化ホウ素、凝集窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、水酸化アルミニウム加熱処理品（水酸化アルミニウムを加熱処理し、結晶水の一部を減じたもの）、水酸化マグネシウム等の金属水和物、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、水酸化アルミニウム、窒化ホウ素、アルミナ、クレー、カオリン、タルク、焼

成クレー、焼成カオリン、焼成タルク、マイカ、Eーガラス、Aーガラス、NEーガラス、Cーガラス、Lーガラス、Dーガラス、Sーガラス、MーガラスG20、ガラス短繊維（Eガラス、Tガラス、Dガラス、Sガラス、Qガラスなどのガラス微粉末類を含む。）、中空ガラス、球状ガラスなどが挙げられるが、これらに特に限定されない。これらのなかでも、光反射率の過度の低下を抑制するとともに、熱膨張率等の積層板特性を高める観点から、他の無機充填材としては、シリカ類及びタルクが好ましく、電気特性の観点から、より好ましくはシリカ類である。なお、ここで例示した他の無機充填材は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。また、これらの他の無機充填材の平均粒子径（D50）は、特に限定されないが、分散性、成形時の流れ特性や小径ドリルビットの使用時の折損を考慮すると0.1～5 μm であることが好ましく、0.2～3 μm であることが好ましい。これらの他の無機充填材の含有量は、特に限定されないが、エポキシ変性シリコン化合物（A）及び分岐型イミド樹脂（B）の合計100質量部に対して、1～300質量部であることが好ましく、より好ましくは5～250質量部以下である。

[0090] さらに、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、上述したリン系硬化促進剤（C）以外の硬化促進剤を含有していてもよい。硬化促進剤は当業界で公知であり、一般に使用されているものであれば、その種類は特に限定されない。硬化促進剤としては、例えば、銅、亜鉛、コバルト、ニッケル、マンガン等の有機金属塩類、イミダゾール類及びその誘導体並びに第3級アミンなどが挙げられる。なお、硬化促進剤の含有量は、適宜調整でき、特に限定されないが、樹脂の硬化度や樹脂組成物の粘度等の観点から、エポキシ変性シリコン化合物（A）、分岐型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（F）及び脂環式エポキシ樹脂（G）の合計100質量部に対して、通常は0.01～15質量部程度であることが好ましく、より好ましくは0.02～3質量部である。

[0091] また、本実施形態の樹脂組成物は、所期の特性が損なわれない範囲におい

て、上記以外の成分を含有していてもよい。このような任意の配合物としては、例えば、上記以外の熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂及びそのオリゴマー、エラストマー類などの種々の高分子化合物、難燃性化合物、各種添加剤などが挙げられる。これらは、当業界で一般に使用されているものであれば、特に限定されるものではない。例えば、難燃性化合物としては、4, 4'-ジブロモビフェニル等の臭素化合物、リン酸エステル、リン酸メラミン、リン含有エポキシ樹脂などのリン化合物、メラミンやベンゾグアナミンなどの窒素含有化合物、オキサジン環含有化合物などが挙げられる。添加剤の具体例としては、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光重合開始剤、蛍光増白剤、光増感剤、染料、顔料、増粘剤、滑剤、消泡剤、分散剤、レベリング剤、光沢剤、重合禁止剤などが挙げられる。これら任意の配合物は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

[0092] さらにまた、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて溶剤を含有していてもよい。例えば、有機溶剤を用いると、樹脂組成物の調製時の粘度を下げるので、ハンドリング性が向上されるとともにガラスクロスへの含浸性が高められる。溶剤の種類は、前述したエポキシ変性シリコン化合物（A）及び分枝型イミド樹脂（B）の混合物を溶解或いは相溶可能なものであれば、特に限定されない。その具体例としては、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン類、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、ジメチルホルムアミドやジメチルアセトアミドなどのアミド類、プロピレングリコールメチルエーテル及びそのアセテートなどが挙げられるが、これらに特に限定されない。溶剤は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

[0093] 本実施形態の樹脂組成物は、常法にしたがって調製することができ、上述したエポキシ変性シリコン化合物（A）、分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）、二酸化チタン（D）及び分散剤（E）、並びに上述したその他の任意成分を均一に含有する樹脂組成物が得られる方法であれば

、その調製方法は、特に限定されない。例えば、エポキシ変性シリコーン化合物（A）、分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）、二酸化チタン（D）及び分散剤（E）を順次溶剤に配合し、十分に攪拌することで、本実施形態の樹脂組成物を容易に調製することができる。

[0094] 本実施形態の樹脂組成物の調製時に、必要に応じて有機溶剤を使用することができる。有機溶剤の種類は、エポキシ変性シリコーン樹脂（A）及び分岐型イミド樹脂（B）の混合物を溶解或いは相溶可能なものであれば、特に限定されない。その具体例は、上述したとおりである。

[0095] また、本実施形態の樹脂組成物の調製時に、各成分を均一に溶解或いは分散させるための公知の処理（攪拌、混合、混練処理など）を行うことができる。例えば、二酸化チタン（D）の樹脂組成物に対する攪拌分散方法として、適切な攪拌能力を有する攪拌機を付設した攪拌槽を用いて攪拌分散処理を行うことで、樹脂組成物に対する分散性が高められる。上記の攪拌、混合、混練処理は、例えば、ボールミル、ビーズミルなどの混合を目的とした装置、又は、公転・自転型の混合装置などの公知の装置を用いて適宜行うことができる。

[0096] ここで、本実施形態の樹脂組成物の調製にあたり、少なくとも分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）及び単量体エポキシ化合物（F）を溶媒中に溶解させ、溶媒の沸点による還流を行う前処理を行うと、得られる樹脂組成物の分子量の増加を制御することができ、粘度の過度な上昇を抑制することができる。例えば、窒素雰囲気下、常圧でイソシアヌレート環及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂（B）、単量体エポキシ化合物（C）及びリン系硬化促進剤（F）を、プロピレングリコールメチルエーテルに溶解させ、4時間プロピレングリコールメチルエーテルの沸点（150℃）で4時間還流させる前処理を行うことができる。このような前処理に用いる溶媒としては、特に限定されないが、例えば、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、ジメチルホルムアミドなどのアミド類、プロピレングリコールメチルエーテル及びそのアセテートなどが挙げられる。これらは1種

を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

[0097] 一方、本実施形態のプリプレグは、上記の樹脂組成物を基材と組み合わせることにより、具体的には、上記の樹脂組成物を基材に含浸又は塗布させることにより、得ることができる。プリプレグの作製方法は、常法にしたがって行うことができ、特に限定されない。例えば、エポキシ変性シリコン化合物(A)、分岐型イミド樹脂(B)、リン系硬化促進剤(C)、二酸化チタン(D)及び分散剤(E)を含有する樹脂組成物を基材に含浸又は塗布させた後、100～200℃の乾燥機中で1～30分加熱させるなどして半硬化(Bステージ化)させることで、本実施形態のプリプレグを作製することができる。なお、本実施形態のプリプレグは、特に限定されないが、プリプレグの総量に対する樹脂組成物(二酸化チタン(D)や他の無機充填材を含む。)の量が、30～90質量%の範囲であることが好ましい。

[0098] 本実施形態のプリプレグで使用される基材は、特に限定されるものではなく、各種プリント配線板材料に用いられている公知のものを、目的とする用途や性能により適宜選択して使用することができる。その具体例としては、Eガラス、Dガラス、Lガラス、Sガラス、Qガラス、球状ガラス、NEガラス、Tガラス等のガラス繊維、クォーツやチタン酸バリウム等のガラス以外の無機繊維、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステルなどの有機繊維、液晶ポリエステル等の織布などが挙げられるが、これらに特に限定されない。基材は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。基材の形状としては、織布、不織布、ロービング、チョップドストランドマット、サーフェシングマットなど、織布の織り方としては、平織り、ななこ織り、綾織り等が知られているが、いずれであっても構わない。基材は、1種を単独で或いは2種以上を適宜組み合わせ用いることができる。これらの中でも、寸法安定性の観点から、超開繊処理したガラス織布や目詰め処理を施したガラス織布が好適に使用される。また、エポキシシラン処理やアミノシラン処理など、シランカップリング剤などで表面処理したガラス織布は吸湿耐熱性の観点から好ましい。また、液晶ポリエステル織布は、電

気特性の面から好ましい。基材の厚さや質量は、特に限定されないが、通常は0.01～0.3mm程度のものが好適に用いられる。とりわけ、強度と吸水性の観点から、基材は、厚み200 μ m以下、質量250g/m²以下のガラス織布が好ましく、Eガラスのガラス繊維からなるガラス織布がより好ましい。プリプレグの作製時に使用される。

[0099] 他方、本実施形態の金属箔張積層板は、上述したプリプレグを少なくとも1枚以上重ね、その片面もしくは両面に金属箔を配して積層成形したものである。具体的には、前述のプリプレグを1枚或いは複数枚重ね、その片面もしくは両面に銅やアルミニウムなどの金属箔を配置し、積層成形することにより、本実施形態の金属箔張積層板を作製することができる。ここで使用する金属箔は、プリント配線板材料に用いられているものであれば、特に限定されないが、圧延銅箔や電解銅箔等の銅箔が好ましい。高周波領域における導体損失を考慮すると、マット面の粗さが小さい電解銅箔がより好ましい。また、金属箔の厚みは、特に限定されないが、2～70 μ mが好ましく、より好ましくは2～35 μ mである。金属箔張積層板の成形方法及びその成形条件についても、特に限定されず、一般的なプリント配線板用積層板及び多層板の手法及び条件を適用することができる。例えば、金属箔張積層板の成形時には多段プレス機、多段真空プレス機、連続成形機、オートクレーブ成形機などを用いることができ、また、温度は100～300℃、圧力は面圧2～100kgf/cm²、加熱時間は0.05～5時間の範囲が一般的である。さらに、必要に応じて、150～300℃の温度で後硬化を行うこともできる。また、本実施形態のプリプレグと、別途作製した内層用の配線板とを組み合わせることで積層成形することにより、多層板とすることも可能である。多層板の製造方法としては、例えば、上述したプリプレグ1枚の両面に35 μ mの銅箔を配置し、上記条件にて積層形成した後、内層回路を形成し、この回路に黒化処理を実施して内層回路板を形成し、その後、この内層回路板と上記のプリプレグとを交互に1枚ずつ配置し、さらに最外層に銅箔を配置して、上記条件にて好ましくは真空下で積層成形する方法が知られている。

[0100] そして、本実施形態の金属箔張積層板は、耐熱性に優れるのみならず、紫外光領域及び可視光領域において高い光反射率を有し、また、加熱処理及び光照射処理による光反射率の低下が少なく、さらには、金属箔とのピール強度にも優れ、その上さらに、好ましい態様においては吸湿時の耐熱性にも優れる。そのため、本実施形態の金属箔張積層板は、そのような性能が要求されるプリント配線板、特にLED実装用のプリント配線板として、殊に有効に用いることができる。

[0101] 上記の本実施形態の金属箔張積層板は、所定の配線パターンを形成することにより、プリント配線板として好適に用いることができる。プリント配線板は、常法にしたがって製造することができ、その製造方法は特に限定されない。以下、プリント配線板の製造方法の一例を示す。まず、上述した銅張積層板等の金属箔張積層板を用意する。次に、金属箔張積層板の表面にエッチング処理を施して内層回路の形成を行い、内層基板を作製する。この内層基板の内層回路表面に、必要に応じて接着強度を高めるための表面処理を行い、次いでその内層回路表面に上述したプリプレグを所要枚数重ね、さらにその外側に外層回路用の金属箔を積層し、加熱加圧して一体成形する。このようにして、内層回路と外層回路用の金属箔との間に、基材及び熱硬化性樹脂組成物の硬化物からなる絶縁層が形成された多層の積層板が製造される。次いで、この多層の積層板にスルーホールやバイアホール用の穴あけ加工を施した後、この穴の壁面に内層回路と外層回路用の金属箔とを導通させるめっき金属皮膜を形成し、さらに外層回路用の金属箔にエッチング処理を施して外層回路を形成することで、プリント配線板が製造される。

[0102] 上記の製造例で得られるプリント配線板は、絶縁層と、この絶縁層の表面に形成された導体層とを有し、絶縁層が上述した本実施形態の樹脂組成物を含む構成となる。すなわち、上述した本実施形態のプリプレグ（基材及びこれに含浸又は塗布された本実施形態の樹脂組成物）、上述した本実施形態の金属箔張積層板の樹脂組成物の層（本実施形態の樹脂組成物からなる層）が、本実施形態の樹脂組成物を含む絶縁層から構成されることになる。

実施例

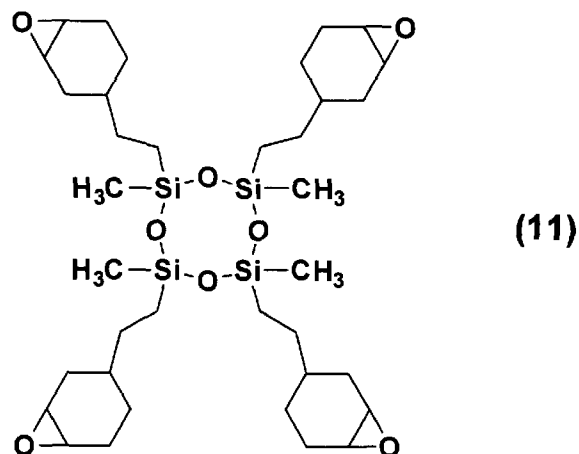
[0103] 以下、実施例及び比較例を挙げて、本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例によりなんら限定されるものではない。なお、以下において特に断りのない限り、「部」は「質量部」を表す。

[0104] (実施例 1)

下記式 (11) で表される脂肪族エポキシ変性シリコン化合物 (X-40-2670 (信越化学工業 (株) 製)) 55 質量部、質量平均分子量 (M_w) が 33000 であるエポキシ変性分岐型イミド化合物 (ELG-941 (酸価 35 mg KOH/g)、DIC (株) 製) 45 質量部、リン系硬化促進剤として、メチルトリブチルホスホニウムジメチルホスフェート (PX-4MP (日本化学工業 (株) 製)) 5 質量部、二酸化チタン (CR90 (二酸化チタンの合計 100 質量部に対して、 SiO_2 処理が 1~5 質量部、及び Al_2O_3 処理が 1~3 質量部)、石原産業 (株) 製) 200 質量部、湿潤分散剤 (BYK-W903、ビッケミー・ジャパン (株) 製) 1.75 質量部、シランカップリング剤 (Z6040、東レ・ダウコーニング (株) 製)) 3 質量部をホモミキサーにて攪拌混合しワニスを得た。このワニスをメチルエチルケトンを用いて質量基準で等倍に希釈し、厚さ 0.08 mm の E ガラスクロスに含浸させ、150℃で3分加熱させて、樹脂組成物量が 48 質量%のプリプレグを得た。次に、このプリプレグを2枚重ね合わせ、得られた積層体の上下面に厚さ 12 μm の電解銅箔 (JTC-LPZ箔、(株) 日鉱マテリアルズ製) を配置し、その後、温度 220℃、面圧 30 kgf/cm²、30 mmHg 以下の真空下で 150 分間、真空プレス機を用いて加圧成型することにより、厚さ約 0.2 mm の両面銅箔張積層板を得た。

[0105]

[化18]



[0106] (実施例 2)

エポキシ変性シリコン化合物の配合量を 4.5 質量部に、エポキシ変性分岐型イミド化合物の配合量を 5.5 質量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例 1 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0107] (実施例 3)

エポキシ変性シリコン化合物の配合量を 5.5 質量部に、エポキシ変性分岐型イミド化合物の配合量を 3.5 質量部にそれぞれ変更し、脂環式エポキシ樹脂として 2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの 1, 2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキサン付加物 (EHPE-3150 (ダイセル化学工業(株)製) 1.0 質量部をさらに配合すること以外は、実施例 2 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0108] (実施例 4)

エポキシ変性分岐型イミド化合物に代えて質量平均分子量 (Mw) が 4800 であるアミン変性分岐型イミド化合物 (ELG-1301 (酸価 120 mg KOH/g)、DIC (株) 製) 2.5 質量部を用い、エポキシ樹脂として実施例 3 で用いた脂環式エポキシ樹脂 2.0 質量部をさらに配合すること以外は、実施例 1 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張

積層板を得た。

[0109] (実施例5)

アミン変性分岐型イミド化合物に代えて質量平均分子量 (Mw) が 3500 であるアルコール変性分岐型イミド化合物 (ELG-1302 (酸価 70, 8 mg KOH/g)、DIC (株) 製) 25 質量部を用いること以外は、実施例 4 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0110] (比較例1)

エポキシ変性分岐型イミド化合物に代えて質量平均分子量が 11000 である無変性の多分岐型イミド化合物 ((V-8002 (酸価 127 mg KOH/g)、DIC (株) 製) 45 質量部を用い、リン系硬化促進剤の配合を省略すること以外は、実施例 1 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0111] (比較例2)

無変性の分岐型イミド化合物に代えて実施例 1 で用いたエポキシ変性分岐型イミド化合物 45 質量部を用いること以外は、比較例 1 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0112] (比較例3)

アルミニウム系硬化促進剤 (ALCH-TR (川研ファインケミカル (株) 製)) 1 質量部をさらに配合すること以外は、比較例 2 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0113] (比較例4)

アルミニウム系硬化促進剤 (ALCH-TR (川研ファインケミカル (株) 製)) に代えてカチオン系硬化促進剤 (サンエイドーS I-150L (三新化学工業 (株) 製)) 1 質量部を用いること以外は、比較例 3 と同様に行い、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0114] 上記のようにして得られた実施例 1～5 及び比較例 1～4 のプリプレグを用いて、プリプレグ外観及び保存安定性の評価を行った。また、上記のよう

にして得られた実施例 1 ～ 5 及び比較例 1 ～ 4 の両面銅箔張積層板を用いて、積層板内観及び外観、反射率、加熱後反射率、光処理後反射率、T_g、ピール強度、及び吸湿はんだ耐熱性の測定並びに評価を行った。

[0115] なお、各試験方法の測定方法及び評価方法は、以下の通りである。

(測定方法及び評価方法)

1) プリプレグ外観：得られたプリプレグ表面のタック性を指触にて確認した。ここでは、タック性が良好で、製品として使用することができるものを「○」と、タック性が不良で、製品として使用することができないものを「タック性」と評価した。

2) 保存安定性：得られたプリプレグを 40℃の熱風乾燥機で 120 時間加熱処理した。この熱処理後のプリプレグを 2 枚重ね合わせ、得られた積層体の上下面に厚さ 12 μm の電解銅箔（JTC-LPZ 箔、（株）日鉱マテリアルズ製）を配置し、温度 220℃、面圧 30 kgf/cm²、30 mmHg 以下の真空下で 150 分間、真空プレス機を用いて加圧成型し、厚さ 0.2 mm の両面銅張積層板の作製を試みた。そして、樹脂組成物のフローが良好であったものを○と、樹脂組成物のフローが不良で硬化ムラが確認されたものを「硬化ムラ」と評価した。

3) 銅張積層板内観及び外観：得られた両面銅張積層板をダイシングソーでサイズ 50 × 50 mm に切断し、表面の銅箔をエッチングにより除去した後、研磨機を用いて研磨することで、両面銅張積層板の断面を露出させた測定用サンプルを得た。測定用サンプルの外観を目視観察するとともに、光学顕微鏡を用いて測定用サンプル断面の SEM 観察を行ない、樹脂の欠落がなければ○、欠落がある場合を×とした。

4) 反射率：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ 50 × 50 mm に切断後、表面の銅箔をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを、JIS Z-8722 に基づき、分光測色計（コニカミノルタホールディングス（株）製：CM3610d）を用いて、457 nm での反射率を測定した（n = 5 の平均値）。

5) 加熱後反射率：上記4) で得られたサンプルを、180℃の熱風乾燥機で24時間加熱処理した後、上記4) の反射率の測定と同様にして、反射率を測定した (n = 5 の平均値)。

6) 加熱光照射後反射率：上記4) で得られたサンプルを、耐候試験機乾燥機 (S U V - F 1 1、岩崎電気 (株) 製) 内に設置された180℃のホットプレート上で、紫外線 (波長：295～450 nm) 照射度100 mW / c m²、24時間の加熱光照射処理 (紫外線照射度100 mW / c m²) を行った後、上記4) の反射率の測定と同様にして、反射率を測定した (n = 5 の平均値)。

7) T g：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ12.7×2.5 mmに切断後、表面の銅箔をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを用い、J I S C 6 4 8 1 に準拠して動的粘弾性分析装置 (T A インスツルメント製) でDMA法によりガラス転移温度を測定した (n = 3 の平均値)。

8) ピール強度：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ10×100 mmに切断後、表面の銅箔を残した測定用サンプルを得た。J I S C 6 4 8 1 のプリント配線板用銅張積層板試験方法 (5.7 引き剥がし強さ参照。) に準じ、オートグラフ ((株) 島津製作所製：A G - I S) を用いて、測定用サンプルの銅箔の引き剥がし強度を測定した (n = 5 の平均値)。

9) 吸湿はんだ耐熱性：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ50 mm×50 mmに切断後、表面の銅箔の3 / 4 をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを用い、プレッシャークーラー試験器P C T (120℃ / 2気圧) で3時間吸湿させた後、260℃の半田槽の中に1分浸漬した後の外観変化を目視で観察した。試験回数は3回とし、3つとも異常が認められなかったもの「異常なし：(○)」、1つでも膨れが発生したものを「膨れ発生：(×)」と評価した。

評価結果を、表1及び2に示す。

[0116] [表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
プリプレグ特性	外観	○	○	○	○	○
	保存安定性	○	○	○	○	○
銅張積層板特性	内観及び外観	○	○	○	○	○
	反射率(%)	90	89	90	90	90
	加熱後反射率(%)	80	80	80	80	80
	加熱光照射後反射率(%)	75	75	75	75	75
	Tg(°C)	170	183	182	182	182
	ピール強度(gf/cm)	650	700	650	650	650
	吸湿はんだ耐熱性	○	○	○	○	○

[0117] [表2]

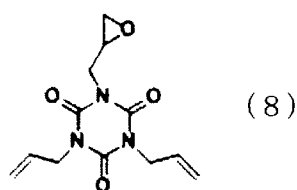
		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
プリプレグ特性	内観及び外観	○	タック性	○	○
	保存安定性	×	○	×	×
銅張積層板特性	内観及び外観	○	○	硬化ムラ	硬化ムラ
	反射率(%)	91	91	90	87
	加熱後反射率(%)	81	73	85	81
	加熱光照射後反射率(%)	75	70	75	70
	Tg(°C)	184	110	171	193
	ピール強度(gf/cm)	700	200	350	400
	吸湿はんだ耐熱性	○	×	×	×

[0118] (実施例6)

脂肪族エポキシ変性シリコン化合物(X-40-2670、信越化学工業(株)製)55質量部、質量平均分子量(Mw)が3500であるアルコール変性多分枝型イミド樹脂(ELG-1302、DIC(株)製、酸価:70、8mg KOH/g)20質量部、下記式(8)で表される単量体エポキシ化合物(DA-MGIC、四国化成(株)製)5質量部、脂環式エポキシ樹脂としてビニルシクロヘキセンジエポキシドの2,2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノール付加物(EHPE3150、ダイセル(株)製)20質量部、リン系硬化促進剤として、メチルトリブチルホスホニウムジメチルホスフェート(PX-4MP(日本化学工業(株)製)3質量部、ニ

酸化チタン（CR90（二酸化チタンの合計100質量部に対して、 SiO_2 処理が1～5質量部、及び Al_2O_3 処理が1～3質量部）、石原産業（株）製）180質量部、湿潤分散剤（BYK-W903、ビツケミー・ジャパン（株）製）1.75質量部、シランカップリング剤（Z6040、東レ・ダウコーニング（株）製）3質量部をホモキサーにて攪拌混合してワニスを得た。このワニスをメチルエチルケトンを用いて質量基準で等倍に希釈し、厚さ0.08mmのEガラスクロスに含浸させ、150℃で3分加熱させて、樹脂組成物量が50質量%のプリプレグを得た。次に、このプリプレグを2枚重ね合わせ、得られた積層板の上下面に厚さ12 μm の電解銅箔（JTC-LPZ箔、（株）日鉱マテリアルズ製）を配置し、その後、温度230℃、面圧35kgf/cm²、30mmHg以下の真空下で150分間、真空プレス機を用いて加圧成型することにより、厚さ約0.2mmの両面銅箔張積層板を得た。

[0119] [化19]



[0120] （実施例7）

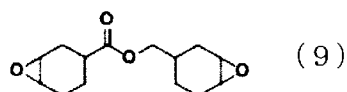
単量体エポキシ化合物（DA-MGIC、四国化成（株）製）の配合量を7.5質量部に、脂環式エポキシ樹脂（EHPE3150、ダイセル（株）製）の配合量を17.5質量部に、二酸化チタン（CR90、石原産業（株）製）の配合量を200質量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例6と同様にして、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0121] （実施例8）

単量体エポキシ化合物（DA-MGIC、四国化成（株）製）に代えて下記式（9）で表されるセロキサイド2021P（ダイセル化学工業（株）製）5質量部を用い、二酸化チタン（CR90、石原産業（株）製）の配合量

を200質量部に変更すること以外は、実施例6と同様にして、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅張積層板を得た。

[0122] [化20]



[0123] (実施例9)

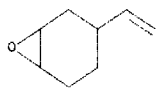
脂環式エポキシ樹脂（EHPE3150、ダイセル（株）製）の配合量を19質量部に、単量体エポキシ化合物（セロキサイド2021P）の配合量を1質量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例8と同様にして、ワニスを調製し、プリプレグ及び両面銅張積層板を得た。

[0124] (実施例10)

質量平均分子量（ M_w ）が3500である多分枝型イミド樹脂（ELG-1302、DIC（株）製、酸価：70.8mgKOH/g）27質量部、下記式（10）で表される単量体エポキシ化合物（セロキサイド2000、ダイセル（株）製）3質量部、リン系硬化促進剤として、メチルトリブチルホスホニウムジメチルホスフェート（PX-4MP（日本化学工業（株）製））3質量部を溶媒の存在下で還流する前処理を行なった後に、脂肪族エポキシ変性シリコン化合物（X-40-2670、信越化学工業（株）製）55質量部、脂環式エポキシ化合物としてビニルシクロヘキセンジエポキシドの2,2-ビス（ヒドロキシメチル）-1-ブタノール付加物（EHPE3150、ダイセル（株）製）15質量部、二酸化チタン（CR90（二酸化チタンの合計100質量部に対して、 SiO_2 処理が1～5質量部、及び Al_2O_3 処理が1～3質量部）、石原産業（株）製））180質量部、湿潤分散剤（BYK-W903、ビックケミー・ジャパン（株）製）1.75質量部、シランカップリング剤（Z6040、東レ・ダウコーニング（株）製））3質量部をホモミキサーにて攪拌混合しワニスを得た。

このようにして得られたワニスを用いること以外は、実施例6と同様にして、プリプレグ及び両面銅張積層板を得た。

[0125] [化21]



(10)

[0126] (比較例5)

脂肪族エポキシ変性シリコン化合物 (X-40-2670 (信越化学工業 (株) 製)) 55 質量部、質量平均分子量が 11000 であるエポキシ変性分岐型イミド化合物 (V-8002、DIC (株) 製、酸価: 127 mg KOH/g) 45 質量部、二酸化チタン (CR90、石原産業 (株) 製) 200 質量部、湿潤分散剤 (BYK-W903、ビッケミー・ジャパン (株) 製) 1.75 質量部、シランカップリング剤 (Z6040、東レ・ダウコーニング (株) 製) 3 質量部をホモキサーにて攪拌混合しワニスを得た。このワニスを使用すること以外は、実施例 6 と同様に行い、プリプレグ及び厚さ 0.2 mm の両面銅箔張積層板を得た。

[0127] (比較例6)

脂肪族エポキシ変性シリコン化合物 (X-40-2670、信越化学工業 (株) 製) 55 質量部、質量平均分子量 (Mw) が 4800 である無変性の多分岐型イミド樹脂 (ELG-1224、DIC (株) 製、酸価: 90.0 mg KOH/g) 20 質量部、脂環式エポキシ樹としてビニルシクロヘキセンジエポキシドの 2, 2-ビス (ヒドロキシメチル) -1-ブタノール付加物 (EHPE3150、ダイセル (株) 製) 25 質量部、二酸化チタン (CR90 (二酸化チタンの合計 100 質量部に対して、SiO₂ 処理が 1~5 質量部、及び Al₂O₃ 処理が 1~3 質量部)、石原産業 (株) 製) 180 質量部、湿潤分散剤 (BYK-W903、ビッケミー・ジャパン (株) 製) 1.75 質量部、シランカップリング剤 (Z6040、東レ・ダウコーニング (株) 製) 3 質量部をホモキサーにて攪拌混合しワニスを得た。このワニスを使用すること以外は、実施例 6 と同様に行い、プリプレグ及び両面銅箔張積層板を得た。

[0128] 上記のようにして得られた実施例 6～10 及び比較例 5～6 のプリプレグを用いて、プリプレグ外観、プリプレグ粘度及び保存安定性の評価を行った。また、上記のようにして得られた実施例 6～10 及び比較例 5～6 の両面銅箔張積層板を用いて、銅張積層板外観、反射率、加熱後反射率、光処理後反射率、T_g、ピール強度、及び吸湿はんだ耐熱性の評価を行った。

[0129] なお、各試験方法の測定方法及び評価方法は、以下の通りである。

(測定方法及び評価方法)

1) プリプレグ外観：得られたプリプレグ表面のタック性を指触にて確認した。ここでは、タック性が良好で、製品として使用することができるものを「○」と、タック性が不良で、製品として使用することができないものを「タック性」と評価した。

2) プリプレグ粘度：得られたプリプレグの粘度をフローテスター（SHIMADZU（株）製：CFT-500D）を用いて測定した。測定条件は、ヒーター温度 120℃、ダイ穴直径 1.0 mm、ダイ穴長 1.0 mm、ピストン断面積 1 cm²、荷重 0.5 kg とした。

3) 保存安定性：得られたプリプレグを 40℃の熱風乾燥機で 120 時間加熱処理した。この熱処理後のプリプレグを 2 枚重ね合わせ、得られた積層体の上下面に厚さ 12 μm の電解銅箔（JTC-LPZ 箔、（株）日鉱マテリアルズ製）を配置し、温度 220℃、面圧 30 kgf/cm²、30 mmHg 以下の真空下で 150 分間、真空プレス機を用いて加圧成型し、厚さ 0.2 mm の両面銅張積層板の作製を試みた。そして、樹脂組成物のフローが良好であったものを○と、樹脂組成物のフローが不良で硬化ムラが確認されたものを「硬化ムラ」と評価した。

4) 銅張積層板内観：得られた両面銅張積層板をダイシングソーでサイズ 50×50 mm に切断し、表面の銅箔をエッチングにより除去した後、研磨機を用いて研磨することで、両面銅張積層板の断面を露出させた測定用サンプルを得た。光学顕微鏡を用いて、測定用サンプル断面の SEM 観察を行ない、樹脂の欠落がなければ○、欠落がある場合を×とした。

5) 反射率：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ50×50 mmに切断後、表面の銅箔をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを、JIS Z-8722に基づき、分光測色計（コニカミノルタホールディングス（株）製：CM3610d）を用いて、457 nmでの反射率を測定した（n = 5の平均値）。

6) 加熱後反射率：上記5) で得られたサンプルを、180℃の熱風乾燥機で24時間加熱処理した後、上記5) の反射率の測定と同様にして、反射率を測定した（n = 5の平均値）。

7) 加熱光照射後反射率：上記5) で得られたサンプルを、耐候試験機乾燥機（SUV-F11、岩崎電気（株）製）内に設置された180℃のホットプレート上で、紫外線（波長：295～450 nm）照射度100 mW/cm²、24時間の加熱光照射処理（紫外線照射度100 mW/cm²）を行った後、上記5) の反射率の測定と同様にして、反射率を測定した（n = 5の平均値）。

8) T_g：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ12.7×2.5 mmに切断後、表面の銅箔をエッチングにより除去し、測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを用い、JIS C6481に準拠して動的粘弾性分析装置（TAインスツルメント製）でDMA法によりガラス転移温度を測定した（n = 3の平均値）。

9) ピール強度：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ10×100 mmに切断後、表面の銅箔を残した測定用サンプルを得た。JIS C6481のプリント配線板用銅張積層板試験方法（5.7 引き剥がし強さ参照。）に準じ、オートグラフ（（株）島津製作所製：AG-IS）を用いて、J測定サンプルの銅箔の引き剥がし強度を測定した（n = 5の平均値）。

10) 吸湿はんだ耐熱性：得られた両面銅箔張積層板をダイシングソーでサイズ50 mm×50 mmに切断後、表面の銅箔を残した測定用サンプルを得た。この測定用サンプルを用い、280℃の半田槽の中に30分浸漬した後

の外観変化を、目視で観察した（フクレ発生数／試験数：n＝5）。

評価結果を表3及び4に示す。

[0130] [表3]

		実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
PP特性	プリプレグ外観	○	○	○	○	○
	プリプレグ粘度(P・s)	500	3000	3000	3000	500
	保存安定性	○	○	○	○	○
銅張積層板特性	銅張積層板内観	◎	◎	◎	◎	◎
	反射率(%)	90	89	90	90	90
	加熱後反射率(%)	80	80	80	80	80
	加熱光照射後反射率(%)	75	75	75	75	75
	Tg(°C)	209	209	211	208	211
	ピール強度(gf/cm)	700	700	650	700	700
	はんだ耐熱性	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5

[0131] [表4]

		比較例5	比較例6
PP特性	プリプレグ外観	○	○
	プリプレグ粘度(P・s)	測定不能	2,000,000
	保存安定性	×	○
銅張積層板特性	銅張積層板内観	○	×
	反射率(%)	91	91
	加熱後反射率(%)	81	81
	加熱光照射後反射率(%)	75	74
	Tg(°C)	184	210
	ピール強度(gf/cm)	700	650
	はんだ耐熱性	0/5	0/5

[0132] なお、本出願は、2012年3月13日に日本国特許庁に出願された日本特許出願（特願2012-055598号）及び2012年6月11日に日本国特許庁に出願された日本特許出願（特願2012-131983号）に基づく優先権を主張しており、その内容はここに参照として取り込まれる。

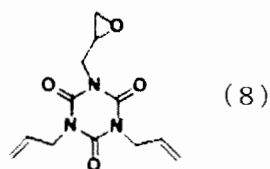
産業上の利用可能性

[0133] 以上説明した通り、本発明は、耐光性及び耐熱性が要求される、電気・電

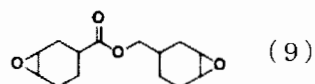
子材料、工作機械材料、航空材料等の種々の用途において、広く且つ有効に利用可能であり、特に優れた耐光性及び耐熱性、金属箔との高いピール強度が要求される、プリント配線板やLED実装用のプリント配線板の分野において、殊に有効に利用可能である。

請求の範囲

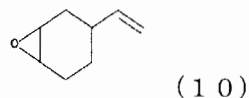
- [請求項1] エポキシ変性シリコン化合物（A）、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂（B）、リン系硬化促進剤（C）、二酸化チタン（D）及び分散剤（E）を含有する、樹脂組成物。
- [請求項2] 前記分岐型イミド樹脂（B）が、エポキシ変性分岐型イミド樹脂、アルコール変性分岐型イミド樹脂及びアミン変性分岐型イミド樹脂よりなる群から選択される少なくとも1種である、請求項1に記載の樹脂組成物。
- [請求項3] 前記分岐型イミド樹脂（B）は、10～200mg KOH/gの酸価を有する、請求項1又は2に記載の樹脂組成物。
- [請求項4] 前記分岐型イミド樹脂（B）は、10～100mg KOH/gの酸化を有する、請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項5] エポキシ環を一以上有する、上記（A）以外の単量体エポキシ化合物（F）をさらに含有する、請求項1～4のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
- [請求項6] 前記単量体エポキシ化合物（F）のエポキシ当量が、前記分岐型イミド樹脂（B）のカルボキシル残基に対して、0.1～0.8当量である、請求項5に記載の樹脂組成物。
- [請求項7] 前記単量体エポキシ化合物（F）が、下記式（8）～（10）：
[化1]



[化2]



[化3]



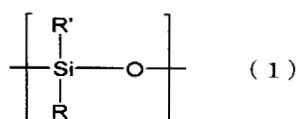
で表される化合物からなる群より選択される少なくとも1種である、
請求項5又は6に記載の樹脂組成物。

[請求項8] 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、脂肪族エポキシ変性シリコン化合物である、

請求項1～7のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項9] 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、下記式(1)で表される繰り返し単位を有し、1分子中に少なくとも3個のR'を有し、
且つ、アルコキシ基を含有しないシリコン化合物である、

[化4]



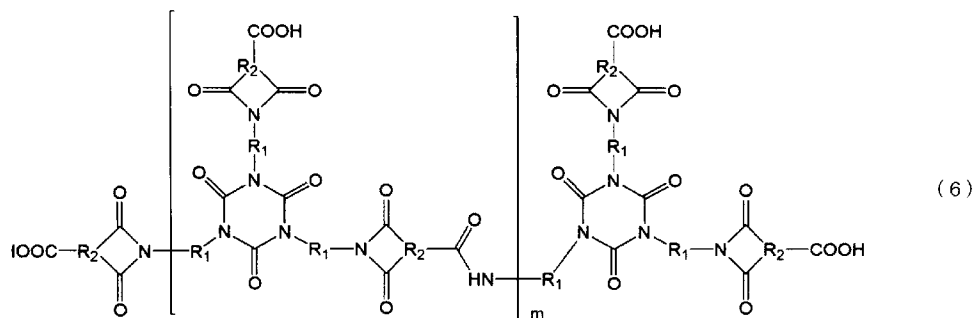
(式(1)中、Rは、水素原子又は置換もしくは非置換の1価の炭化水素基であり、R'は、エポキシ基を有する有機基である。)

請求項1～8のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項10] 前記エポキシ変性シリコン化合物(A)が、前記成分(A)及び(B)の合計100質量部に対して、20～80質量部含まれる、
請求項1～9のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項11] 前記分枝型イミド樹脂(B)が、下記式(6)で表されるものである、

[化5]



(式(6)中、 R_1 は、それぞれ独立して、2価の脂環族基であり、 R_2 は、それぞれ独立して、3価の脂環族基であり、 m は、1～10の整数である。)

請求項 1 ～ 10 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項12] シランカップリング剤（H）をさらに含有する、

請求項 1 ～ 1 1 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項13] 前記リン系硬化促進剤（C）が、前記成分（A）及び（B）の合計100質量部に対して、0.1～10質量部含まれる、請求項1～12のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項14] 前記二酸化チタン（D）が、前記成分（A）及び（B）の合計100質量部に対して、10～300質量部含まれる、請求項1～13のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔請求項15〕 前記二酸化チタン（D）は、5 μm以下の平均粒径を有する、請求項1～14のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項16] 前記二酸化チタン（D）は、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 、及び／又は、 ZnO で表面処理されたものであり、前記二酸化チタン（D）の総量100質量部に対して、 SiO_2 が0.5～15質量部、 Al_2O_3 が0.5～15質量部、 ZrO_2 が0.5～15質量部、及び／又は、 ZnO が0.5～15質量部含まれる、請求項1～15のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔請求項17〕 前記分散剤（E）が、前記成分（A）及び（B）の合計100質量

部に対して、0.05～10質量部含まれる、

請求項1～16のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項18] 前記分散剤(E)は、酸価が20～200mg KOH/gの高分子
湿潤分散剤である、

請求項1～17のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項19] 脂環式エポキシ樹脂(G)をさらに含有する、

請求項1～18のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項20] 前記脂環式エポキシ樹脂(G)が、ビニルシクロヘキサジエポキシ
シドのアルコール付加物、3,4-エポキシシクロヘキサンカルボン
酸-3',4'-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコール付加物
、アジピン酸ビス3,4-エポキシシクロヘキシルメチルのアルコー
ル付加物、ジシクロペンタジエンジエポキシシドのアルコール付加物、
ε-カプロラクトン変性ビス(3,4-エポキシシクロヘキシルメチ
ル)-4,5-エポキシシクロヘキサン-1,2-ジカルボン酸のアル
コール付加物、ε-カプロラクトン変性テトラ(3,4-エポキシ
シクロヘキシルメチル)ブタン-テトラカルボン酸のアルコール付加
物、ジペンテンジオキシシドのアルコール付加物、1,4-シクロオク
タジエンジエポキシシドのアルコール付加物及びビス(2,3-エポキ
シシクロペンチル)エーテルのアルコール付加物よりなる群から選択
される少なくとも1種である、

請求項19に記載の樹脂組成物。

[請求項21] 前記分岐型イミド樹脂(B)、前記リン系硬化促進剤(C)及び前
記単量体エポキシ化合物(F)を溶媒の存在下で還流する前処理を行
なった後に、エポキシ変性シリコン化合物(A)、二酸化チタン(D)
及び分散剤(E)を配合することで作製される、

請求項5に記載の樹脂組成物。

[請求項22] エポキシ変性シリコン化合物(A)、イソシアヌレート基及びカ
ルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂(B)、リン系硬化促進剤(

C)、二酸化チタン(D)、分散剤(E)、エポキシ環を一以上有する上記(A)以外の単量体エポキシ化合物(F)、及び脂環式エポキシ樹脂(G)を含有し、

前記分枝型イミド樹脂(B)が、前記エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記分枝型イミド樹脂(B)、前記単量体エポキシ化合物(F)、及び前記脂環式エポキシ樹脂(G)の合計100質量部に対して、10～80質量部含まれる、樹脂組成物。

[請求項23] 前記二酸化チタン(D)が、前記エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記分枝型イミド樹脂(B)、前記単量体エポキシ化合物(F)、及び前記脂環式エポキシ樹脂(G)の合計100質量部に対して、10～400質量部含まれる、請求項22に記載の樹脂組成物。

[請求項24] 前記分散剤(E)が、前記エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記分枝型イミド樹脂(B)、前記単量体エポキシ化合物(F)、及び前記脂環式エポキシ樹脂(G)の合計100質量部に対して、0.05～5質量部含まれる、請求項22又は23に記載の樹脂組成物。

[請求項25] エポキシ変性シリコン化合物(A)、イソシアヌレート基及びカルボキシル基を有する分岐型イミド樹脂(B)、二酸化チタン(D)、分散剤(E)及びエポキシ環を一以上有する、前記(A)以外の単量体エポキシ化合物(F)を含有する、樹脂組成物。

[請求項26] 請求項1～25のいずれか一項に記載の樹脂組成物からなる、LED実装用プリント配線板用の樹脂組成物。

[請求項27] 請求項1～25のいずれか一項に記載の樹脂組成物を基材に含浸又は塗布してなる、プリプレグ。

- [請求項28] 請求項27に記載のプリプレグを少なくとも1枚以上重ね、その片面もしくは両面に金属箔を配して積層成形して得られる、金属箔張積層板。
- [請求項29] 絶縁層と、前記絶縁層の表面に形成された導体層とを含むプリント配線板であって、前記絶縁層が請求項1～25のいずれか一項に記載の樹脂組成物を含む、プリント配線板。