

明 細 書

発明の名称：

樹脂組成物、プリプレグ、積層板、及びプリント配線板

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、プリプレグ、積層板、及びプリント配線板に関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器や通信機、パーソナルコンピューター等に広く用いられている半導体の高集積化・高機能化・高密度実装化は益々加速している。それに伴い、半導体パッケージに使用されている積層板に対しての要求も多岐にわたり、従来からの要求特性である耐熱性、耐薬品性、難燃性や信頼性に加え、低熱膨張、高いガラス転移温度、高弾性等様々な特性が要求されている。

[0003] 近年では特に低熱膨張の積層板が強く求められている。従来、半導体素子と半導体プラスチックパッケージ用プリント配線板の熱膨張率の差が大きく、製造工程において熱衝撃が加わったとき等に、これらの熱膨張差により半導体プラスチックパッケージに反りが発生し、半導体素子と半導体プラスチックパッケージ用プリント配線板の間や、半導体プラスチックパッケージと実装されるプリント配線板の間で、接続不良が生じてしまうからである。

[0004] 積層板の面方向の熱膨張率を小さくする方法として、無機フィラーを充填させる方法が考えられる。しかし、高いガラス転移温度を保持するためには多官能の樹脂を配合する必要があるが、多官能の樹脂は粘度が高く無機フィラーを多く配合することが困難であった。また、他の手法としては、ゴム弾性のある有機フィラーを、エポキシ樹脂を含むワニスに配合させることが知られている（特許文献１～６）。その他にも、無機フィラーの充填量を維持し、ゴム弾性成分を配合することと同じ効果を得ようとする手法として、シリコン樹脂を配合することが知られている（特許文献７～９）。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特許第3 1 7 3 3 3 2号公報
特許文献2：特開平8－4 8 0 0 1号公報
特許文献3：特開2 0 0 0－1 5 8 5 8 9号公報
特許文献4：特開2 0 0 3－2 4 6 8 4 9号公報
特許文献5：特開2 0 0 6－1 4 3 9 7 3号公報
特許文献6：特開2 0 0 9－0 3 5 7 2 8号公報
特許文献7：特開平1 0－4 5 8 7 2号公報
特許文献8：特開2 0 1 0－2 4 2 6 5号公報
特許文献9：国際公開第2 0 1 2／9 9 1 3 2号パンフレット

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、上述した従来技術では、未だ改善すべき点がある。例えば、特許文献1～6に関して、ワニスを使用した場合、有機フィラーを配合させることにより、無機フィラーの充填量が限定される問題がある。さらには、ゴム弾性のある有機フィラーは燃焼性が高いため、積層板の難燃化のために臭素系難燃剤を使用することがあり環境に負荷を与えるといった問題もある。
- [0007] また、特許文献7～9に関して、一般的なシリコーン樹脂はアルカリに対する耐薬品性に劣るという問題がある。例えば、アルカリに対する耐薬品性が劣ると、メカニカルドリルやレーザードリル等による加工後のスミア（樹脂残渣等）を除去するためのデスミア工程で用いる薬液を汚染するという問題がある。また、プリント配線板の生産安定性に劣るという問題や、薬液の建浴頻度が増えるため製造コストが増大するという問題もある。
- [0008] また、一般的なシリコーン樹脂を使用することで生じる更なる問題としては、耐熱性の低下が挙げられる。近年の環境問題への関心の高まりから、シ

リコーンチップ、プラスチックパッケージ用プリント配線板、マザーボード等を接続するリフロー工程において、無鉛半田が用いられるが、無鉛半田は高温での処理が必要である。そのため、耐熱性が低下すると、リフロー工程において、プリント配線板のプリプレグ間やプリプレグ、銅箔間でのデラミネーション等が発生するという問題がある。さらに、環境への配慮等から、ハロゲン化合物やリン化合物等を使用せずとも、所望の物性が得られることが望まれている。

[0009] 本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、ハロゲン化合物やリン化合物を使用せずとも、耐熱性が高く、面方向の熱膨張率が低く、かつ耐薬品性に優れる積層板を実現可能な樹脂組成物、さらにはこれを用いたプリプレグ、積層板、金属箔張積層板、及びプリント配線板を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

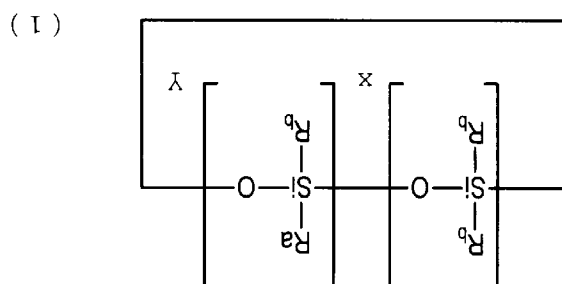
[0010] 本発明者らは、環状エポキシ変性シリコーン化合物、シアン酸エステル化合物及び／又はフェノール樹脂、並びに無機充填材を配合した樹脂組成物、もしくは、環状エポキシ変性シリコーン化合物、BT樹脂及び無機充填材を配合した樹脂組成物から得られる積層板が、ハロゲン化合物やリン化合物を使用せずとも、耐熱性が高く、面方向の熱膨張率が低く、かつ耐薬品性に優れていることを見出し、本発明に到達した。

[0011] すなわち、本発明は、以下のとおりである。

[1]

式(1)で示される環状エポキシ変性シリコーン化合物(A)、シアン酸エステル化合物(B)及び／又はフェノール樹脂(C)、並びに無機充填材(D)を含有する、樹脂組成物。

[化1]



(上記式(1)中、 R_a は、各々独立に、エポキシ基を有する有機基を示し、 R_b は、各々独立に、置換又は非置換の1価の炭化水素基を示す。 x は0～2の整数を示し、 y は1～6の整数を示す。また、 z が付されたシロキサン単位と y が付されたシロキサン単位とは、互いにランダムに配列される。)

[2]

式(1)で示される環状エポキシ変性シリコン化合物(A)のエポキシ基が、3, 4-エポキシシクロヘキシルエチル基である、[1]に記載の樹脂組成物。

[3]

前記シアノ酸エステル化合物(B)のシアネート基及び／又は前記フェノール樹脂(C)の水酸基の当量と、前記樹脂組成物に含有されるエポキシ化合物が有するエポキシ基の当量の比が、シアノ酸エステル化合物(B)のシアネート基及び／又は前記フェノール樹脂(C)の水酸基の当量を分子とし、エポキシ当量を分母とした場合に、0.3～0.7である、[1]又は[2]に記載の樹脂組成物。

[4]

非ハロゲンエポキシ樹脂(E)を更に含有する、[1]～[3]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

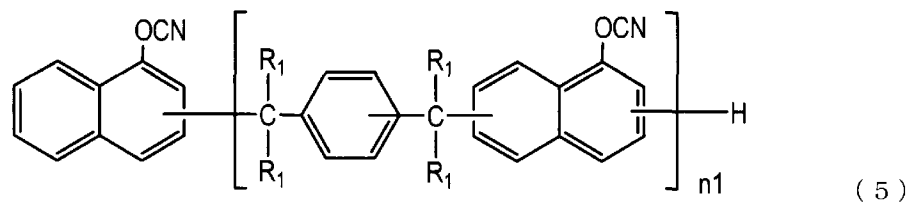
[5]

スレイミド化合物(F)を更に含有する、[1]～[4]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[6]

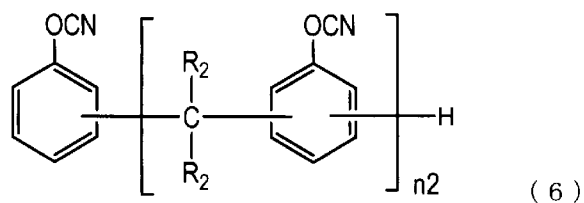
前記シアン酸エステル化合物（B）が、式（5）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物及び／又は式（6）で示されるノボラック型シアン酸エステル化合物である、〔1〕～〔5〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化2]



（式中、 R_1 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_1 は1以上の整数を示す。）

[化3]

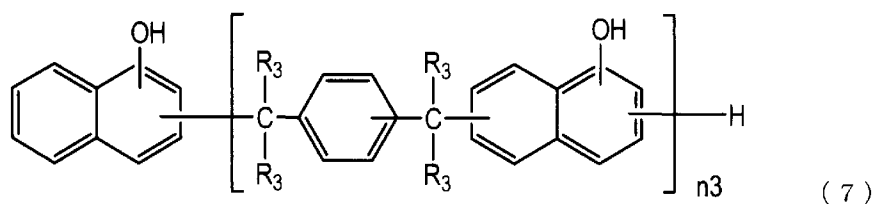


（式中、 R_2 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_2 は1以上の整数を示す。）

〔7〕

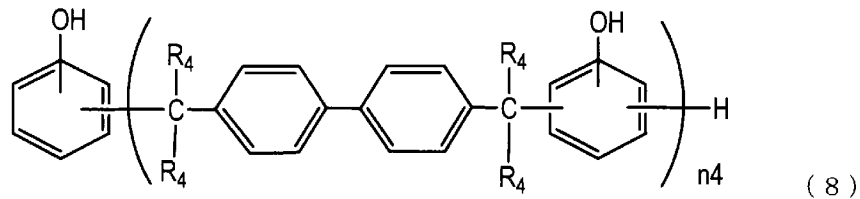
前記フェノール樹脂（C）が、式（7）で示されるナフトールアラルキル型フェノール樹脂及び／又は式（8）で示されるビフェニルアラルキル型フェノール樹脂である、〔1〕～〔6〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化4]



(式中、 R_3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_3 は1以上の整数を示す。)

[化5]

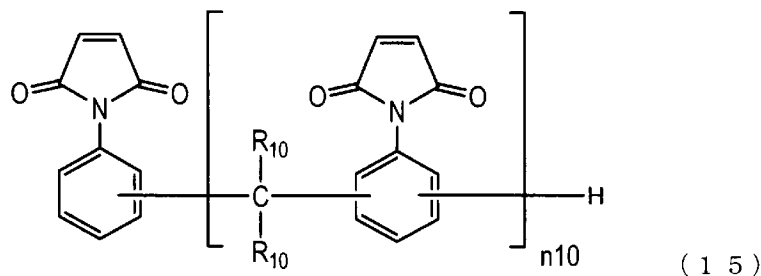


(式中、 R_4 は、水素原子又はメチル基を示し、 n_4 は1以上の整数を示す。)

[8]

前記マレイミド化合物 (F) が、式 (15) で示される化合物である、[5] ~ [7] のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化6]



(式中、 R_{10} は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_{10} は1以上の整数を示す。)

[9]

前記環状エポキシ変性シリコン化合物 (A) の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物 (A)、前記シアン酸エステル化合物 (B)、前記フェノール樹脂 (C)、前記非ハロゲンエポキシ樹脂 (E)、及び前記マレイミド化合物 (F) の総量 100 質量部に対し、5 ~ 50 質量部である、[5] ~ [8] のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[1 0]

前記シアン酸エステル化合物 (B) 及び前記フェノール樹脂 (C) の総合

有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、前記シアン酸エステル化合物（Ｂ）、前記フェノール樹脂（Ｃ）、前記非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）、及び前記マレイミド化合物（Ｆ）の総量１００質量部に対し、１０～５０質量部である、〔５〕～〔９〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔１１〕

前記無機充填材（Ｄ）の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、前記シアン酸エステル化合物（Ｂ）、前記フェノール樹脂（Ｃ）、前記非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）、及び前記マレイミド化合物（Ｆ）の総量１００質量部対し、５０～５００質量部である、〔５〕～〔１０〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

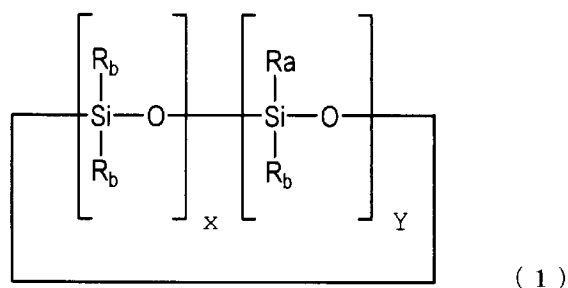
〔１２〕

前記マレイミド化合物（Ｆ）の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、前記シアン酸エステル化合物（Ｂ）、前記フェノール樹脂（Ｃ）、前記非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）、及び前記マレイミド化合物（Ｆ）の合計１００質量部に対し、５～５０質量部である、〔５〕～〔１１〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔１３〕

式（１）で示される環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物をプレポリマー化してなるＢＴ樹脂（Ｇ）、及び無機充填材（Ｄ）を含有する、樹脂組成物。

〔化７〕



（上記式（１）中、 R_a は、各々独立に、エポキシ基を有する有機基を示し、

R₆は、各々独立に、置換又は非置換の1価の炭化水素基を示す。xは0～2の整数を示し、yは1～6の整数を示す。また、xが付されたシロキサン単位とyが付されたシロキサン単位とは、互いにランダムに配列される。)

[14]

前記BT樹脂(G)に用いられるシアン酸エステル化合物が有するシアネート基の当量と、前記樹脂組成物に含有されるエポキシ化合物が有するエポキシ基の当量の比が、シアネート基当量を分子とし、エポキシ当量を分母とした場合に、0.3～0.7である、[13]に記載の樹脂組成物。

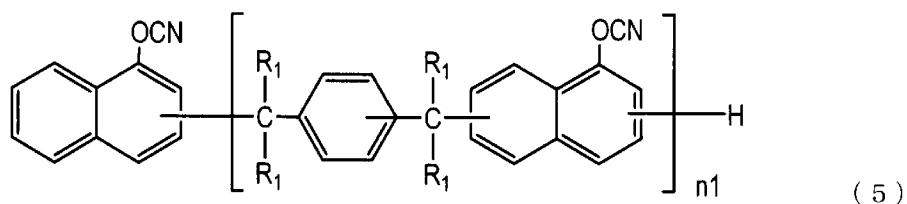
[15]

非ハロゲンエポキシ樹脂(E)を更に含有する、[13]又は[14]に記載の樹脂組成物。

[16]

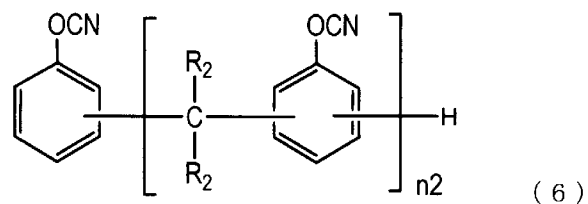
前記BT樹脂(G)に使用されるシアン酸エステル化合物(B)が、式(5)で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物及び／又は式(6)で示されるノボラック型シアン酸エステル化合物である、[13]～[15]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化8]



(式中、R₁は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、n₁は1以上の整数を示す。)

[化9]

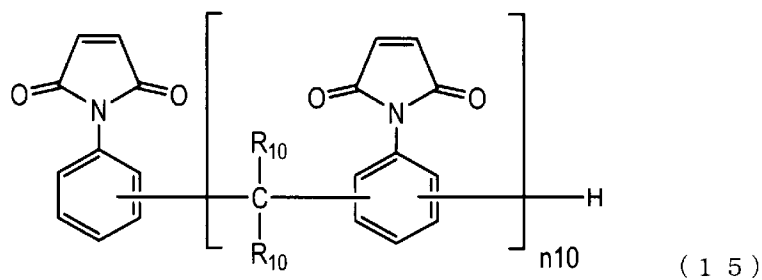


(式中、 R_2 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_2 は1以上の整数を示す。)

[17]

前記BT樹脂(G)に用いられるマレイミド化合物が、式(15)で示される化合物である、[13]～[16]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化10]



(式中、 R_{10} は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_{10} は1以上の整数を示す。)

[18]

前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、5～50質量部である、[15]～[17]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[19]

前記BT樹脂(G)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、20～80質量部である、[15]～[18]のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[20]

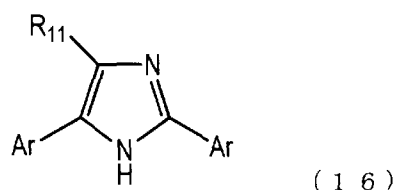
前記無機充填材(D)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、50～500質量部である、[15]～[19]

のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔21〕

式(16)で示されるイミダゾール化合物(H)を更に含む、〔1〕～〔20〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔化11〕



(式中、Arは、各々独立に、フェニル基、ナフタレン基、ビフェニル基、アントラセン基、又はこれらの水酸基変性基からなる群より選ばれるいずれかを示し、R₁₁は水素原子、アルキル基、アルキル基の水酸基変性基、又はアリール基を示す。)

〔22〕

前記イミダゾール化合物(H)が、2, 4, 5-トリフェニルイミダゾールである、〔21〕に記載の樹脂組成物。

〔23〕

前記無機充填材(D)が、ベーマイト及び／又はシリカ類である、〔1〕～〔22〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔24〕

前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)が、フェノールフェニルアラルキルノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、アントラキノン型エポキシ樹脂、及びポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂からなる群より選ばれる1種以上である、〔4〕～〔12〕及び〔15〕～〔23〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

〔25〕

〔1〕～〔24〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物と、

前記樹脂組成物が含浸又は塗布された、基材と、
を含む、プリプレグ。

〔26〕

前記基材が、E ガラスクロス、T ガラスクロス、S ガラスクロス、Q ガラスクロス、有機繊維、及び有機フィルムからなる群より選ばれる1種以上である、〔25〕に記載のプリプレグ。

〔27〕

〔25〕又は〔26〕に記載のプリプレグを含む、積層板。

〔28〕

〔25〕又は〔26〕に記載のプリプレグと、
前記プリプレグ上に積層された金属箔と、
を含む、金属箔張積層板。

〔29〕

〔1〕～〔29〕のいずれか一項に記載の樹脂組成物を含む絶縁層と、
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。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、ハロゲン化合物やリン化合物を使用せずとも、耐熱性が高く、面方向の熱膨張率が低く、かつ耐薬品性に優れる積層板を実現可能な樹脂組成物、さらにはこれを用いたプリプレグ、積層板、金属箔張積層板、及びプリント配線板を提供することができる。

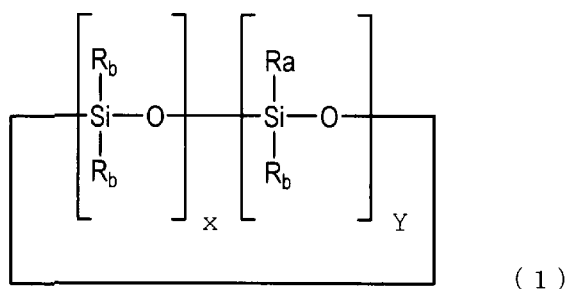
発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明を実施するための形態（以下、単に「本実施形態」という。）について詳細に説明する。以下の本実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明を以下の内容に限定する趣旨ではない。本発明は、その要旨の範囲内で適宜に変形して実施できる。

[0014] 本実施形態の一態様の樹脂組成物は、式（1）で示される環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、シアン酸エステル化合物（B）及び／又はフェ

ノール樹脂（C）、並びに無機充填材（D）を含有する、樹脂組成物である。

[化12]



（上記式（1）中、 R_a は、各々独立に、エポキシ基を有する有機基を示し、 R_b は、各々独立に、置換又は非置換の1価の炭化水素基を示す。 x は0～2の整数を示し、 y は1～6の整数を示す。また、 x が付されたシロキサン単位と y が付されたシロキサン単位とは、互いにランダムに配列される。）

[0015] また、本実施形態の別の態様の樹脂組成物は、上記式（1）で示される環状エポキシ変性シリコーン化合物（A）、シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物をプレポリマー化してなるBT樹脂（BT樹脂）（G）、及び無機充填材（D）を含有する、樹脂組成物である。

[0016] 上記した各態様の樹脂組成物は、ハロゲン化合物やリン化合物を使用せずとも、耐熱性が高く、面方向の熱膨張率が低く、かつ耐薬品性に優れた積層板を実現することができる。さらには、従来のプリプレグ等を硬化させた積層体等と同程度の難燃性を維持することも十分に期待できる。

[0017] 以下、各態様の成分について説明する。なお、特に断りがない限り、以下の各成分について説明する内容は、上記した各態様に共通するものとする。

[0018] （環状エポキシ変性シリコーン化合物（A））

環状エポキシ変性シリコーン化合物（A）は、上記式（1）で示される構造を有するものである。すなわち、（A）成分は、主骨格に環状シロキサン結合（Si—O—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又は非置換の脂肪族炭化水素基が導入されたものである。

[0019] 環状エポキシ変性シリコーン化合物（A）を、シアン酸エステル化合物（

B) 及び/又はフェノール樹脂 (C)、並びに無機充填材 (D) とともに用いることで、低熱膨張性の積層板を得ることができる。また、環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A) を、シアノ酸エスナル化合物とスレイミド化合物をゾレポリマー化してなるBT樹脂 (G) 及び無機充填材 (D) とともに用いることで、より低熱膨張性の積層板が得られる傾向にある。

[0020] 上記の環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A) は、上記式 (1) で示される繰り返し単位を有する環状のエポキシ変性のシリコーン樹脂である。環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A) としては、1分子中に少なくとも1個以上のエポキシ基を有し、かつ、アルコキシ基を含有しないシリコーン化合物であることが好ましい。作業性に優れる観点から、環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A) は、常温で液状であることが好ましい。

[0021] 上記式 (1) 中、 R_a で示されるエポキシ基を有する有機基の具体例として、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る。有機基の炭素数は、2~20であることが好ましく、2~12であることがより好ましい。より具体的には、例えば、グリシドプロピル基、3, 4-エポキシシクロヘキシルエチ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、硬化収縮が小さくなる上に、シロキサン結合へのアルカリ浸食を防ぐ役割が大きくなることから、3, 4-エポキシシクロヘキシルエチル基を有する有機基であることが好ましい。

[0022] 上記式 (1) 中、 R_b で示される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る。炭化水素基の炭素数は、1~20であることが好ましく、1~8であることがより好ましい。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 (但し、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、アミノ基、フェニル基等で置換された基等が挙げられるが、これらに特に限定されない。これらの中でも、 R_b としては、メチル基、エチル基、プロピル基、フェニル基が好ましく、メチ

ル基、フェニル基がより好ましい。

[0023] なお、上記式（１）で示される繰り返し単位を有するシリコン化合物は、 x が０であることが好ましく、 x が０及び y が４～６であることがより好ましい。シリコン化合物の繰り返し単位を上記範囲にすることで、シロキサン結合の周囲にエポキシ基が配置され易くなり、シロキサン結合へのアルカリ浸食を防ぐ効果が一層大きくなる。その結果、耐薬品性が一層向上する（但し、本実施形態の作用はこれらに限定されない。）。

[0024] エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）の分子量としては、特に限定されないが、数平均分子量（ M_n ）として、１００～５０００であることが好ましく、その中でもハンドリング性の観点から３００～２０００であることがより好ましい。数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）によって、測定することができる。

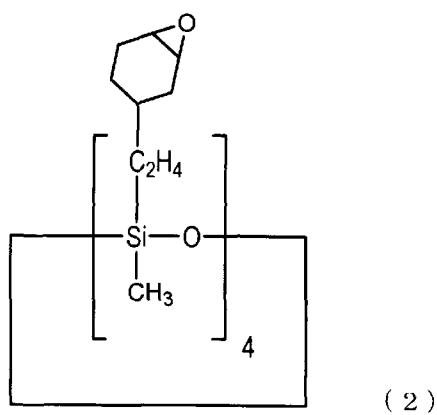
[0025] エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）のエポキシ当量としては、５０～２０００ $\text{g}/\text{eq.}$ であることが好ましく、その中でもハンドリング性の観点から１００～５００ $\text{g}/\text{eq.}$ であることがより好ましい。エポキシ当量は、後述する実施例に記載の方法に準じて測定することができる。

[0026] エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）の２５℃における粘度としては、５～５０００ mm^2/S であることが好ましく、ハンドリング性の観点から５～３０００ mm^2/S であることがより好ましい。粘度は、JIS Z 8803に準じてＢ型粘度計を用いて、測定することができる。

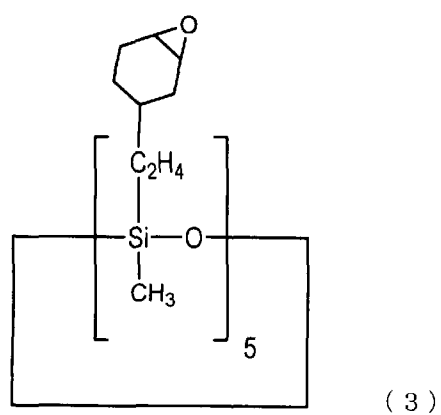
[0027] エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）は、公知の方法により製造することができる。また、エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）は、市販品を用いることもできる。例えば、商品名「X-40-2678」、「X-40-2720」、「X-40-2672」及び下記式（２）で示されるエポキシ変性シリコン化合物として、商品名「X-40-2670」を、下記式（３）で示されるエポキシ変性シリコン化合物として商品名「X-40-2705」を、下記式（４）で示されるエポキシ変性シリコン化合物として商品名「X-40-2701」（いずれも、信越化学工業社製）等を、それぞれ

好適に用いることができる。

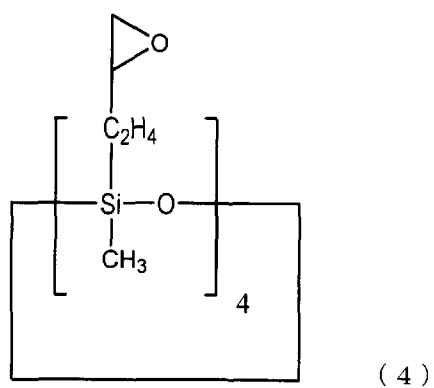
[0028] [化13]



[0029] [化14]



[0030] [化15]



[0031] 本実施形態の樹脂組成物中における環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A) の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコーン化合物 (A)、シアン酸エステル化合物 (B)、フェノール樹脂 (C)、並びに任

意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（E）及びマレイミド化合物（F）の総量100質量部に対し、5～50質量部であることが好ましく、より好ましくは10～40質量部である。環状エポキシ変性シリコン化合物（A）の含有量を上記範囲内とすることで、ガラス転移温度、耐熱性、及び低熱膨張性が一層向上する。

[0032] また、樹脂組成物が、BT樹脂（G）を含む態様においては、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、BT樹脂（G）、及び任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の総量100質量部に対し、5～50質量部であることが好ましく、より好ましくは10～40質量部である。環状エポキシ変性シリコン化合物（A）の含有量を上記範囲内とすることで、ガラス転移温度、耐熱性、及び低熱膨張性が一層向上する。

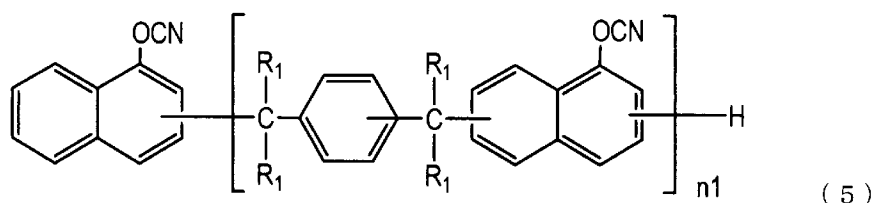
[0033] シアン酸エステル化合物（B）は、耐薬品性、接着性等に優れるといった特性を有するため、本実施形態の樹脂組成物の成分として使用することができる。

[0034] シアン酸エステル化合物（B）としては、例えば、式（5）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、式（6）で示されるノボラック型シアン酸エステル、ビフェニルアラルキル型シアン酸エステル、ビス（3，5－ジメチル4－シアナトフェニル）メタン、ビス（4－シアナトフェニル）メタン、1，3－ジシアナトベンゼン、1，4－ジシアナトベンゼン、1，3，5－トリシアナトベンゼン、1，3－ジシアナトナフタレン、1，4－ジシアナトナフタレン、1，6－ジシアナトナフタレン、1，8－ジシアナトナフタレン、2，6－ジシアナトナフタレン、2，7－ジシアナトナフタレン、1，3，6－トリシアナトナフタレン、4，4’－ジシアナトビフェニル、ビス（4－シアナトフェニル）エーテル、ビス（4－シアナトフェニル）チオエーテル、ビス（4－シアナトフェニル）スルホン、2，2’－ビス（4－シアナトフェニル）プロパン等が挙げられる。

[0035] これらの中でも、式（5）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、式（6）で示されるノボラック型シアン酸エステル、ビフェ

ニルアラルキル型シアン酸エステルが好ましく、式（５）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、式（６）で示されるノボラック型シアン酸エステルがより好ましい。これらを用いることで、難燃性、硬化性、及び低熱膨張性が一層向上する。

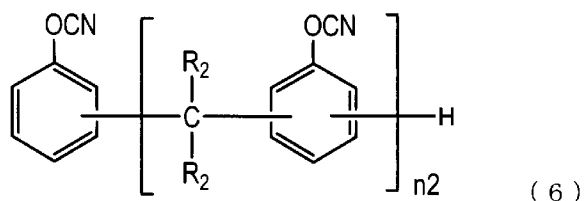
[0036] [化16]



（式中、 R_1 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_1 は1以上の整数を示す。）

[0037] R_1 としては、水素原子であることが好ましい。 n_1 の上限値は、10以下であることが好ましく、6以下であることがより好ましい。

[0038] [化17]



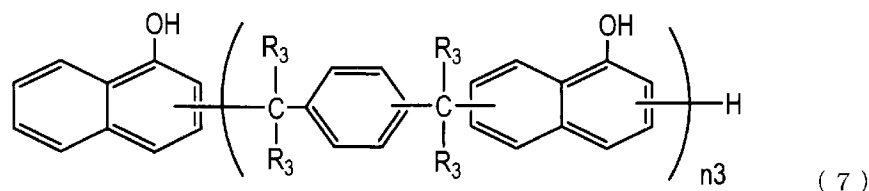
（式中、 R_2 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_2 は1以上の整数を示す。）

[0039] R_2 としては、水素原子が好ましい。 n_2 の上限値は、10以下であることが好ましく、7以下であることがより好ましい。

[0040] シアン酸エステル化合物（B）の製造方法は、特に限定されず、シアン酸エステルの製造方法として用いられる方法を採用することができる。シアン酸エステル化合物（B）の製造方法について例示すると、式（7）で示されるナフトールアラルキル型フェノール樹脂と、ハロゲン化シアンを、不活性有機溶媒中で、塩基性化合物存在下で反応させる方法等が挙げられる。また、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂と基性化合物の塩を水溶液中に形

成させ、そこでハロゲン化シアンとの2相系界面反応を行い、シアン酸エステル化合物（B）を得る方法等も挙げられる。

[0041] [化18]



（式中、 R_3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_3 は1以上の整数を示す。）

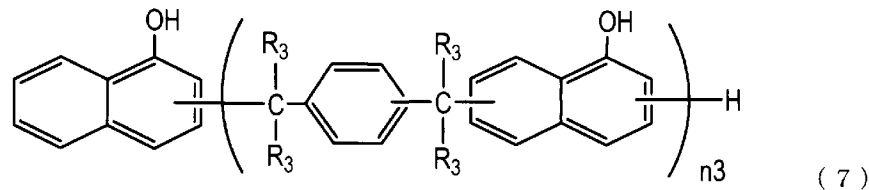
[0042] また、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物は、 α -ナフトールあるいは β -ナフトール等のナフトール類とp-キシリレングリコール、 α, α' -ジメトキシ-p-キシレン、1,4-ジ（2-ヒドロキシ-2-プロピル）ベンゼン等との反応により得られるナフトールアラルキル樹脂とシアン酸とを縮合させて得られるものから選択することができる。

[0043] フェノール樹脂（C）としては、1分子中にフェノール性水酸基を2個以上有する樹脂であればよく、例えば、公知のものを適宜用いることもでき、その種類は特に限定されない。

[0044] フェノール樹脂（C）の具体例としては、例えば、クレゾールノボラック型フェノール樹脂、フェノールノボラック樹脂、アルキルフェノールノボラック樹脂、ビスフェノールA型ノボラック樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、ザイロック型フェノール樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、ポリビニルフェノール類、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、ナフタレン型フェノール樹脂、アミノトリアジンノボラック型フェノール樹脂等が挙げられるが、これらに特に限定されない。これらは、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中でも、吸水性及び耐熱性の観点から、クレゾールノボラック型フェノール樹脂、アミノトリアジンノボラック型フェノール樹脂、ナフタレン型フェノール樹脂、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂が好まし

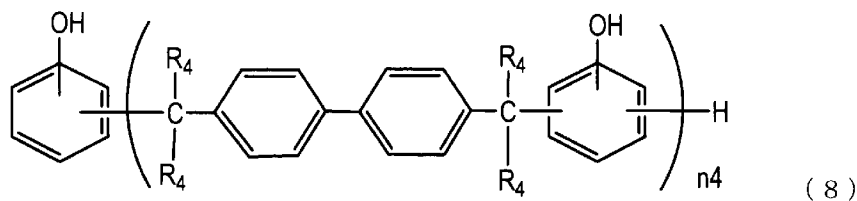
い。また、耐燃性及びドリル加工性の観点から、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂が好ましく、クレゾールノボラック型フェノール化合物、下記式（７）で示されるナフトールアラルキル型フェノール樹脂、下記式（８）で示されるビフェニルアラルキル型フェノール樹脂がより好ましい。

[0045] [化19]



（式中、 R_3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_3 は１以上の整数（好ましくは１～１０の整数）を示す。）

[0046] [化20]



（式中、 R_4 は水素原子又はメチル基を示し、 n_4 は１以上の整数（好ましくは１～１０の整数）を示す。）

[0047] シアン酸エステル化合物（Ｂ）のシアネート基及び／又は前記フェノール樹脂（Ｃ）の水酸基の当量と、樹脂組成物に含有されるエポキシ化合物が有するエポキシ基の当量の比が、シアン酸エステル化合物（Ｂ）のシアネート基及び／又は前記フェノール樹脂（Ｃ）の水酸基の当量を分子とし、エポキシ当量を分母とした場合に、０．３～０．７であることが好ましい。

[0048] ここで、本実施形態における当量の比とは、本実施形態の樹脂組成物における樹脂固形分を１００質量部とした場合の環状エポキシ変性シリコーン化合物（Ａ）や非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）等のエポキシ化合物の当量と、シアン酸エステル化合物（Ｂ）及び／又はフェノール樹脂の当量の比であり、本実施形態の樹脂組成物における樹脂固形分を１００質量部とした場合の

環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）や非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）等の含有量を、それぞれのエポキシ化合物が有する固有のエポキシ当量で除した値の総数を分母とし、樹脂組成物における樹脂固形分を１００質量部とした場合のシアン酸エステル化合物（Ｂ）の含有量をそのシアン酸エステル化合物（Ｂ）が有する固有のシアネート当量で除した値及び／又はフェノール樹脂（Ｃ）の含有量を、フェノール樹脂（Ｃ）が有する固有の水酸基当量で除した値を分子として算出される。

[0049] シアン酸エステル化合物（Ｂ）のシアネート基数と樹脂組成物中におけるエポキシ化合物のエポキシ基数の比（ CN/Ep ）が上記範囲内にあると、耐熱性、難燃性、及び吸水率が一層向上する。フェノール樹脂（Ｃ）のフェノール基数とエポキシ樹脂のエポキシ基数の比（ OH/Ep ）が上記範囲内にあると、より高いガラス転移温度が得られるとともに、難燃性が一層向上する。

[0050] 本実施形態の樹脂組成物におけるシアン酸エステル化合物（Ｂ）及びフェノール樹脂（Ｃ）の総含有量は、環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、シアン酸エステル化合物（Ｂ）、フェノール樹脂（Ｃ）、並びに任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）及びマレイミド化合物（Ｆ）の総量１００質量部に対し、１０～５０質量部であることが好ましく、より好ましくは２０～４０質量部である。シアン酸エステル化合物（Ｂ）及びフェノール樹脂（Ｃ）の総含有量を、上記範囲内とすることで、硬化度、難燃性、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率を一層向上させることができる。

[0051] 無機充填材（Ｄ）は、通常用いられるものであればよく、特に限定されない。無機充填材（Ｄ）としては、例えば、天然シリカ、溶融シリカ、アモルファスシリカ、中空シリカ等のシリカ類；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）、ベーマイト、水酸化マグネシウム等の金属水和物；酸化モリブデン、モリブデン酸亜鉛、無機酸化物をコートしたモリブデン酸化合物等の

モリブデン化合物；ホウ酸亜鉛、錫酸亜鉛等の亜鉛化合物；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、ガラス短繊維（E ガラスやD ガラス等のガラス微粉末類）、中空ガラス、球状ガラス等が挙げられる。これらは、1 種単独で用いてもよいし、2 種以上を併用してもよい。

[0052] これらの中でも、熱膨張率及び耐燃性の観点から、シリカ類、ベーマイト、水酸化マグネシウム、アルミナ、タルクが好ましく、ベーマイト、シリカ類がより好ましい。また、ドリル加工性の観点から、モリブデン化合物、無機酸化物をコートしたモリブデン酸化合物が好ましい。

[0053] 無機充填材（D）の平均粒子径（ D_{50} ）は特に限定されないが、分散性の観点から、0.2～5 μm であることが好ましい。ここで平均粒子径（ D_{50} ）とは、メジアン径（メディアン径）であり、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の個数と小さい側の個数が全粉体のその50%を占めるときの粒子径である。無機充填材（D）の平均粒子径（ D_{50} ）は、湿式レーザー回折・散乱法により測定される。

[0054] 本実施形態の樹脂組成物における無機充填材（D）の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、シアン酸エステル化合物（B）、フェノール樹脂（C）、並びに任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（E）及びマレイミド化合物（F）の総量100質量部に対し、50～500質量部であることが好ましく、より好ましくは80～300質量部である。無機充填材（D）の含有量を上記範囲内とすることで、難燃性、成形性、及びドリル加工性が一層向上する。

[0055] また、本実施形態の樹脂組成物が、BT樹脂（G）を含む態様においては、無機充填材（D）の含有量が、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、BT樹脂（G）、及び任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の総量100質量部に対し、50～500質量部であることが好ましく、より好ましくは80～300質量部である。無機充填材（D）の含有量を上記範囲内とすることで、難燃性、成形性、及びドリル加工性が一層向上

する。

[0056] 樹脂組成物中の無機充填材（D）の分散性や、樹脂成分と、無機充填材（D）やガラスクロスとの接着強度を一層向上させるために、シランカップリング剤や湿潤分散剤等の他の添加剤を、無機充填材（D）と併用することも可能である。

[0057] シランカップリング剤としては、一般に無機物の表面処理に使用されているシランカップリング剤であれば、特に限定されるものではない。シランカップリング剤の具体例としては、例えば、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノシラン系カップリング剤； γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシシラン系カップリング剤； γ -メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のビニルシラン系カップリング剤；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ラン塩酸塩等のカチオニックシラン系カップリング剤；フェニルシラン系カップリング剤等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0058] 湿潤分散剤としては、塗料用途等に使用されている分散安定剤であれば、特に限定されるものではない。湿潤分散剤の具体例としては、例えば、ビックミー・ジャパン社製の商品名「Disperbyk-110」、「Disperbyk-111」、「Disperbyk-180」、「Disperbyk-161」、「BYK-W996」、「BYK-W9010」、「BYK-W903」等の湿潤分散剤が挙げられる。

[0059] 本実施形態の樹脂組成物は、耐熱性と耐薬品性を一層低くする観点から、非ハロゲンエポキシ樹脂（E）を更に含有することが好ましい。非ハロゲンエポキシ樹脂（E）としては、ハロゲン原子を分子構造に含まないエポキシ樹脂であればよく、特に限定されない。非ハロゲンエポキシ樹脂（E）としては、例えば、式（9）で示されるフェノールフェニルアラルキルノボラック型エポキシ樹脂、式（10）で示されるフェノールビフェニルアラルキル

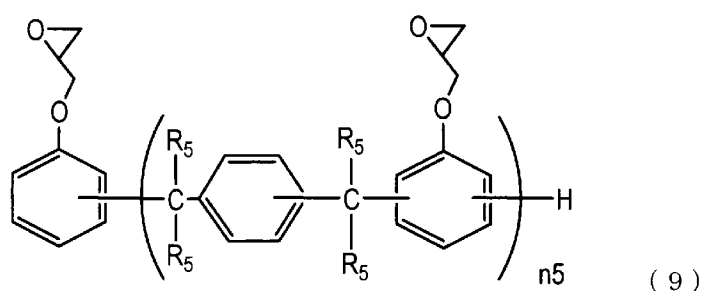
型エポキシ樹脂、式（１１）で示されるナフトールアラルキル型エポキシ樹脂等であることが好ましい。

[0060] また、熱膨張性を一層低くする観点から、式（１２）で示されるアントラキノ型エポキシ樹脂、式（１３）又は式（１４）で示されるポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、フェノール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、ビスフェノールＡノボラック型エポキシ樹脂、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、ナフタレン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ポリオール型エポキシ樹脂、グリシジルアミン、グリシジルエステル、及びブタジエン等の２重結合をエポキシ化した化合物、水酸基含有シリコン樹脂類とエピクロルヒドリンとの反応により得られる化合物等であることが好ましい。

[0061] 上記の中でも、特に難燃性を一層向上させる観点から、式（９）で示されるフェノールフェニルアラルキルノボラック型エポキシ樹脂、式（１０）で示されるビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、式（１１）で示されるナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、式（１２）で示されるアントラキノ型エポキシ樹脂、式（１３）又は式（１４）で示されるポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂等であることがより好ましい。

[0062] これらの非ハロゲン系エポキシ樹脂（Ｅ）は、１種単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

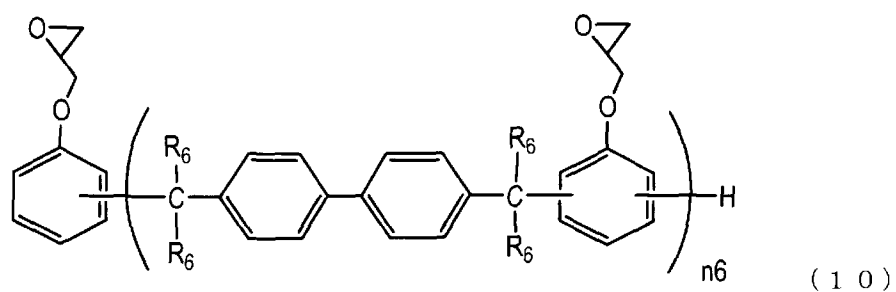
[0063] [化21]



（式中、 R_5 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_5 は１以上の

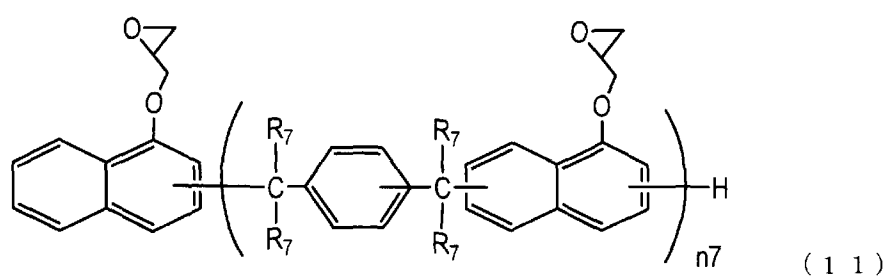
整数（好ましくは1～10の整数）を示す。）

[0064] [化22]



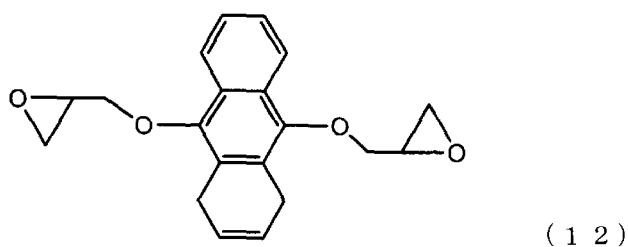
（式中、 R_6 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_6 は1以上の整数（好ましくは1～10の整数）を示す。）

[0065] [化23]

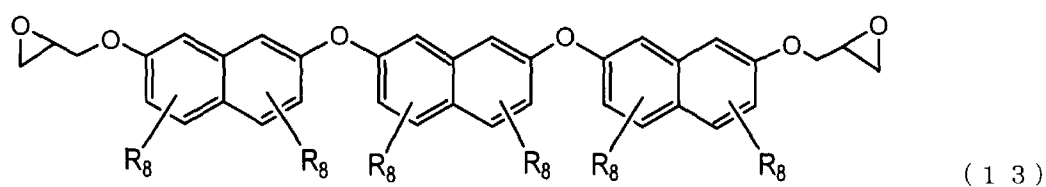


（式中、 R_7 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_7 は1以上の整数（好ましくは1～10の整数）を示す。）

[0066] [化24]

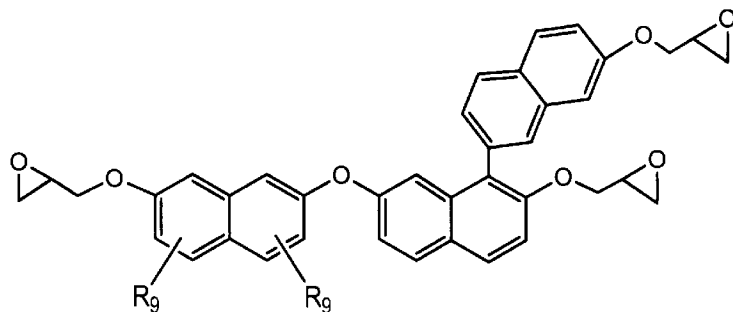


[0067] [化25]



(式中、 R_8 は、各々独立に、水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、又はアラルキル基を示す。)

[0068] [化26]



(式中、 R_9 は、各々独立に、水素原子、炭素原子数1～4のアルキル基、又はアラルキル基を表す。)

[0069] 上記式(13)又は式(14)で示される構造を有する非ハロゲンエポキシ樹脂(E)としては、市販品を用いることもできる。このような市販品としては、例えば、DIC社製、商品名「EXA-7311」、「EXA-7311-G3」、「EXA-7311-G4」、「EXA-7311-G4S」、「EXA-7311L」、「HP-6000」等が挙げられる。

[0070] 求められる用途により、リン含有エポキシ樹脂やブロム化エポキシ樹脂等も更に併用することができる。ブロム化エポキシ樹脂とは、1分子中に2個以上のエポキシ基を有する臭素原子含有化合物であればよく、特に限定されない。ブロム化エポキシ樹脂の具体例としては、例えば、ブロム化ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ブロム化フェノールノボラック型エポキシ樹脂等が挙げられる。

[0071] 本実施形態の樹脂組成物における非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、シアン酸エステル化合物(B)、フェノール樹脂(C)、非ハロゲンエポキシ樹脂(E)、及び任意成分として含有されるマレイミド化合物(F)の総量100質量部に対し、5～60質量部であることが好ましく、より好ましくは10～40質量部である。非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の含有量を上記範

囲内とすることで、硬化度、難燃性、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

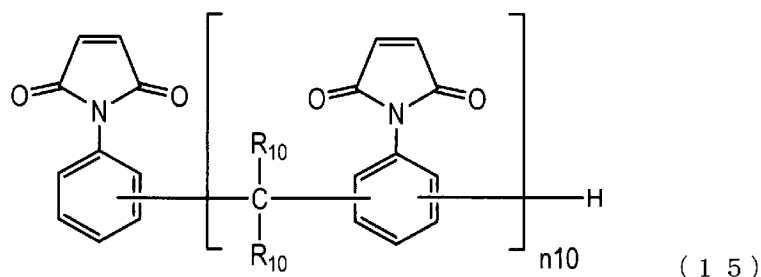
[0072] また、本実施形態の樹脂組成物が、BT樹脂（G）を含む態様においては、非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の含有量は、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、BT樹脂（G）、及び非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の総量100質量部に対し、5～60質量部であることが好ましく、より好ましくは10～40質量部である。非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の含有量を上記範囲内とすることで、硬化度、難燃性、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

[0073] 本実施形態の樹脂組成物は、耐熱性の観点から、マレイミド化合物（F）を更に含有することが好ましい。マレイミド化合物（F）としては、1分子中に1個以上のマレイミド基を有する化合物であればよく、特に限定されない。マレイミド化合物（F）の具体例としては、例えば、N-フェニルマレイミド、N-ヒドロキシフェニルマレイミド、ビス（4-マレイミドフェニル）メタン、2,2-ビス{4-（4-マレイミドフェノキシ）-フェニル}プロパン、ビス（3,5-ジメチル-4-マレイミドフェニル）メタン、ビス（3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル）メタン、ビス（3,5-ジエチル-4-マレイミドフェニル）メタン、式（15）で示されるマレイミド化合物、これらマレイミド化合物のプレポリマー、これらマレイミド化合物とアミン化合物とのプレポリマー等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0074] これらの中でも、耐熱性の観点から、ビス（4-マレイミドフェニル）メタン、2,2-ビス{4-（4-マレイミドフェノキシ）-フェニル}プロパン、ビス（3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル）メタン、式（15）で示されるマレイミド化合物が好ましく、式（15）で示されるマレイミド化合物がより好ましい。

[0075]

[化27]



(式中、 R_{10} は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_{10} は1以上の整数(好ましくは1～10の整数)を示す。)

[0076] 本実施形態の樹脂組成物におけるマレイミド化合物(F)の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、シアン酸エステル化合物(B)、フェノール樹脂(C)、非ハロゲンエポキシ樹脂(E)、及びマレイミド化合物(F)の総量100質量部に対し、5～50質量部であることが好ましく、より好ましくは10～40質量部である。マレイミド化合物(F)の含有量を上記範囲内とすることで、硬化度、難燃性、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

[0077] BT樹脂(G)とは、ビスマレイミドトリアジン樹脂であり、例えば、シアン酸エステル化合物及びマレイミド化合物を、無溶剤又はメチルエチルケトン、N-メチルピロドリン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、トルエン、キシレン等の有機溶剤に溶解して、加熱混合し、ポリマー化させたものである。

[0078] 用いるシアン酸エステル化合物は、特に限定されず、例えば、式(5)で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、式(6)で示されるノボラック型シアン酸エステル、ビフェニルアラルキル型シアン酸エステル、ビス(3,5-ジメチル4-シアナトフェニル)メタン、ビス(4-シアナトフェニル)メタン、1,3-ジシアナトベンゼン、1,4-ジシアナトベンゼン、1,3,5-トリシアナトベンゼン、1,3-ジシアナトナフタレン、1,4-ジシアナトナフタレン、1,6-ジシアナトナフタレン、1,8-ジシアナトナフタレン、2,6-ジシアナトナフタレン、2,7-

ージシアナトナフタレン、1, 3, 6-トリシアナトナフタレン、4, 4'-
ージシアナトビフェニル、ビス(4-シアナトフェニル)エーテル、ビス(4-
シアナトフェニル)チオエーテル、ビス(4-シアナトフェニル)スル
ホン、2, 2'-ビス(4-シアナトフェニル)プロパン等が挙げられる。

[0079] これらの中でも、式(5)で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エ
ステル化合物、式(6)で示されるノボラック型シアン酸エステル、ビフェ
ニルアラルキル型シアン酸エステルが、難燃性、硬化性、及び低熱膨張性の
観点から好ましく、式(5)で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エ
ステル化合物、式(6)で示されるノボラック型シアン酸エステルがより好
ましい。

[0080] マレイミド化合物としては、特に限定されないが、例えば、N-フェニル
マレイミド、N-ヒドロキシフェニルマレイミド、ビス(4-マレイミドフ
フェニル)メタン、2, 2'-ビス{4-(4-マレイミドフェノキシ)-フェ
ニル}プロパン、ビス(3, 5-ジメチル-4-マレイミドフェニル)メタ
ン、ビス(3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタン、ビ
ス(3, 5-ジエチル-4-マレイミドフェニル)メタン、式(15)で示
されるマレイミド化合物、これらマレイミド化合物のプレポリマー、もしくは
マレイミド化合物とアミン化合物のプレポリマー等が挙げられる。これら
は、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0081] これらの中でも、ビス(4-マレイミドフェニル)メタン、2, 2'-ビス
{4-(4-マレイミドフェノキシ)-フェニル}プロパン、ビス(3-エ
チル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタン、式(15)で示され
るマレイミド化合物が好ましく、式(15)に示されるマレイミド化合物が
より好ましい。

[0082] BT樹脂(G)におけるマレイミド化合物(F)の割合は、特に限定され
ないが、ガラス転移温度、難燃性、及び硬化性の観点から、BT樹脂(G)
の総量に対し、5~75質量%であることが好ましく、10~70質量%で
あることがより好ましい。

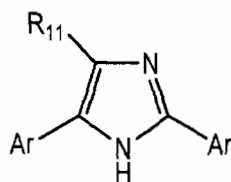
[0083] また、プレポリマーであるＢＴ樹脂（Ｇ）の数平均分子量は、特に限定されないが、ハンドリング性、ガラス転移温度、及び硬化性の観点から、１００～１０００００であることが好ましく、２００～５００００であることがより好ましく、３００～１００００であることが更に好ましい。数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーによって測定される。

[0084] ＢＴ樹脂（Ｇ）に用いられるシアン酸エステル化合物の含有量をそのシアン酸エステル化合物（Ｂ）が有する固有のシアネート当量で除した値を分子とし、本実施形態の樹脂組成物における樹脂固形分を１００質量部とした場合の環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）や非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）等の含有量をそれぞれのエポキシ化合物が有する固有のエポキシ当量で除した値の総数を分母とした当量の比が、０．３～２．０であることが好ましく、０．３～０．７であることがより好ましい。当量の比が上記範囲内にあると、耐熱性、耐薬品性、難燃性、及び吸水率が一層向上する。

[0085] 本実施形態の樹脂組成物におけるＢＴ樹脂（Ｇ）の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物（Ａ）、ＢＴ樹脂（Ｇ）、及び任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（Ｅ）の総量１００質量部に対し、２０～８０質量部であることが好ましく、より好ましくは３０～７０質量部である。ＢＴ樹脂（Ｇ）の含有量を上記範囲内とすることで、硬化度、難燃性、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

[0086] 本実施形態の樹脂組成物は、硬化促進剤として式（１６）で示されるイミダゾール化合物（Ｈ）を更に含むことが好ましい。このようなイミダゾール化合物（Ｈ）を更に含むことにより、硬化促進でき、硬化物のガラス転移温度を上げる作用を有する。

[0087] [化28]



(1 6)

(式(16)中、 A_r は、各々独立に、フェニル基、ナフタレン基、ビフェニル基、アントラセン基、又はこれらの水酸基変性物からなる群より選ばれるいずれかを示し、 R_{11} は水素原子、アルキル基、アルキル基の水酸基変性物、又はアリール基を示す。)

[0088] 式中の置換基 A_r としては、フェニル基、ナフタレン基、ビフェニル基、アントラセン基、これらの水酸基変性物が挙げられるが、これらの中でもフェニル基が好ましい。

式中の置換基 R_{11} としては、水素原子、アルキル基、アルキル基の水酸基変性物、フェニル基等のアリール基である。これらの中でも、 A_r 基、 R_{11} 基ともにフェニル基であることが好ましい。

[0089] イミダゾール化合物(H)としては、特に限定されないが、例えば、上記式(16)で示されるイミダゾール化合物や2-エチル-4-メチルイミダゾール等が挙げられる。

[0090] 式(16)の A_r は、各々独立に、フェニル基、ナフタレン基、ビフェニル基、アントラセン基又はその水酸基変性物である。これらの中でも、フェニル基が好ましい。

[0091] R_{11} は、水素原子、アルキル基又はその水酸基変性物、フェニル基等のアリール基である。このなかでも、 A_r 、 R_{11} ともにフェニル基であることが好ましい。

[0092] イミダゾール化合物(H)としては、特に限定されないが、例えば、2,4,5-トリフェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾールが好ましい。このようなイミダゾール化合物(H)を用いることにより、硬化性がより向上し、硬化物のガラス転移温度がより向上する傾向にある。

[0093] 本実施形態の樹脂組成物におけるイミダゾール化合物(H)の含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、シアン酸エステル化合物(B)、フェノール樹脂(C)、並びに任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂(E)及びマレイミド化合物(F)の総量100質量部に対し、0.01~10質量部であることが好ましく、より好ま

しくは0.1～5質量部である。イミダゾール化合物（H）の含有量を上記範囲内とすることで、硬化度、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

[0094] また、本実施形態の樹脂組成物が、BT樹脂（G）を含む態様においては、イミダゾール化合物（H）の含有量は、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、BT樹脂（G）、及び任意成分として含有される非ハロゲンエポキシ樹脂（E）の総量100質量部に対し、0.01～10質量部であることが好ましく、より好ましくは0.1～5質量部である。イミダゾール化合物（H）の含有量を上記範囲内とすることで、硬化度、ガラス転移温度、吸水率、及び弾性率が一層向上する。

[0095] また、本実施形態においては、所期の特性が損なわれない範囲において、上記イミダゾール化合物（H）に加え、他の硬化促進剤を併用することも可能である。このような化合物としては、例えば、過酸化ベンゾイル、ラウロイルパーオキサイド、アセチルパーオキサイド、パラクロロベンゾイルパーオキサイド、ジ-tert-ブチルジパーフタレート等で例示される有機過酸化物；アゾビスニトリル等のアゾ化合物；N，N-ジメチルベンジルアミン、N，N-ジメチルアニリン、N，N-ジメチルトルイジン、2-N-エチルアニリノエタノール、トリ-n-ブチルアミン、ピリジン、キノリン、N-メチルモルホリン、トリエタノールアミン、トリエチレンジアミン、テトラメチルブタンジアミン、N-メチルピペリジン等の第3級アミン類；フェノール、キシレノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール等のフェノール類；ナフテン酸鉛、ステアリン酸鉛、ナフテン酸亜鉛、オクチル酸亜鉛、オレイン酸錫、ジブチル錫マレート、ナフテン酸マンガンのナフテン酸コバルト、アセチルアセトン鉄等の有機金属塩；これら有機金属塩をフェノール、ビスフェノール等の水酸基含有化合物に溶解してなるもの；塩化錫、塩化亜鉛、塩化アルミニウム等の無機金属塩；ジオクチル錫オキサイド、その他のアルキル錫、アルキル錫オキサイド等の有機錫化合物等が挙げられる。

- [0096] さらに、本実施形態においては、所期の特性が損なわれない範囲において、シリコンパウダーを更に含んでもよい。シリコンパウダーは、燃焼時間を遅らせ、難燃効果を高める難燃助剤としての作用等がある。
- [0097] シリコンパウダーとしては、例えば、シロキサン結合が三次元網目状に架橋したポリメチルシルセスキオキサンを微粉末化したもの、ビニル基含有ジメチルポリシロキサンとメチルヒドロジェンポリシロキサンの付加重合物を微粉末化したもの、ビニル基含有ジメチルポリシロキサンとメチルヒドロジェンポリシロキサンの付加重合物による微粉末の表面にシロキサン結合が三次元網目状に架橋したポリメチルシルセスキオキサンを被服させたもの、シロキサン結合が三次元網目状に架橋したポリメチルシルセスキオキサンによって無機担持体表面が被覆されたもの等が挙げられる。
- [0098] シリコンパウダーの平均粒子径 (D_{50}) は、特に限定されないが、分散性を考慮すると平均粒子径 (D_{50}) が $1 \sim 15 \mu m$ であることが好ましい。シリコンパウダーの平均粒子径 (D_{50}) は、無機充填材 (D) の平均粒子径 (D_{50}) の測定方法に準じて測定することができる。
- [0099] シリコンパウダーの含有量は、特に限定されないが、環状エポキシ変性シリコン化合物 (A)、シアン酸エステル化合物 (B)、フェノール樹脂 (C)、非ハロゲンエポキシ樹脂 (E)、及び任意成分として含有されるマレイミド化合物 (F) の合計 100 質量部に対し、 $3 \sim 120$ 質量部であることが好ましく、より好ましくは $5 \sim 80$ 質量部である。シリコンパウダーの含有量を上記範囲内とすることで、難燃助剤としての効果から難燃性を一層向上でき、硬度が低い成分が配合されることからドリル加工性を一層向上でき、さらには、シリコンパウダーの過剰量の添加を避けることで成形性を一層向上させることができる。
- [0100] また、本実施形態の樹脂組成物が、BT樹脂 (G) を含む態様においては、環状エポキシ変性シリコン化合物 (A)、BT樹脂 (G)、非ハロゲンエポキシ樹脂 (E) の総量 100 質量部に対し、 $3 \sim 120$ 質量部であることが好ましく、より好ましくは $5 \sim 80$ 質量部である。シリコンパウダー

の含有量を上記範囲内とすることで、難燃助剤としての効果から難燃性を一層向上でき、硬度が低い成分が配合されることからドリル加工性を一層向上でき、さらには、シリコンパウダーの過剰量の添加を避けることで成形性を一層向上させることができる。

[0101] さらに、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における粘度を下げることができ、その結果、ハンドリング性が一層向上されるとともに、ガラスクロス等への含浸性が一層高められる。溶剤の種類としては、樹脂組成物の成分として用いるものを溶解可能なものであればよく、特に限定されない。溶剤の具体例としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルセルソルブ等のケトン類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジメチルホルムアミド等のアミド類、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等が挙げられるが、これらに特に限定されない。溶剤は、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0102] 本実施形態における樹脂組成物は、常法に従って調製することもでき、例えば、樹脂組成物を構成する各成分を均一になるよう攪拌する方法等が挙げられる。例えば、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、シアン酸エステル化合物（B）及び／又はフェノール樹脂（C）、無機充填材（D）、並びに上述したその他の任意成分を、必要に応じて溶剤を用いて、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調製することができる。また、本実施形態の樹脂組成物がBT樹脂（G）を含む態様である場合には、例えば、環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、シアン酸エステル化合物（B）、シリカ等を、必要に応じて溶剤を用いて、順次配合し、十分に攪拌することで、本実施形態の樹脂組成物を調製することができる。

[0103] 本実施形態の樹脂組成物の調製時において、必要に応じて有機溶剤等の溶剤を使用することができる。有機溶剤の種類としては、使用する成分を溶解可能なものであれば、特に限定されない。ここで用いる溶剤の具体例としては、溶剤として上述した具体例と同様のものを用いることができる。

[0104] なお、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、混練処理等）を行うことができる。例えば、無機充填材（D）等を均一分散させるあたり、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ることができる。かかる攪拌槽を用いて攪拌分散処理を行うことで、樹脂組成物中の分散性が高められる。上記の攪拌、混合、及び混練処理は、例えば、ボールミル、ビーズミル等の混合を目的とした装置、又は、公転・自転型の混合装置等の公知の装置を用いて適宜行うことができる。

[0105] 各種基材を、本実施形態の樹脂組成物に含浸させたり、当該樹脂組成物を塗布させたりすることで、プリプレグとすることができる。プリプレグの好適な態様としては、上記樹脂組成物と、この樹脂組成物が含浸又は塗布された基材と、を含むプリプレグが挙げられる。プリプレグの作製方法は、常法にしたがって行うこともでき、特に限定されない。例えば、上記樹脂組成物を基材に含浸させた後、あるいは、基材に樹脂組成物を塗布した後、100～200℃の乾燥機中で基材を1～30分加熱する等によって、半硬化（Bステージ化）させる方法等が挙げられる。これにより、本実施形態のプリプレグを作製することができる。

[0106] なお、プリプレグの総量における樹脂組成物の含有量が、30～90質量％であることが好ましく、35～80質量％であることがより好ましく、40～75質量％であることが更に好ましい。

[0107] 基材としては、特に限定されるものではなく、各種プリント配線板の材料等に用いられている公知の基材を、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。基材の具体例としては、例えば、Eガラスクロス、Dガラスクロス、Sガラスクロス、Qガラスクロス、球状ガラス、NEガラス、Tガラス等のガラス繊維；クォーツ等のガラス以外の無機繊維；ポリパラフェニレンテレフタルアミド（ケブラー（登録商標）、デュポン社製）、コポリパラフェニレン・3,4'-オキシジフェニレン・テレフタルアミド（テクノーラ（登録商標）、帝人テクノプロダクツ社製）等の全芳香族ポリ

アミド、2,6-ヒドロキシナフトエ酸・パラヒドロキシ安息香酸（ベクトラン（登録商標）、クラレ社製）等のポリエステル、ポリパラフェニレンベンズオキサゾール（ザイロン（登録商標）、東洋紡績社製）、ポリイミド等の有機繊維等が挙げられるが、これらに特に限定されない。

[0108] また、シート状の基材としては、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、エチレンテトラフルオロエチレン共重合体フィルム、並びにこれらのフィルムの表面に離型剤を塗布した離型フィルム、ポリイミドフィルム等の有機フィルムが挙げられる。

[0109] これらの中でも、低熱膨張性の観点から、E ガラスクロス、T ガラスクロス、S ガラスクロス、Q ガラスクロス、有機繊維、及び有機フィルムからなる群より選ばれる1種以上であることが好ましい。これら基材は、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0110] 基材の形状としては、例えば、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等が挙げられるが、これらに限定されない。織布としては、例えば、平織り布、ななこ織り布、綾織り布等が挙げられ、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。例えば、これらを開織処理した織布やシランカップリング剤などで表面処理したガラス織布等が好適に使用される。

[0111] 基材の厚さは、特に限定されないが、通常は0.01～0.3mm程度であることが好ましい。とりわけ、強度と吸水性の観点から、基材は、厚み200μm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。

[0112] 本実施形態のプリプレグに、金属箔を積層させることで、金属箔張積層板とすることができる。すなわち、本実施形態の金属箔張積層板は、上記したプリプレグと、このプリプレグ上に積層された金属箔と、を含む金属箔張積層板である。本実施形態の金属箔張積層板は、低い熱膨張率、高い難燃性、良好な成形性及びドリル加工性を有し、そのような性能が要求される半導体

パッケージ用プリント配線板等として、特に好適である。

[0113] 金属箔張積層板は、例えば、上記したプリプレグを少なくとも1枚以上重ね、その片面又は両面に、金属箔を配して積層成形することにより、得ることができる。具体的には、前述のプリプレグを1枚あるいは複数枚以上を重ね、所望によりその片面又は両面に、銅やアルミニウム等の金属箔を配置した構成とし、これを必要に応じて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。

[0114] また、本実施形態の金属箔張積層板は、プリプレグと金属箔とを積層し、このプリプレグを硬化させてもよい。この場合、プリプレグと、プリプレグ上に積層された金属箔とを含み、このプリプレグが硬化した金属箔張積層板となる。

[0115] 金属箔は、プリント配線板の材料等として用いられるものであれば、特に限定されないが、圧延銅箔や電解銅箔等が好ましい。また、金属箔の厚みは、特に限定されないが、 $2 \sim 70 \mu\text{m}$ であることが好ましく、より好ましくは $2 \sim 35 \mu\text{m}$ 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プリント配線板用多層板の成形方法及び成形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等を用いることができ、成形温度は $100 \sim 300^\circ\text{C}$ 、成形圧力は面圧 $2 \sim 100 \text{ kgf/cm}^2$ 、加熱時間は $0.05 \sim 5$ 時間の範囲が一般的である。さらに、必要に応じて、 $150 \sim 300^\circ\text{C}$ の温度で後硬化を行うこともできる。また、上記プリプレグに、別途作製した内層用の配線板を積層することにより、金属箔張積層板とすることも可能である。

[0116] 本実施形態の樹脂組成物を絶縁層として用いることで、プリント配線板とすることができる。あるいは、上述した本実施形態の金属箔張積層板に、所定の配線パターンを形成することによって、プリント配線板として好適に用いることもできる。すなわち、本実施形態のプリント配線板は、上記樹脂組成物を含む絶縁層と、この絶縁層の表面に形成された導体層と、を含むプリ

ント配線板である。本実施形態のプリント配線板は、難燃性、耐熱性、及びドリル加工性に優れ、熱膨張率が低いものとなる。

[0117] 絶縁層としては、本実施形態の樹脂組成物を含む層であればよく、特に限定されないが、例えば、本実施形態のプリプレグが挙げられる。導体層としては、特に限定されないが、例えば、金属箔張積層板の金属箔からなる層が挙げられる。

[0118] 本実施形態のプリント配線板の製造方法の一例を、以下に説明する。

まず、本実施形態の金属箔張積層板を用意する。この金属箔張積層板は、本実施形態の樹脂組成物を少なくとも用いたものであり、例えば、プリプレグ上に金属箔が積層されたものである。

[0119] 次に、金属箔張積層板の表面にエッチング処理を施すことで、内層回路を形成し、内層基板を得る。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、本実施形態のプリプレグを所要枚数重ね、更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。これにより、内層回路と外層回路用の金属箔との間に、プレプリグの硬化物からなる絶縁層が形成された多層の積層板を得る。

[0120] そして、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、更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し、プリント配線板が製造される。この製法の場合、上記した樹脂組成物、プリプレグ（基材及びこれに添着された本実施形態の樹脂組成物）、金属箔張積層板の樹脂組成物層（本実施形態の樹脂組成物からなる層）が、樹脂組成物を含む絶縁層を構成することになる。

実施例

[0121] 以下に、実施例、及び比較例を示し、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例によりなんら限定されるものではない。

[0122] （合成例 1 α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物の合成）

温度計、攪拌器、滴下漏斗、及び還流冷却器を備えた反応器を、予めブラインにより 0～5℃に冷却しておき、そこへ塩化シアン 7.47 g (0.122 mol)、35%塩酸 9.75 g (0.0935 mol)、水 76 mL、及び塩化メチレン 44 mL を仕込んだ。

この反応器内の反応液の温度を -5～+5℃に、pH を 1 以下に保ち、これを攪拌しながら、式 (7) における R₃ が全て水素原子である α -ナフトールアラルキル型フェノール樹脂 (商品名「SN485」、新日鐵化学社製；水酸基当量：214 g/eq.、軟化点：86℃) 20 g (0.0935 mol)、及びトリエチルアミン 14.16 g (0.14 mol) を塩化メチレン 92 mL に溶解した溶液を、滴下漏斗により 1 時間かけて滴下した。

滴下終了後、反応液に対して、トリエチルアミン 4.72 g (0.047 mol) を 15 分間かけて更に滴下した。

滴下終了後、同温度で 15 分間攪拌後、反応液を分液し、有機層を分取した。得られた有機層を水 100 mL で 2 回洗浄した後、エバポレーターを用いて減圧下で塩化メチレンを留去し、さらに 80℃で 1 時間濃縮乾固させることで、 α -ナフトールアラルキル樹脂のシアン酸エステル化合物 (α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、シアネート当量：261 g/eq.) 23.5 g を得られた。

[0123] (合成例 2 BT 樹脂 1 の合成)

合成例 1 で得られた α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物 (シアネート当量：261 g/eq.) 36 質量部と、マレイミド化合物 (商品名「BMI-2300」、大和化成工業社製；式 (15) における R₁₀ が全て水素原子であり、n₁₀=2 である化合物と、式 (15) における R₁₀ が全て水素原子であり、n₁₀=3 である化合物の混合物) 26 質量部を、ジメチルアセトアミドに溶解し、150℃で攪拌しながら反応させ、BT 樹脂 1 を得た。

[0124] (合成例 3 BT 樹脂 2 の合成)

合成例 1 で得られた α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物

(シアネート当量：261 g／eq.) 30質量部と、合成例2で使用したマレイミド化合物(商品名「BMI-2300」) 30質量部を、ジメチルアセトアミドに溶解し、150℃で攪拌しながら反応させ、BT樹脂2を得た。

[0125] 水酸基当量、シアネート基当量、及びエポキシ基当量は、JIS K7236：2001に準じて滴定により測定した。軟化点は、JIS K7206に準じて、測定した。

[0126] (実施例1)

式(2)で示される環状エポキシ変性シリコン樹脂1(信越化学工業社製、商品名「X-40-2670」；エポキシ当量：185 g／eq.)を17質量部、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂(DIC社製、商品名「HP-6000」；エポキシ当量：250 g／eq.)を27質量部、式(7)におけるR₃が全て水素原子であるナフトールアラルキル型フェノール樹脂(新日鐵化学社製、商品名「SN-495」；水酸基当量：236 g／eq.)を36質量部、アミノトリアジンノボラック樹脂(DIC社製、商品名「PHENOLITE LA-3018-50P」；水酸基当量：151 g／eq.)を3質量部、ビス(3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフェニル)メタン(ケイ・アイ化成工業社製、商品名「BMI-70」)を17質量部、シランカップリング剤(東レ・ダウコーティング社製、商品名「Z6040」)を5質量部、湿潤分散剤1(ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「disperbyk-161」)を1質量部、球状溶融シリカ(アドマテックス社製、商品名「SC2500-SQ」；粒径：0.5 μm)を150質量部、2-エチル-4-メチルイミダゾール(四国化成工業社製、商品名「2E4MZ」) 0.02質量部を混合してワニスを得た。このワニスの水酸基当量／エポキシ当量の当量比は、0.86であった。このワニスをメチルエチルケトンで希釈し、厚さ0.1 mmのSガラス織布に含浸塗工し、140℃で3分間加熱乾燥して、樹脂含有量46質量%のプリプレグを得た。

[0127] (実施例2)

ナフトールアラルキル型フェノール樹脂の代わりにフェニルアラルキル型フェノール樹脂（日本化薬社製、商品名「KAYAHARD GPH-103」；水酸基当量：231 g/eq.）を18質量部、ナフタレン骨格型フェノール樹脂（DIC社製、商品名「EPICLON EXB-9500」；水酸基当量：153 g/eq.）を18質量部使用した以外は、実施例1と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスの水酸基当量/エポキシ当量の当量比は、1.08であった。

[0128] (実施例3)

環状エポキシ変性シリコン樹脂として式（3）で示される環状エポキシ変性シリコン樹脂2（信越化学工業社製、商品名「X-40-2705」；エポキシ当量：212 g/eq.）を17質量部使用した以外は、実施例2と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスの水酸基当量/エポキシ当量の当量比は、1.15であった。

[0129] (実施例4)

環状エポキシ変性シリコン樹脂として式（4）で示される環状エポキシ変性シリコン樹脂3（信越化学工業社製、商品名「X-40-2701」；エポキシ当量：177 g/eq.）を17質量部使用した以外は、実施例2と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスの水酸基当量/エポキシ当量の当量比は、1.05であった。

[0130] (実施例5)

環状エポキシ変性シリコン樹脂1を17質量部、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂（商品名「HP-6000」）を21質量部、合成例1で得られた α -ナフトールアラルキル型シアネート化合物（シアネート当量：261 g/eq.）を36質量部、合成例2で使用したマレイミド化合物（商品名「BMI-2300」）を26質量部、シランカップリング剤（商品名「Z6040」）を5質量部、湿潤分散剤1（ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「disperbyk-161」）を1質量部、湿潤分散剤

2 (ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「dispersbyk-111」) を2質量部、球状溶融シリカ (商品名「SC2500-SQ」) を200質量部、式(16)における R_{10} 及び A_r が全てフェニル基である2, 4, 5-トリフェニルイミダゾール (和光純薬工業社製) を1質量部混合してワニスを得た。このワニスのシアネート基当量/エポキシ当量の当量比は、0.78であった。このワニスをメチルエチルケトンで希釈し、厚さ0.1mmのSガラス織布に含浸塗工し、140℃で3分間加熱乾燥して、樹脂含有量46質量%のプリプレグを得た。

[0131] (実施例6)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂1を25質量部とし、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂 (商品名「HP-6000」; エポキシ当量250g/eq.) を13質量部とした以外は、実施例5と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量/エポキシ当量の当量比は、0.74であった。

[0132] (実施例7)

α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物の代わりに、合成例2で得られたBT樹脂1を62質量部使用した以外は、実施例5と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量/エポキシ当量の当量比は、0.81であった。

[0133] (実施例8)

α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物の代わりに、合成例3で得られたBT樹脂2を66質量部使用し、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂 (商品名「HP-6000」) を17質量部とした以外は、実施例5と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量/エポキシ当量の当量比は、0.79であった。

[0134] (実施例9)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂1の代わりに、環状エポキシ変性シリコーン樹脂2を17質量部使用した以外は、実施例5と同様にしてプリプレグ

を得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.84であった。

[0135] (実施例10)

環状エポキシ変性シリコン樹脂1の代わりに、環状エポキシ変性シリコン樹脂3を17質量部使用した以外は、実施例5と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.76であった。

[0136] (実施例11)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）の量を250質量部に変更とした以外は、実施例5と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.78であった。

[0137] (実施例12)

シリコンレジンで表面を被覆したシリコンゴムパウダー（シリコン複合パウダー；信越化学工業社製、商品名「KMP-600」）10質量部を追加した以外は、実施例11と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.78であった。

[0138] (実施例13)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）の量を300質量部に変更した以外は、実施例11と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.78であった。

[0139] (実施例14)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）の量を400質量部に変更した上で、厚さ0.70mmのSガラス織布に樹脂含有量62質量%で含浸塗工した以外は、実施例11と同様にしてプリプレグを得た。なお、ワニスのシアネート基当量／エポキシ当量の当量比は、0.78であった。

[0140] (実施例15)

Sガラス織布の代わりにQガラス織布に含浸塗工した以外は、実施例2と同様にしてプリプレグを得た（ワニスの水酸基当量／エポキシ当量の当量比

1. 08)。

[0141] (実施例 16)

S ガラス織布の代わりに Q ガラス織布に含浸塗工した以外は、実施例 3 と同様にしてプリプレグを得た (ワニスの水酸基当量/エポキシ当量の当量比 1. 15)。

[0142] (実施例 17)

S ガラス織布の代わりに Q ガラス織布に含浸塗工した以外は、実施例 4 と同様にしてプリプレグを得た (ワニスの水酸基当量/エポキシ当量の当量比は、1. 05)。

[0143] (比較例 1)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 を使用せず、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂 (商品名「HP-6000」) を 44 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0144] (比較例 2)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 (信越化学工業社製、商品名「X-22-163A」; 両末端エポキシ変性、エポキシ当量: 1000 g/eq.) を 17 質量部使用した以外は、実施例 1 と同様にしてプリプレグを得た。

[0145] (比較例 3)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 (信越化学工業社製、商品名「X-22-163A」) を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0146] (比較例 4)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 2 (信越化学工業社製、商品名「X-22-163B」; 両末端エポキシ変性、エポキシ当量: 1750 g/eq.) を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0147] (比較例 5)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりにエポキシ変性シリコーン樹脂 3（信越化学工業社製、商品名「X-22-169AS」；両末端脂環式エポキシ変性、エポキシ当量：500 g/eq.）を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0148]（比較例 6）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 4（信越化学工業社製、商品名「X-41-1053」；両末端エポキシ変性、エポキシ当量：820 g/eq.）を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0149]（比較例 7）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 5（信越化学工業社製、商品名「KF105」；両末端エポキシ変性、エポキシ当量：490 g/eq.）を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 と同様にしてプリプレグを得た。

[0150]（比較例 8）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 を使用せず、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂（商品名「HP-6000」）を 38 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0151]（比較例 9）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1（商品名「X-22-163A」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0152]（比較例 10）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1（商品名「X-22-163A」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 7 と同様にしてプリプレグを得た。

[0153]（比較例 11）

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコ

ーン樹脂 1（商品名「X-22-163A」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 8 と同様にしてプリプレグを得た。

[0154]（比較例 1 2）

環状エポキシ変性シリコン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコン樹脂 2（商品名「X-22-163B」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0155]（比較例 1 3）

環状エポキシ変性シリコン樹脂 1 の代わりにエポキシ変性シリコン樹脂 3（商品名「X-22-169AS」；両末端脂環式エポキシ変性）を 17 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0156]（比較例 1 4）

環状エポキシ変性シリコン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコン樹脂 4（商品名「X-41-1053」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0157]（比較例 1 5）

環状エポキシ変性シリコン樹脂 1 の代わりに非環状エポキシ変性シリコン樹脂 5（商品名「KF105」）を 17 質量部使用した以外は、実施例 5 と同様にしてプリプレグを得た。

[0158]（実施例 1 8）

式（2）で示される環状エポキシ変性シリコン樹脂 1（信越化学工業社製、商品名「X-40-2670」；エポキシ当量：185 g/eq.）を 17 質量部、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂（DIC 社製、商品名「HP-6000」；エポキシ当量：250 g/eq.）を 38 質量部、式（7）における R₃ が全て水素原子であるナフトールアラルキル型フェノール樹脂（新日鐵化学社製、商品名「SN-495」；水酸基当量：236 g/eq.）を 25 質量部、アミノトリアジンノボラック樹脂（DIC 社製、商品名「PHENOLITE LA-3018-50P」；水酸基当量：151 g/eq.）を 3 質量部、ビス（3-エチル-5-メチル-4-マレイミドフ

エニル)メタン(ケイ・アイ化成工業社製、商品名「BMI-70」)を17質量部、シランカップリング剤(東レ・ダウコーティング社製、商品名「Z6040」)を5質量部、湿潤分散剤1(ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「dispersbyk-161」)を1質量部、球状溶融シリカ(アドマテックス社製、商品名「SC2500-SQ」、粒径:0.5 μ m)を150質量部、2-エチル-4-メチルイミダゾール(四国化成工業社製、商品名「2E4MZ」)0.02質量部を混合してワニスを得た。このワニスの水酸基当量/エポキシ基当量の当量比は0.52であった。このワニスをメチルエチルケトンで希釈し、厚さ0.1mmのSガラス織布に含浸塗工し、140℃で3分間加熱乾燥して、樹脂含有量46質量%のプリプレグを得た。

[0159] (実施例19)

ナフトールアラルキル型フェノール樹脂を使用せず、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂(商品名「HP-6000」)を43質量部とし、フェニルアラルキル型フェノール樹脂(日本化薬社製、商品名「KAYAHARD GPH-103」;水酸基当量:231g/eq.)を10質量部と、ナフタレン骨格型フェノール樹脂(DIC社製、商品名「EPICLON EXB-9500」;水酸基当量:153g/eq.)を10質量部加えた以外は、実施例1と同様にしてワニスを得た。このワニスの水酸基当量/エポキシ基当量の当量比は0.49であった。このワニスから実施例18と同様にして、プリプレグを得た。

[0160] (実施例20)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂として式(3)で示される環状エポキシ変性シリコーン樹脂2(信越化学工業社製、商品名「X-40-2705」;エポキシ当量:212g/eq.)を17質量部使用した以外は、実施例19と同様にしてワニスを得た。このワニスの水酸基当量/エポキシ基当量の当量比は、0.51であった。このワニスから実施例19と同様にして、プリプレグを得た。

[0161] (実施例 2 1)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂として式 (4) で示される環状エポキシ変性シリコーン樹脂 3 (信越化学工業社製、商品名「X-40-2701」; エポキシ当量: 177 g/eq.) を 17 質量部使用した以外は、実施例 19 と同様にしてワニスを得た。このワニスの水酸基当量/エポキシ基当量の当量比は 0.48 であった。このワニスから実施例 19 と同様にして、プリプレグを得た。

[0162] (実施例 2 2)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 を 17 質量部、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂 (商品名「HP-6000」) を 31 質量部、合成例 1 で得られた α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物 (シアネート当量: 261 g/eq.) を 26 質量部、合成例 2 で使用したマレイミド化合物 (商品名「BMI-2300」) を 26 質量部、シランカップリング剤 (商品名「Z6040」) を 5 質量部、湿潤分散剤 1 (ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「disperbyk-161」) を 1 質量部、湿潤分散剤 2 (ビッグケミー・ジャパン社製、商品名「disperbyk-111」) を 2 質量部、球状溶融シリカ (商品名「SC2500-SQ」) を 200 質量部、式 (16) における R_{11} 及び A_r が全てフェニル基である 2, 4, 5-トリフェニルイミダゾール (和光純薬工業社製) を 1 質量部混合してワニスを得た。このワニスのシアネート基当量/エポキシ基当量の当量比は 0.46 であった。このワニスをメチルエチルケトンで希釈し、厚さ 0.1 mm の S ガラス織布に含浸塗工し、140°C で 3 分間加熱乾燥して、樹脂含有量 46 質量% のプリプレグを得た。

[0163] (実施例 2 3)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 1 を 25 質量部とし、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂 (商品名「HP-6000」) を 23 質量部とした以外は、実施例 22 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量/エポキシ基当量の当量比は 0.44 であった。このワニスから、実施例 2

2と同様にして、プリプレグを得た。

[0164] (実施例 2 4)

α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物の代わりに、合成例 2 で得られた BT 樹脂 1 を 50 質量部使用し、ポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂（商品名「HP-6000」）を 33 質量部とした以外は、実施例 2 2 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.51 であった。このワニスから、実施例 2 2 と同様にして、プリプレグを得た。

[0165] (実施例 2 5)

α -ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物の代わりに、合成例 3 で得られた BT 樹脂 2 を 52 質量部使用した以外は、実施例 2 2 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.46 であった。このワニスから、実施例 2 2 と同様にして、プリプレグを得た。

[0166] (実施例 2 6)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 2 を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 2 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.49 であった。このワニスから、実施例 2 2 と同様にして、プリプレグを得た。

[0167] (実施例 2 7)

環状エポキシ変性シリコーン樹脂 3 を 17 質量部使用した以外は、実施例 2 2 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.45 であった。このワニスから、実施例 2 2 と同様にして、プリプレグを得た。

[0168] (実施例 2 8)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）を 250 質量部とした以外は、実施例 2 2 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.46 であった。このワニスから、実施

例 22 と同様にして、プリプレグを得た。

[0169] (実施例 29)

シリコーンレジンで表面を被覆したシリコーンゴムパウダー（シリコーン複合パウダー；信越化学工業社製、商品名「KMP-600」）10質量部を追加した以外は、実施例 28 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.46 であった。このワニスから、実施例 28 と同様にして、プリプレグを得た。

[0170] (実施例 30)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）を 300 質量部とした以外は、実施例 22 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基／エポキシ基の当量比は 0.46 であった。このワニスから実施例 22 と同様にして、プリプレグを得た。

[0171] (実施例 31)

球状溶融シリカ（商品名「SC2500-SQ」）を 400 質量部とした以外は、実施例 22 と同様にしてワニスを得た。このワニスのシアネート基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.46 であった。このワニスを厚さ 0.07 mm の S ガラス織布に樹脂含有量 62 質量％で含浸塗工した以外は、実施例 22 と同様にして、プリプレグを得た。

[0172] (実施例 32)

S ガラス織布の代わりに Q 織布に含浸塗工した以外は、実施例 19 と同様にしてワニスを得た。このワニスのフェノール基／エポキシ基の当量比は 0.49 であった。このワニスから、実施例 19 と同様にして、プリプレグを得た。

[0173] (実施例 33)

S ガラス織布の代わりに Q 織布に含浸塗工した以外は、実施例 20 と同様にしてワニスを得た。このワニスの水酸基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.51 であった。このワニスから、実施例 20 と同様にして、プリプレグを得た。

[0174] (実施例 3 4)

S ガラス織布の代わりに Q 織布に含浸塗工した以外は、実施例 2 1 と同様にしてワニスを得た。このワニスの水酸基当量／エポキシ基当量の当量比は 0.48 であった。このワニスから、実施例 2 1 と同様にして、プリプレグを得た。

[0175] (金属箔張積層板の作製)

各実施例及び各比較例で得られた各プリプレグを 2 枚重ねた。その上下に、厚さ $12\ \mu\text{m}$ である電解銅箔（三井金属鉱業社製、商品名「3EC-111」）を配置し（電解銅箔／プリプレグ／プリプレグ／電解銅箔）、圧力 $30\ \text{kgf}/\text{cm}^2$ 、温度 220°C で 120 分間の積層成形を行い、絶縁層の厚さが $0.1\ \text{mm}$ である銅張積層板を得た。

得られた銅張積層板をサンプルとし、その面方向の熱膨張率の評価を行った。その結果を、表 1～3 に示す。

[0176] (金属箔張積層板の物性評価方法)

上記にて得られた銅張積層板をサンプルとして用い、その耐熱性、吸湿耐熱性、面方向の熱膨張率、及び耐薬品性を評価した。各評価は下記方法に準拠して行った。

[0177] (1) 耐熱性（半田フロート試験）

$50\ \text{mm} \times 50\ \text{mm}$ のサンプルを、 300°C の半田に 30 分間フロートさせて、目視にてデラミネーションの発生が認められるまでの時間を測定した。30 分経過してもデラミネーションが発生しなかった場合は、表に「 $> 30\ \text{min}$ 」と表した。

[0178] (2) 吸湿耐熱性

$60\ \text{mm} \times 60\ \text{mm}$ のサンプルを 40°C のエッチング液（塩酸、水と、第二酸化鉄又は第二酸化銅との混合物）に 5 分間浸漬し、サンプルの片面の半分以外の全銅箔を除去したものを試験片とした。この試験片をプレッシャークーラー試験機（平山製作所社製、「PC-3 型」）で 121°C 、2 気圧で 3 時間処理後 260°C の半田の中に 30 sec 浸漬した後の外観変化を、目視で

観察（フクレ発生数／試験数： $n=4$ ）した。目視によりフクレが確認され
た場合を不良と判断し、フクレが確認されなかった場合を良好であると判断
した。そして、試験数4回においてフクレが発生した数を評価基準とした。

[0179] (3) 面方向の熱膨張率

銅張積層板の銅箔を40℃のエッチング液（塩酸、水と、第二酸化鉄又は
第二酸化銅との混合物）に5分間浸漬し、サンプルの片面の半分以外の全銅
箔を除去したのちに、熱機械分析装置（TAインスツルメント社製）で、4
0℃から340℃まで毎分10℃で昇温し、60℃から120℃での面方向
の熱膨張率を測定した。測定方向は積層板のガラスクロス縦方向（War
p）を測定した。

[0180] (4) 耐薬品性

テスミア工程での耐薬品性を評価するため、銅張積層板の銅箔をエッチン
グにより除去したのちに、膨潤液（アトテックジャパン社製、商品名「スウ
エリンゲイッテックセキユリガントP」）に80℃で10分間浸漬した。次に
、粗化液（アトテックジャパン社製、商品名「コンセントレートコンパクト
CP」）に80℃で5分間浸漬した。最後に、中和液（アトテックジャパン
社製、商品名「リダクシヨコンデイションナーセキユリガントP500」）
に45℃で10分間浸漬した。これらの一連の処理を3回行った後の質量変
化量（wt%）を求め、耐薬品性を評価した。

質量変化量（wt%）＝{（試験後の銅張積層板の質量）－（試験前の銅張
積層板の質量）}／（試験前の銅張積層板の質量）×100

[0181]

[表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
半田フロー	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4
熱膨張率	4 . 5	4 . 8	4 . 8	4 . 8	4 . 3	3 . 9
耐薬品性	- 1 . 2 2	- 1 . 2 1	- 1 . 3 0	- 1 . 3 7	- 1 . 3 1	- 1 . 4 4
	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12
半田フロー	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4
熱膨張率	4 . 0	4 . 1	4 . 3	4 . 1	3 . 7	3 . 7
耐薬品性	- 1 . 3 1	- 1 . 3 2	- 1 . 3 9	- 1 . 4 4	- 1 . 4 5	- 1 . 6 8
	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16	実施例 17	
半田フロー	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	> 30min	
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	
熱膨張率	3 . 2	2 . 2	3 . 8	3 . 7	3 . 5	
耐薬品性	- 1 . 4 4	- 1 . 4 4	- 1 . 1 8	- 1 . 3 7	- 1 . 4 6	

単位：熱膨張率（ppm/℃）、耐薬品性（wt%）

[0182] [表2]

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8
半田フロー	> 30min	5 min	5 min	1 min	13min	5 min	5 min	> 30min
吸湿耐熱性	0 / 4	4 / 4	4 / 4	4 / 4	0 / 4	4 / 4	4 / 4	0 / 4
熱膨張率	6 . 2	4 . 5	4 . 8	4 . 6	4 . 8	4 . 6	4 . 7	5 . 7
耐薬品性	- 0 . 8 5	- 2 . 7 5	- 2 . 5 3	- 2 . 6 3	- 2 . 8 2	- 2 . 3 8	- 1 . 6 3	- 1 . 0 3
	比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12	比較例 13	比較例 14	比較例 15	
半田フロー	4 min	5 min	5 min	1 min	10min	3 min	3 min	
吸湿耐熱性	4 / 4	4 / 4	4 / 4	4 / 4	0 / 4	4 / 4	4 / 4	
熱膨張率	4 . 3	4 . 0	4 . 1	4 . 1	4 . 3	4 . 1	4 . 2	
耐薬品性	- 3 . 0 5	- 3 . 0 5	- 3 . 0 5	- 3 . 0 4	- 2 . 7 3	- 2 . 1 8	- 2 . 0 9	

単位：熱膨張率（ppm/℃）、耐薬品性（wt%）

[0183]

[表3]

	実施例 18	実施例 19	実施例 20	実施例 21	実施例 22	実施例 23
半田フロート	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4
熱膨張率	4.3	4.6	4.6	4.6	4.2	3.9
耐薬品性	-0.70	-0.75	-0.80	-0.80	-0.75	-0.83
	実施例 24	実施例 25	実施例 26	実施例 27	実施例 28	実施例 29
半田フロート	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4
熱膨張率	3.8	3.7	4.2	3.9	3.5	3.5
耐薬品性	-0.76	-0.77	-0.85	-0.88	-0.89	-0.98
	実施例 30	実施例 31	実施例 32	実施例 33	実施例 34	
半田フロート	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	> 30 min	
吸湿耐熱性	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	0 / 4	
熱膨張率	3.0	2.1	3.7	3.6	3.5	
耐薬品性	-0.88	-0.84	-0.69	-0.76	-0.86	

単位：熱膨張率（ppm/°C）、耐薬品性（wt%）

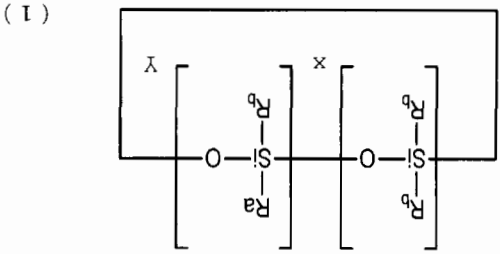
[0184] 以上より、各実施例では、耐熱性、吸湿耐熱性、低熱膨張性、耐薬品性に優れており、高耐熱性、高信頼性、及び耐薬品性等が要求される半導体プラスチックパッケージ用の材料等に好適に使用可能であることが、少なくとも確認された。さらには、各実施例の樹脂組成物を用いて作製されたプリプレグは、プリプレグを硬化させた積層板等とした際に要求される難燃性も十分に維持できることが十分に期待される。

[0185] 本出願は、2012年10月19日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願2012-231632）及び2013年08月19日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願2013-169894）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

請求の範囲

式 (1) で示される環状エポキシ変性シリコン化合物 (A)、シ
アソ酸エスナル化合物 (B) 及び／又はフェノール樹脂 (C)、並び
に無機充填材 (D) を含有する、樹脂組成物。

[化1]



(上記式 (1) 中、R_a は、各々独立に、エポキシ基を有する有機基
を示し、R_b は、各々独立に、置換又は非置換の 1 価の炭化水素基を
示す。×は 0～2 の整数を示し、y は 1～6 の整数を示す。また、×
が付されたシロキサン単位と y が付されたシロキサン単位とは、互い
にランダムに配列される。)

式 (1) で示される環状エポキシ変性シリコン化合物 (A) のエ
ポキシ基が、3，4－エポキシシクロヘキシルエチル基である、請求
項 1 に記載の樹脂組成物。

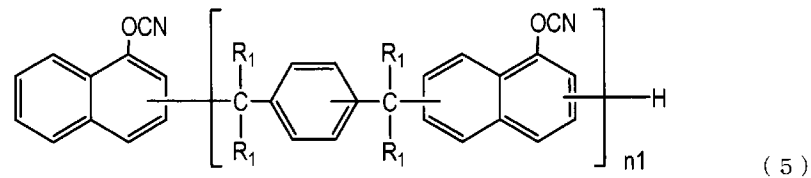
前記シアソ酸エスナル化合物 (B) のシアネート基及び／又は前記
フェノール樹脂 (C) の水酸基の当量と、前記樹脂組成物に含有され
るエポキシ化合物が有するエポキシ基の当量の比が、シアソ酸エス
ナル化合物 (B) のシアネート基及び／又は前記フェノール樹脂 (C)
の水酸基の当量を分子とし、エポキシ当量を分母とした場合に、0.
3～0.7 である、請求項 1 又は 2 に記載の樹脂組成物。

非ハロゲンエポキシ樹脂 (E) を更に含有する、請求項 1～3 のい
ずれか一項に記載の樹脂組成物。

フレイミド化合物 (F) を更に含有する、請求項 1～4 のいずれか
一項に記載の樹脂組成物。

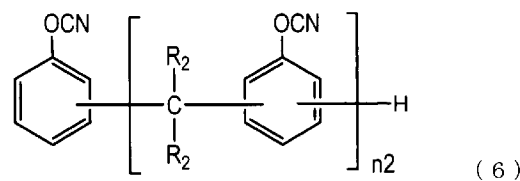
[請求項6] 前記シアン酸エステル化合物（B）が、式（5）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物及び／又は式（6）で示されるノボラック型シアン酸エステル化合物である、請求項1～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化2]



（式中、 R_1 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_1 は1以上の整数を示す。）

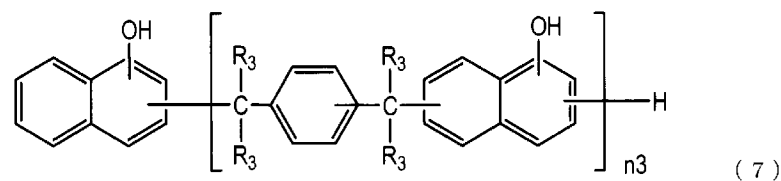
[化3]



（式中、 R_2 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_2 は1以上の整数を示す。）

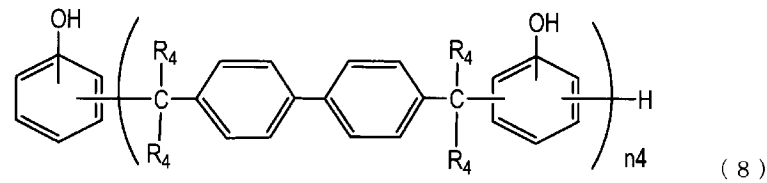
[請求項7] 前記フェノール樹脂（C）が、式（7）で示されるナフトールアラルキル型フェノール樹脂及び／又は式（8）で示されるビフェニルアラルキル型フェノール樹脂である、請求項1～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化4]



（式中、 R_3 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_3 は1以上の整数を示す。）

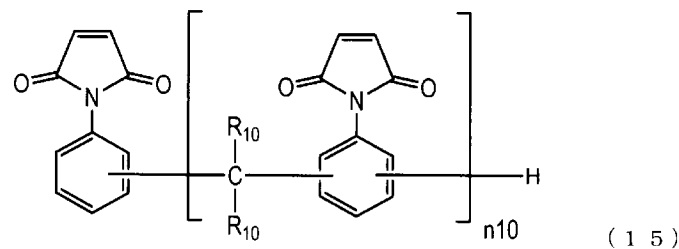
[化5]



(式中、 R_4 は、水素原子又はメチル基を示し、 n_4 は1以上の整数を示す。)

[請求項8] 前記マレイミド化合物(F)が、式(15)で示される化合物である、請求項5～7のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化6]



(式中、 R_{10} は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_{10} は1以上の整数を示す。)

[請求項9] 前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記シアン酸エステル化合物(B)、前記フェノール樹脂(C)、前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)、及び前記マレイミド化合物(F)の総量100質量部に対し、5～50質量部である、請求項5～8のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

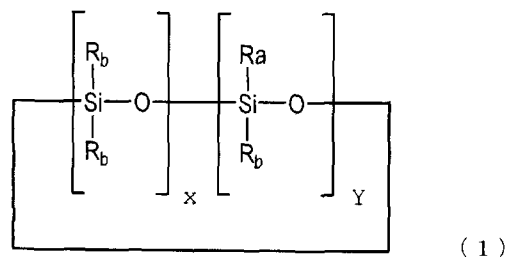
[請求項10] 前記シアン酸エステル化合物(B)及び前記フェノール樹脂(C)の総含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記シアン酸エステル化合物(B)、前記フェノール樹脂(C)、前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)、及び前記マレイミド化合物(F)の総量100質量部に対し、10～50質量部である、請求項5～9のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項11] 前記無機充填材（D）の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、前記シアン酸エステル化合物（B）、前記フェノール樹脂（C）、前記非ハロゲンエポキシ樹脂（E）、及び前記マレイミド化合物（F）の総量100質量部対し、50～500質量部である、請求項5～10のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項12] 前記マレイミド化合物（F）の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、前記シアン酸エステル化合物（B）、前記フェノール樹脂（C）、前記非ハロゲンエポキシ樹脂（E）、及び前記マレイミド化合物（F）の合計100質量部に対し、5～50質量部である、請求項5～11のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項13] 式（1）で示される環状エポキシ変性シリコン化合物（A）、シアン酸エステル化合物とマレイミド化合物をプレポリマー化してなるBT樹脂（G）、及び無機充填材（D）を含有する、樹脂組成物。

[化7]



（上記式（1）中、 R_a は、各々独立に、エポキシ基を有する有機基を示し、 R_b は、各々独立に、置換又は非置換の1価の炭化水素基を示す。 x は0～2の整数を示し、 y は1～6の整数を示す。また、 x が付されたシロキサン単位と y が付されたシロキサン単位とは、互いにランダムに配列される。）

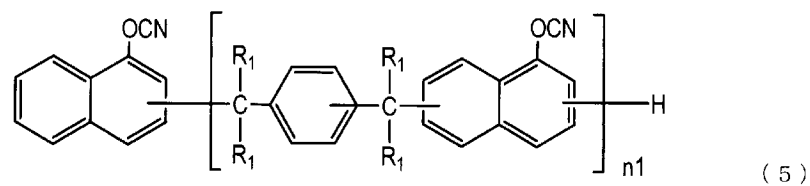
[請求項14] 前記BT樹脂（G）に用いられるシアン酸エステル化合物が有するシアネート基の当量と、前記樹脂組成物に含有されるエポキシ化合物が有するエポキシ基の当量の比が、シアネート基当量を分子とし、エポキシ当量を分母とした場合に、0.3～0.7である、請求項13

に記載の樹脂組成物。

[請求項15] 非ハロゲンエポキシ樹脂（E）を更に含有する、請求項13又は14に記載の樹脂組成物。

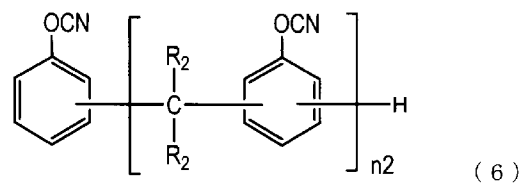
[請求項16] 前記BT樹脂（G）に使用されるシアン酸エステル化合物（B）が、式（5）で示されるナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物及び／又は式（6）で示されるノボラック型シアン酸エステル化合物である、請求項13～15のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化8]



（式中、 R_1 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_1 は1以上の整数を示す。）

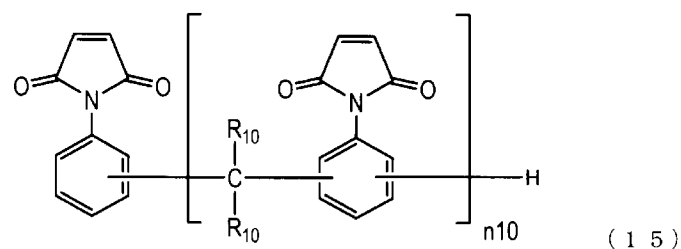
[化9]



（式中、 R_2 は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n_2 は1以上の整数を示す。）

[請求項17] 前記BT樹脂（G）に用いられるマレイミド化合物が、式（15）で示される化合物である、請求項13～16のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化10]



(式中、 R_{10} は、各々独立に、水素原子又はメチル基を示し、 n は1以上の整数を示す。)

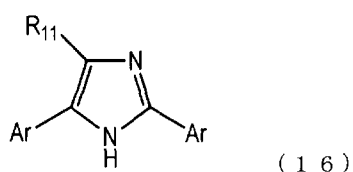
[請求項18] 前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、5～50質量部である、請求項15～17のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項19] 前記BT樹脂(G)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、20～80質量部である、請求項15～18のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項20] 前記無機充填材(D)の含有量が、前記環状エポキシ変性シリコン化合物(A)、前記BT樹脂(G)、及び前記非ハロゲンエポキシ樹脂(E)の総量100質量部に対し、50～500質量部である、請求項15～19のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項21] 式(16)で示されるイミダゾール化合物(H)を更に含む、請求項1～20のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[化11]



(式中、Arは、各々独立に、フェニル基、ナフタレン基、ビフェニル基、アントラセン基、又はこれらの水酸基変性基からなる群より選ばれるいずれかを示し、 R_{11} は水素原子、アルキル基、アルキル基の水酸基変性基、又はアリール基を示す。)

[請求項22] 前記イミダゾール化合物(H)が、2,4,5-トリフェニルイミダゾールである、請求項21に記載の樹脂組成物。

[請求項23] 前記無機充填材(D)が、ベーマイト及び／又はシリカ類である、

請求項 1 ～ 2 2 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項24] 前記非ハロゲンエポキシ樹脂（E）が、フェノールフェニルアラルキルノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、アントラキノン型エポキシ樹脂、及びポリオキシナフチレン型エポキシ樹脂からなる群より選ばれる 1 種以上である、請求項 4 ～ 1 2 及び 1 5 ～ 2 3 のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

[請求項25] 請求項 1 ～ 2 4 のいずれか一項に記載の樹脂組成物と、
前記樹脂組成物が含浸又は塗布された、基材と、
を含む、プリプレグ。

[請求項26] 前記基材が、E ガラスクロス、T ガラスクロス、S ガラスクロス、Q ガラスクロス、有機繊維、及び有機フィルムからなる群より選ばれる 1 種以上である、請求項 2 5 に記載のプリプレグ。

[請求項27] 請求項 2 5 又は 2 6 に記載のプリプレグを含む、積層板。

[請求項28] 請求項 2 5 又は 2 6 に記載のプリプレグと、
前記プリプレグ上に積層された金属箔と、
を含む、金属箔張積層板。

[請求項29] 請求項 1 ～ 2 9 のいずれか一項に記載の樹脂組成物を含む絶縁層と、
、
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。